



Sveučilište u Zagrebu
PRIRODOSLOVNO-MATEMATIČKI FAKULTET

Tomislav Ilievski

**RAZVOJ RADIOANALITIČKIH METODA ZA
ODREĐIVANJE NISKIH RAZINA
AKTIVNOSTI RADIONUKLIDA U HRANI
I TLU**

DOKTORSKI RAD

Mentorica:
dr.sc. Ivana Tucaković

Zagreb, 2026.



University of Zagreb
FACULTY OF SCIENCE

Tomislav Ilievski

**DEVELOPMENT OF RADIOANALYTICAL
METHODS FOR THE DETERMINATION OF
LOW LEVEL
RADIONUCLIDE ACTIVITIES IN FOOD AND
SOIL**

DOCTORAL DISSERTATION

Supervisor:
Dr. Ivana Tucaković

Zagreb, 2026.

Zahvale

Posebno se zahvaljujem mentorici dr. sc. Ivani Tucaković na prenesom znanju, podršci i vodstvu prilikom protekle četiri godine. Zahvaljujem joj i na izdvojenom vremenu i na tome što me upoznala s zanimljivim područjem radioekologije.

Također, zahvaljujem se svim članovima Laboratorija za radioekologiju, trenutnim i bivšim, na ugodnoj radnoj atmosferi i istraživačkom duhu koji stvaraju.

Zahvaljujem se svima koji su doprinjeli prijedlozima, komentarima i recenzijama ovom radu.

I na kraju, hvala mojoj obitelji i prijateljima na podršci tokom protekle četiri godine i ranije.

Sadržaj

Sadržaj.....	vii
SAŽETAK.....	XIII
ABSTRACT	XV
§ 1. UVOD.....	1
§ 2. LITERATURNI PREGLED	3
2.1. Teorijska osnovica.....	3
2.1.1. Alfa raspad.....	3
2.1.2. Beta raspadi	5
2.1.3. Gama i rendgensko zračenje.....	7
2.1.4. Kinetika radioaktivnog raspada.....	8
2.1.5. Međudjelovanje elektromagnetskog zračenja visoke energije s tvarima	14
2.1.6. Metode multivarijatne analize.....	18
2.2. Okolišni radionuklidi.....	22
2.2.1. Primordijalni i radiogeni radionuklidi	23
2.2.2. Kozmičko zračenje i kozmogeni radionuklidi	25
2.2.3. Sustav za redukciju kozmičke pozadine antikoincidenzijskom spregom detektora	25
2.2.4. Antropogeni radionuklidi.....	27
2.2.5. Migracija ¹³⁷ Cs kroz tlo.....	27
2.2.6. Faktori prijenosa (TF) radionuklida iz tla u biljku.....	29
2.3. Metode detekcije ionizirajućeg zračenja.....	30
2.3.1. Poluvodički detektori	30
2.3.2. Poluvodički detektori za gama spektrometriju.....	33
2.3.3. Poluvodički detektori za alfa spektrometriju	34
2.3.4. Usporedba poluvodičkih detektora za alfa i gama spektrometriju	36
2.3.5. Scintilacijski detektori.....	37
2.4. Radiokemijska odjeljivanje radionuklida	39
2.5. Doze ionizirajućeg zračenja	41
§ 3. EKSPERIMENTALNI DIO	43
3.1. Uzorci i uzorkovanje.....	43
3.1.1. Komercijalna dječja hrana	43
3.1.2. Poljoprivredne kulture i tla OPG Hrvatske	44
3.2. Priprema uzoraka za analize.....	47

3.2.1. Predpriprema	47
3.2.2. Priprema uzoraka za gama spektrometriju.....	47
3.2.3. Priprema uzoraka za alfa spektrometriju ^{210}Po	48
3.2.4. Priprema uzoraka za alfa spektrometriju izotopa torija.....	48
3.2.5. Priprema uzoraka za analizu ^{90}Sr metodom tekućinskog scintilacijskog brojenja	49
3.2.6. Priprema uzoraka za eksperimente automatiziranog odjeljivanja	49
3.3. Radioanalitičke metode	51
3.3.1. Alfa spektrometrija.....	51
3.3.2. Tekućinsko scintilacijsko brojenje	51
3.3.3. Gama spektrometrija.....	51
3.4. Unaprijeđenje gama-spektrometrijskog sustava antikoincidenzijskom spregom sa scintilacijskim detektorima	55
3.4.1. Početni gama-spektrometrijski mjerni postav.....	55
3.4.2. Geometrijska optimizacija aktivnog štita.....	55
3.4.3. Optimizacija parametara za antikoincidenzijska mjerenja	56
3.4.4. Prilagodba za rutinska mjerenja.....	56
3.5. Automatizirano sekvencijalno odjeljivanje radionuklida iz tekuće faze	57
3.5.1. Sastavni dijelovi sustava za automatizirano odjeljivanje radionuklida.....	57
3.5.2. Spajanje sastavnih dijelova u sustav.....	60
3.5.3. Odjeljivanja radionuklida iz modelnih otopina, referentnih materijala i vegetacije.....	61
3.6. Izračun godišnje ingestijske doze ionizirajućeg zračenja.....	62
3.7. Analiza glavnih komponenata i analiza paralelnih faktora specifičnih aktivnosti radionuklida u tlima Hrvatske.....	63
§ 4. REZULTATI I RASPRAVA	65
4.1. Specifične aktivnosti radionuklida u uzorcima tla Hrvatske	65
4.1.1. Specifične aktivnosti u sloju prijenosa radionuklida u biljku	65
4.1.2. Rezultati analize glavnih komponenata (PCA) specifičnih aktivnosti radionuklida u tlima Hrvatske	67
4.1.3. Analiza paralelnih faktora (PARAFAC) specifičnih aktivnosti radionuklida u tlima Hrvatske ..	71
4.2. Unaprijeđenje gama-spektrometrijskog sustava.....	74
4.2.1. Optimalna geometrija mjernog postava.....	74
4.2.2. Optimalni energijski prag	76
4.2.3. Optimalni vremenski prozor aktivnog štita	77
4.2.4. Redukcija pozadinskog doprinosa i granica detekcije.....	78
4.3. Specifične aktivnosti radionuklida u uzorcima poljoprivrednih kultura i transfer radionuklida	80
4.4. Specifične aktivnosti radionuklida u uzorcima dječje hrane	87

4.5. Ingestijske doze populacija Hrvatske.....	91
4.6. Sastavljanje uređaja za automatizirano odjeljivanje i razvitak metode odjeljivanja Pb, Sr, Ra, Ba	95
4.6.1. Preliminarna ručna odjeljivanja.....	95
4.6.2. Odjeljivanja modelnih otopina.....	97
4.6.3. Odjeljivanja elemenata iz referentnih materijala	98
4.6.4. Odjeljivanja elemenata iz poljoprivrednih kultura	98
§ 5. ZAKLJUČCI.....	104
§ 6. POPIS OZNAKA, KRATICÂ I SIMBOLÂ.....	107
§ 7. LITERATURNI IZVORI.....	109
§ 8. DODATAK	XVII
8.1. Uzorci i uzorkovanje.....	xvii
8.1.1. Tablica D1 Legenda oznaka korištenih za označavanje uzoraka.	xvii
8.1.2. Tablica D2. Kratice oznaka lokacija i GPS koordinate mjesta u kojem je OPG registriran.	xviii
8.2. Specifične aktivnosti, faktori prijenosa te granice detekcije.....	xix
ciljanih radionuklida u pojedinim uzorcima	xix
8.2.1. Tablica D3. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u tlima Hrvatske.	xix
8.2.2. Tablica D4. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u gomoljima.....	xxvii
8.2.3. Tablica D5. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u korama gomolja.	xxviii
8.2.4. Tablica D6. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u korijenastom povrću.	xxix
8.2.5. Tablica D7. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u lisnatom povrću.	xxx
8.2.6. Tablica D8. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u plodovitom povrću.....	xxxi
8.2.7. Tablica D9. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u korama plodovitog povrća.	xxxii
8.2.8. Tablica D10. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u voću.	xxxiii
8.2.9. Tablica D11. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u orašastim plodovima, žitaricama i bilju.....	xxxiv
8.3. Faktori prijenosa pojedinih uzoraka poljoprivrednih kultura.....	xxxv
8.3.1. Tablica D12. Faktori prijenosa i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida iz tla u gomolje.....	xxxv
8.3.2. Tablica D13. Faktori prijenosa i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida iz tla u kore gomolja.	xxxvi

8.3.3. <i>Tablica D14. Faktori prijenosa i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida iz tla u korijenasto povrće.</i>	xxxvii
8.3.4. <i>Tablica D16. Faktori prijenosa i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida iz tla u plodovito povrće.</i>	xxxix
8.3.5. <i>Tablica D17. Faktori prijenosa i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida iz tla u kore plodovitog povrća.</i>	xl
8.3.6. <i>Tablica D18. Faktori prijenosa i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida iz tla u voće.</i>	xli
8.3.7. <i>Tablica D19. Faktori prijenosa i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida iz tla u orašaste plodove, žitarice i bilje.</i>	xlii
8.4. Granice detekcije ciljanih gama emitera nakon nadogradnje gama-spektrometrijskog sustava aktivnim štitom	xliii
8.4.1. <i>Tablica D20. Granice detekcije ciljanih gama emitera nakon nadogradnje gama-spektrometrijskog sustava aktivnim štitom.</i>	xliii
8.5. Opis Python skripta i sučelja sustava za automatizirano sekvencijalno odjeljivanje radionuklida	xlvi
§ 9. ŽIVOTOPIS	LIII



Sveučilište u Zagrebu
Prirodoslovno-matematički fakultet
Kemijski odsjek

Doktorska disertacija

SAŽETAK

RAZVOJ RADIOANALITIČKIH METODA ZA ODREĐIVANJE NISKIH RAZINA AKTIVNOSTI RADIONUKLIDA U HRANI I TLU

Tomislav Ilievski

Laboratorij za radioekologiju, Institut Ruđer Bošković, Bijenička cesta 54, Zagreb

Cilj ovog doktorskog rada bio je razvitak novih metoda za određivanje niskih aktivnosti radionuklida u hrani i tlima Hrvatske te izračun godišnjih ingestijskih doza ionizirajućeg zračenja za populaciju Hrvatske. Postojeći gama-spektrometrijski sustav nadograđen je aktivnim štitom za redukciju utjecaja kozmičkog zračenja te su provedena mjerenja radioaktivnosti prirodnih (^{40}K , ^{210}Pb , ^{226}Ra , ^{232}Th) i antropogenih (^{137}Cs) gama emitera u hrani i tlima Hrvatske nadograđenim sustavom. Razvijen je sustav i metoda za automatizirano odjeljivanje elemenata iz matrica okolišnih uzoraka. Uz rezultate dobivene novorazvijenim metodama, korišteni su i podaci alfa-spektrometrijskih analiza ^{210}Po , ^{228}Th , ^{230}Th i ^{232}Th te rezultati analize ^{90}Sr tekućinskim scintilacijskim brojenjem u svrhu izračuna ingestijskih doza ionizirajućeg zračenja. Izračunate doze za novorođenčad, jednogodišnjake, desetogodišnjake te odrasle su ispod preporučene maksimalne vrijednosti od 1 mSv godišnje. Također su izračunati faktori prijenosa radionuklida iz tla u biljke te je provedena multivarijatna analiza distribucije radionuklida u tlima Hrvatske.

(123 + LV stranica, 36 + 3 slike, 20 + 21 tablica, 121 literaturni navod, jezik izvornika: hrvatski)

Rad je pohranjen u Središnjoj kemijskoj knjižnici, Horvatovac 102a, Zagreb i Nacionalnoj i sveučilišnoj knjižnici, Hrvatske bratske zajednice 4, Zagreb.

Ključne riječi: alfa spektrometrija / automatizacija / faktori prijenosa / gama spektrometrija / ingestijska doza / radioaktivnost / tekućinsko scintilacijsko brojenje

Mentorica: dr. sc. Ivana Tucaković, v. zn. sur.

Rad prihvaćen: 3. prosinca 2025.

Ocjenitelji:

1. prof. dr. sc. Sanda Rončević
2. prof. dr. sc. Tomica Hrenar
3. dr. sc. Željka Knežević Medija, v. zn. sur.



University of Zagreb
Faculty of Science
Department of Chemistry

Doctoral Thesis

ABSTRACT

DEVELOPMENT OF RADIOANALYTICAL METHODS FOR THE DETERMINATION OF LOW LEVEL RADIONUCLIDE ACTIVITIES IN FOOD AND SOIL

Tomislav Ilievski

Laboratory for Radioecology, Ruđer Bošković Institute, Bijenička cesta 54, Zagreb, Croatia

The aim of this doctoral thesis was to develop new methods for determining low activities of radionuclides in food and soils of Croatia and to calculate annual ingestion doses of ionizing radiation to Croatian population. The gamma-spectrometric system was upgraded with an active shield for reduction of cosmic radiation and measurements of natural and anthropogenic gamma emitters in food and soils were performed with the upgraded system. A novel system and method for automatic separation of elements from environmental sample matrices were developed. Along with results obtained by the developed methods, data from alpha-spectrometric analyses of ^{210}Po and $^{228,230,232}\text{Th}$, and the results of ^{90}Sr analysis by liquid scintillation counting were used to calculate ingestion doses. Calculated doses for infants, one-year-olds, ten-year-olds and adults are below the recommended maximum of 1 mSv a^{-1} . Radionuclide soil-to-plant transfer factors were also determined, and a multivariate analysis of the distribution of radionuclides in soils of Croatia was carried out.

(123 + LV pages, 36 + 3 figures, 20 + 21 tables, 121 references, original in Croatian)

Thesis deposited in Central Chemical Library, Horvatovac 102A, Zagreb, Croatia and National and University Library, Hrvatske bratske zajednice 4, Zagreb, Croatia.

Keywords: alpha spectrometry / automation / gamma spectrometry / ingestion dose / liquid scintillation counting / radioactivity / transfer factors

Supervisor: Dr. Ivana Tucaković, Senior Research Associate

Thesis accepted: 3th December 2025

Reviewers :

Dr. Sanda Rončević, Professor

Dr. Tomica Hrenar, Professor

Dr. Željka Knežević Medija, Senior Research Associate

§ 1. UVOD

Nekoliko je izvora radionuklida u okolišu: 1. prirodni primordijalni radionuklidi – ^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th te njihovi potomci i ^{40}K najznačajni su predstavnici ove skupine, prisutni od postanka Zemlje, 2. prirodni kozmogeni radionuklidi – konstantno nastaju u atmosferi djelovanjem kozmičkog zračenja, neki značajni su ^3H , ^{14}C , ^7Be , ^{10}Be , itd., 3. antropogeni radionuklidi koji mogu biti produkti fisije iz nuklearnih elektrana i oružja poput ^{90}Sr , ^{137}Cs ili nastali u nuklearnim reaktorima i akceleratorima čestica koji se koriste u medicinske (dijagnostika i terapija) i industrijske svrhe poput ^{60}Co .^{1,2} Radionuklidi zbog pasivnog transporta tvari iz tla kroz korijenski sustav te zbog svoje sličnosti s biogenim elementima dospijevaju u biljku. Količina radionuklida koja se prenese ovisi o vrsti biljke, karakteristikama tla poput vrijednosti pH, električne provodljivosti, sadržaja gline i organske tvari, itd. te ostalim okolišnim uvjetima. U svrhu kvantifikacije prijenosa radionuklida iz tla u biljku definiran je parametar faktor prijenosa (engl. transfer factor, TF), omjer specifične aktivnosti radionuklida u suhoj tvari biljke i tlu iz kojeg je biljka izrasla. Faktori prijenosa obično se određuju za skupine srodnih biljaka, literaturni podaci su rijetki, često variraju i za po nekoliko redova veličine. Stoga procjene radiološkog rizika nekog tla za uzgoj biljke bazirane na jednostavnom omjeru aktivnosti mogu poslužiti za probirnu procjenu, međutim za predviđanje stvarnog prijenosa nisu adekvatne.³

Praćenje specifične aktivnosti radionuklida u okolišu započinje nakon atmosferskih testiranja nuklearnog oružja u 50-im i 60-im godinama prošlog stoljeća. Intenzivnije praćenje kreće nakon nesreće u Černobilu 1986. kada je ispuštena velika količina ^{137}Cs , ^{90}Sr i drugih radionuklida na malom prostoru odjednom.⁴ Zbog toga i njihovog relativno dugačkog vremena poluraspada, koje je za navedena oba radionuklida oko 30 godina, ^{137}Cs i ^{90}Sr globalno su prisutni kontaminanti u okolišu i hrani, s mjerljivim specifičnim aktivnostima,^{5–8} pa tako i u Hrvatskoj,^{9–15} gdje se sukladno europskim zakonima prate specifične aktivnosti radionuklida u okolišu, osobito ^{90}Sr te antropogeni i prirodni gama emiteri.

Izračuni godišnjih ingestijskih doza ionizirajućeg zračenja provedeni u drugim europskim državama sa sličnim specifičnim aktivnostima radionuklida u tlu i sličnim izborom namirnica konzumenata, pokazali su da glavni doprinos dozi potječe od prirodnih primordijalnih radionuklida: ^{40}K , ^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra i ^{228}Th .^{16–22} Od navedenih radionuklida samo se niske specifične aktivnosti ^{40}K mogu mjeriti pouzdano i direktno gama-

spektrometrijski, kako je propisano uredbom.¹⁵ Granice detekcije ^{210}Pb te potomaka ^{226}Ra , ^{228}Ra i ^{228}Th , koji se određuju indirektno, često su previsoke pri mjerenjima uobičajnim mjernim sustavima da bi se odredile specifične aktivnosti tih radionuklida u hrani.

Stoga je cilj ovog doktorskog rada razvitak novih metoda za određivanje niskih aktivnosti radionuklida u hrani i tlima Hrvatske te izračun godišnjih ingestijskih doza ionizirajućeg zračenja za populaciju Hrvatske.

Hipoteze ovog rada pretpostavljaju da su poljoprivredne kulture obiteljskih poljoprivrednih gospodarstava (OPG) Hrvatske i komercijalno dostupna dječja hrana radiološki sigurne. Također se pretpostavlja da će se nadogradnjom postojećeg visoko čistog germanijevog (*engl. high purity germanium (detector)*, **HPGe**) detektorskog sustava postići dovoljno niske granice detekcije gama emitera u hrani za vjerodostojnu procjenu ingestijske doze i provjeru radiološke sigurnosti hrane te da će se sekvencijalnim odijeljivanjem radionuklida metodom ekstrakcije na čvrstoj fazi (*engl. solid phase extraction*, **SPE**) i automatizacijom procesa ubrzati priprema većeg broja uzoraka za radiometrijska mjerenja.

Budući da su novorođenčad i mala djeca najosjetljivije dobne skupine na ionizirajuće zračenje, fokus rada je na hrani koju konzumiraju djeca.^{23–25} Stoga je jedna skupina analiziranih uzoraka komercijalno dostupna dječja hrana iz hrvatskih dućana, u drugu skupinu pripadaju poljoprivredne kulture s obiteljskih poljoprivrednih gospodarstava Hrvatske, posebice one koje se tradicionalno koriste za pripremu domaće dječje hrane, dok u treću skupinu uzoraka spadaju tla na kojima su poljoprivredne kulture uzgajane, kako bi se izračunali i istražili faktori prijenosa. Gama spektrometrija je unaprijeđena uvođenjem aktivnog štita, čime su snižene granice detekcije radionuklida gama emitera. Također su razvijene automatizirane metode odjeljivanja radionuklida iz matrica okolišnih uzoraka pomoću ekstrakcije na čvrstoj fazi. Odjeljivanja radionuklida iz matrica okolišnih uzoraka su nužna za alfa- i beta-spektrometrijska mjerenja, a vremenski su zahtjevnije za analitičare. Automatizacija omogućava pripremu većeg broja uzoraka uz minimiziranje laboratorijskog rada analitičara. Dobiveni podaci analizirani su multivarijatnim statističkim metodama, kako bi se dobio uvid u potencijalno skrivenu strukturu podataka i obrasce unutar te strukture te su upotrebljeni za procjenu godišnje ingestijske doze ionizirajućeg zračenja četiri dobne skupine Hrvatske: dojenčad, jednogodišnjake, desetogodišnjake te odrasle.

§ 2. LITERATURNI PREGLED

2.1. Teorijska osnovica

Radioaktivnost je spontan, nasumičan raspad nestabilnih atomskih jezgara, radionuklida. Produkti raspada su novi nuklidi, često i sami nestabilni, i manje čestice, čiji je zbroj masa manji od mase radionuklida koji se raspada, to jest razlika mase je pretvorena u energiju. Tri osnovne vrste raspada su alfa raspad, beta negativni raspad te beta pozitivni raspad. Prilikom svakog raspada oslobađa se energija emisijom ionizirajućeg zračenja. Ionizirajuće zračenje dijeli se u dvije glavne skupine, čestično i elektromagnetsko zračenje. Glavne vrste čestičnog zračenja čine alfa, beta i neutronska zračenja, a elektromagnetskog gama i rendgensko zračenje. Ionizirajuće zračenje uzrokuje ionizaciju molekula i atoma u tvarima, pa tako prilikom izlaganja živih organizama ionizirajućem zračenju dolazi do ionizacije unutar stanica, može doći i do nepopravljive štete te naposljetku i do smrti stanica, tkiva ili cijelih organizama. Osnovna mjerna jedinica SI sustava za (radio)aktivnost je Becquerel, kratice Bq, a jednaka je broju raspada jezgri u nekom uzorku tijekom jedne sekunde. Aktivnost radionuklida u realnim uzorcima često se izražava izvedenim intenzivnim veličinama, poput specifične aktivnosti, to jest aktivnosti po masi uzorka. Aktivnosti radionuklida u nekom uzorku ovisi o broju radionuklida i njihovoj stabilnosti, koja se izražava vremenom poluraspada, $t_{1/2}$. To je vrijeme potrebno da se raspadne pola jezgara nekog radionuklida u promatranom uzorku. Vrijeme poluraspada je intenzivna veličina i jedinstveno karakterizira svaki radionuklid.¹

2.1.1. Alfa raspad

Alfa raspad je nuklearni proces prilikom kojega atomska jezgra roditelj emitira alfa česticu. Alfa čestica je jezgra atoma helija, sačinjena od dva protona i dva neutrona. Alfa raspadu pretežito podliježu teške jezgre atomskog broja većeg od 72. Jednažba nuklearne reakcije alfa raspada glasi:



gdje je R jezgra roditelj, atomskog broja Z i masenog broja A, P je jezgra potomak, atomskog broja Z-2 i masenog broja A-4, α je alfa čestica atomskog broja 2 i masenog broja 4, a Q_α je ukupna energija alfa raspada, koja je jednaka zbroju kinetičke energije alfa čestice, kinetičke energije jezgre potomka i energije gama zračenja, do čije emisije može ali ne mora doći:

$$Q_\alpha = E_\alpha + E_{pot} + E_\gamma \quad (2.1.2)$$

Energija i masa su očuvani prilikom procesa, to jest razlika u masi jezgre roditelja i zbroja masa alfa čestice i jezgre potomka odgovara oslobođenoj energiji prilikom raspada:

$$Q_\alpha = [m({}^A_ZR) - m({}^{A-4}_{Z-2}P + \alpha)]c^2 \quad (2.1.3)$$

gdje je m masa, a c brzina svjetlosti u vakuumu. Zbog očuvanja količine gibanja, kinetička energija raspada podijeljena je između jezgre potomka i alfa čestice egzaktno te vrijedi:

$$\frac{E_\alpha}{E_{pot}} = \frac{m_{pot}}{m_\alpha} \quad (2.1.4)$$

odnosno, alfa čestice odnose većinu kinetičke energije alfa raspada te su diskretnih energija. Nakon raspada, jezgra potomak može biti u pobuđenom stanju iz kojega se relaksira emisijom elektromagnetskog, to jest gama zračenja. Prilikom alfa raspada nekih nuklida može doći do emisije različitih alfa čestica, svaka s različitom vjerojatnošću pojavnosti, i s jezgrama potomcima u različitim pobuđenim stanjima. Posljedično tome, alfa raspad nekog radionuklida može rezultirati s više alfa čestica diskretnih energija i s više gama zraka također diskretnih energija. Opažena je negativna korelacija između energije alfa raspada i vremena poluraspada roditelja.²⁶ Za izdvajanje iz jezgre roditelja, alfa čestica mora savladati energijsku barijeru tuneliranjem, pri čemu se radi o Coulombovoj barijeri jezgre. Budući da alfa čestice raspada viših energija tuneliraju kroz relativno nižu energijsku barijeru, veća je vjerojatnost tuneliranja i raspada pa je samim time vrijeme poluraspada radionuklida koji emitiraju alfa čestice visoke energije manje.¹

Nakon izdvajanja alfa čestica gubi kinetičku energiju međudjelovanjem s tvarima. Zbog dvostrukog elementarnog naboja te relativno velike mase i veličine, alfa čestica, naspram drugih vrsta ionizirajućeg zračenja, ima veću mogućnost ionizacije i manju prodornost kroz tvari. Putanje su im kratke i pravocrtne te jednake dužine. Kada alfa čestice dovoljno uspore, uhvate dva elektrona te postaju atomi He. Alfa čestice međudjeluju s elektronima i jezgrama u atomu Coulombovom interakcijom. Prilikom prolaska kroz tvari alfa čestice elektrone izbacuju iz atoma čime nastaju ionski parovi. Broj nastalih ionskih parova i doseg alfa čestice proporcionalni su energiji čestice (također ovise o tvari koju čestice ioniziraju). Rekombinacijom ionskih parova oslobađa se energija alfa čestice. Osnovni princip rada detektora ionizirajućeg zračenja je pretvorba energije zračenja u mjerljivi signal. Tako primjerice alfa čestice u zraku putuju do 10 cm te gube oko 35 eV energije po stvorenom ionskom paru, dok u poluvodičkim kristalima imaju doseg svega nekoliko desetaka μm i gube

2-3 eV energije po stvorenom ionskom paru.¹ Zbog slabe prodornosti kroz tvari, za detekciju alfa čestice metodom alfa spektrometrije, potrebna je kemijska izolacija alfa emitera, nanošenje pročišćenog emitera na nosač te postavljanje u neposrednu blizinu poluvodičkog silicijevog detektora, u vakuumu. Prilikom prolaska pokraj elektrona alfa čestica u nekoj tvari može pobuditi elektrone u viša elektronska stanja, a ne ih potpuno izbaciti iz atoma. Prilikom relaksacije, dolazi do emisije vidljive svjetlosti, što je osnovni princip rada scintilacijskih detektora koji će biti detaljnije opisani u daljnjem tekstu.^{1,27}

2.1.2. Beta raspad

Postoji nekoliko vrsta beta raspada i svima im je zajedničko da se prilikom raspada ne mijenja maseni broj radionuklida, odnosno prilikom raspada dolazi do pretvorbe nukleona iz jednog u drugi. Prilikom beta negativnog raspada, kojemu podliježu jezgre bogate neutronima, unutar jezgre neutron se pretvara u proton i antineutrino, što možemo zapisati jednadžbom nuklearne reakcije:



gdje je n neutron, p^+ proton, β^- beta negativna čestica, a $\bar{\nu}$ je antineutrino. Beta negativna čestica je elektron, dok je antineutrino subatomska čestica bez električnoga naboja, vrlo male mase, koji se giba brzinom bliskoj brzini svjetlosti. Jednadžba beta negativnog raspada glasi:



gdje je R jezgra roditelj, atomskog broja Z i masenog broja A , P je jezgra potomak, atomskog broja $Z+1$ i masenog broja A , a $Q_{\beta-}$ je ukupna energija beta negativnog raspada koja je jednaka zbroju energije gama zračenja (ukoliko se emitira) te kinetičkih energija beta čestice, jezgre potomka i antineutrina. Zbog očuvanja količine gibanja, kinetička energija raspada je raspodijeljena recipročno prema masi. Praktično svu energiju raspada odnose beta negativna čestica i antineutrino, koji ju dijele u različitim omjerima. Beta negativne čestice nemaju diskretne energije već spektar energija s maksimalnom energijom $E_{\beta-max}$. Posljedično tome, kako bi se razlučio doprinos spektru različitih beta emitera iz uzorka te odredila aktivnost pojedinog radionuklida, potrebno je kemijsko odvajanje beta emitera iz matrice uzorka za mjerenje aktivnosti tog beta emitera. Kao i u slučaju alfa raspada, prilikom beta negativnog raspada može doći do nastajanja jezgre potomka u više pobuđenih stanja što rezultira emisijom različitih gama zraka.²⁸

Prilikom beta pozitivnog raspada, kojemu podliježu jezgre bogate protonima, unutar jezgre proton se pretvara u neutron i neutrino, što se zapisuje jednažbom nuklearne reakcije:

$$p^+ \rightarrow n + \beta^+ + \nu \quad (2.1.7)$$

gdje je β^+ beta pozitivna čestica, a ν je neutrino. Beta pozitivna čestica je pozitron, anti čestica elektrona, jednake mase kao elektron i pozitivnog elementarnog naboja, dok je neutrino subatomska čestica bez električnoga naboja, vrlo male mase, koji se giba brzinom bliskoj brzini svjetlosti, pandan antineutrina. Jednažba beta pozitivnog raspada glasi:

$${}_Z^A R \rightarrow {}_{Z-1}^A P + \beta^+ + \nu + Q_{\beta^+} \quad (2.1.8)$$

gdje je R jezgra roditelj, atomskog broja Z i masenog broja A, P je jezgra potomak, atomskog broja Z-1 i masenog broja A, ν je neutrino, a Q_{β^+} je analogno alfa i beta negativnom raspadu ukupna energija raspada, zbroj kinetičkih energija i gama zračenja koje se može emitirati. Podjela energije raspada je analogna kao u slučaju beta negativnog raspada te i beta pozitivne čestice imaju spektar energija s maksimumom, E_{β^+max} . Nakon što se beta pozitivna čestica zaustavi, međudjeluje sa svojom anti česticom, elektronom, dolazi do anihilacije te obje čestice nestaju i dolazi do emisije dvije gama zrake u suprotnim smjerovima, zbog očuvanja količine gibanja, svaka energije jednake masi elektrona, 511 keV. Zbroj tih energija, 1022 keV, zapravo je minimalna energija raspada koju neki radionuklid mora imati da bi se raspao beta pozitivnim raspadom, to jest minimalna razlika u masi između čestica produkata i jezgre roditelja mora biti barem dvostruka masa elektrona. Prilikom beta pozitivnog raspada može doći do nastajanja jezgre potomka u više pobuđenih stanja što rezultira emisijom različitih gama zraka.²⁸

Radionuklidi bogati protonima čija je energija raspada niža od 1022 keV podliježu elektronskom uhvatu. U tom procesu umjesto pretvorbe protona u neutron, beta pozitivnu česticu i neutrino, proton hvata elektron iz elektronskog omotača radionuklida te se pretvaraju u neutron i neutrino. Najčešće dolazi do uhvata elektrona K ljuske (valna funkcija jezgre i elektrona K ljuske se najviše preklapaju), pa se ovaj raspad naziva i K uhvat. Porastom energije raspada raste i vjerojatnost uhvata elektrona iz jezgri udaljenije ljuske. Jednažba te nuklearne reakcije glasi:

$$p^+ + e^- \rightarrow n + \nu \quad (2.1.9)$$

Elektronski uhvat može se smatrati procesom suprotnom od beta negativnog raspada opisanog jednažbom (2.1.6) te glasi:

$${}_Z^A R + e^- \rightarrow {}_{Z-1}^A P + \nu + Q_{EC} \quad (2.1.10)$$

gdje je R jezgra roditelj, atomskog broja Z i masenog broja A, P je jezgra potomak, atomskog broja $Z-1$ i masenog broja A, e^- je uhvaćeni elektron, ν je neutrino, najčešće K ljuske, a Q_{EC} ukupna energija raspada. Kao i u prethodnim slučajevima, jezgra potomak može nastati u više stanja što rezultira emisijom gama zračenja. Prilikom uhvata u elektronskom omotaču nastaje prazna orbitala u K ljusci. Prilikom popunjavanja te orbitale elektronima iz viših orbitala, oslobađa se energija emisijom fotona, odnosno rendgenskih zraka, ili dolazi do daljnje ionizacije i oslobađanja slabo vezanih elektrona. Taj fenomen zove se Augerov efekt, a oslobođeni elektroni, koji su diskretnih energija, Augerovi elektroni. Elektronski uhvat kompetitivni je proces beta pozitivnom raspadu te se radionuklidi bogati protonima s energijom raspada višom od 1022 keV raspadaju na oba načina u omjerima statistički određenima zbog razlika energija raspada pojedinih načina raspada. Kao u svim razmatranim raspadima, prilikom uhvata elektrona može doći do nastajanja jezgre potomka u više pobuđenih stanja što rezultira emisijom različitih gama zraka.²⁸

Sve čestice koje nastaju beta raspadima, beta pozitivne i negativne čestice te Augerovi elektroni, imaju jednaku masu, 5×10^{-4} u, koja je značajno manja od mase alfa čestice (2 jezgre helija) te imaju istu apsolutnu vrijednost naboja jednaku elementarnom naboju. Također međudjeluju s tvarima Coulombovom interakcijom te odziv detektora prouzročen od beta pozitivne, beta negativne čestice ili Augerovog elektrona ne možemo razlikovati. Budući da su puno manje i jednostruko nabijene za razliku od alfa čestice, vjerojatnost međudjelovanja s tvarima Coulombovim interakcijama im je puno manja. Stoga im je i ionizacijska moć manja ali im je prodornost veća. Kao i alfa čestice, također uz ionizaciju uzrokuju elektronsku pobudu praćenu emisijom vidljive svjetlosti, scintilaciju.^{1,27}

2.1.3. Gama i rendgensko zračenje

Gama i rendgensko zračenje su ionizirajuća zračenja koja pripadaju spektru elektromagnetskog zračenja visokih energija. Rendgenske zrake obuhvaćaju približni energijski raspon od 1 keV do 100 keV, dok je raspon energija gama zračenja od 10 keV do 100 MeV. Razlikuju se po podrijetlu. Gama zračenje nastaje prilikom procesa u atomskoj jezgri, dok je rendgensko zračenje rezultat procesa u elektronskom omotaču.^{1,28}

Analogno atomima i molekulama unutar kojih su elektroni u određenim energijskim razinama zbog različitih elektronskih, vibracijskih i rotacijskih stanja, protoni i neutroni unutar atomske jezgre također su u određenim energijskim razinama zbog različitih nukleonskih, vibracijskih i rotacijskih stanja. Prilikom pobude jednog ili više protona ili neutrona jezgra je u

pobuđenom stanju. Relaksacijom u osnovno stanje dolazi do emisije elektromagnetskog, gama zračenja. Stanja različitih energijskih razina imaju različite raspodjele naboja unutar jezgre te vjerojatnost prijelaza iz jednog stanja u drugo ovisi o električnim i magnetnim svojstvima stanja te energijskoj razlici stanja. Većina gama prijelaza dogodi se unutar 10^{-12} sekundi, međutim postoje i procesi koji su dovoljno spori da se izmjeri vrijeme njihova trajanja. Pobuđena stanja iz kojih se takvi spori procesu odvijaju zovu se izomerna ili metastabilna pobuđena stanja i često se u dijagramima označavaju kao zasebni radionuklidi dodatkom oznake m iza masenog broja. Uz izomerni prijelaz, takva stanja podložna su daljnjem radioaktivnom raspadu. Primjer izomernog stanja je radiokativni izotop protaktinija, ^{234m}Pa koji nastaje beta raspadom ^{234}Th , ima vrijeme poluraspada 1,159 minuta te se raspada beta negativnim raspadom s vjerojatnošću 99,85 % ^{234}U , dok mu je vjerojatnost izomernog prijelaza u ^{234}Pa tek 0,15 % [ref. 29]. Pobuđena nuklearna stanja također se mogu relaksirati unutarnjom pretvorbom te jako rijetko tvorbom parova. Prilikom unutarnje pretvorbe energija se predaje elektronu elektronskog omotača, dolazi do ionizacije te kao u elektronskom zahvatu dolazi do emisije rendgenskih zraka i Augerovih elektrona.^{1,28}

Sve nabijene čestice prilikom Coulombovog međudjelovanja s električnim poljem usporavaju te emitiraju elektromagnetsko zračenje, zakočno zračenje, pa tako i čestice produkti radioaktivnih raspada prilikom propagacije kroz tvari. Zbog svoje prirode (masa i naboj) alfa čestice su pod manjim utjecajem električnog polja jezgara te većinu kinetičke energije gube ionizacijom. No, prilikom emisije beta čestica i Augerovih elektrona opisan efekt je značajan način disipacije kinetičke energije te je emisija praćena emisijom kontinuiranog spektra elektromagnetskog zračenja, to jest rendgenskog zračenja, maksimalne energije jednake maksimalnoj energiji beta čestice, odnosno Augerova elektrona.^{1,27,28}

2.1.4. Kinetika radioaktivnog raspada

Radioaktivni raspad je nasumičan proces. Vjerojatnost raspada nekog radionuklida nije funkcija vremena niti okoline radionuklida te je jednaka za sve istovjetne radionuklide. Unutar uzorka koji sadrži N radionuklida nemoguće je predvidjeti koji radionuklid će se raspasti u kojem trenutku, no uočena je statistička priroda broja raspada. U određenom vremenskom intervalu Δt raspast će se određen broj radionuklida ΔN . Aktivnost A radionuklida u uzorku tako je definirana kao trenutni broj raspada, odnosno broj raspada u proteklom vremenu:

$$A = \frac{dN}{dt} \quad (2.1.11)$$

te je proporcionalna broju radionuklida N :

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N \quad (2.1.12)$$

gdje je λ konstanta radioaktivnog raspada, specifična za svaki pojedini radionuklid. Integracijom izraza (2.1.12) u granicama integracije od t_0 do t dobiva se izraz koji opisuje vremensku evoluciju broja neraspadnutih radionuklida:

$$N = N_0 e^{-\lambda t} \quad (2.1.13)$$

gdje je N_0 broj radionuklida u početnom t_0 , a N broj radionuklida nakon proteklog vremena t . Budući da je uobičajeno pratiti aktivnost uzorka, uvrštavanjem izraza (2.1.11) i (2.1.12) u izraz (2.1.13) slijedi vremenska evolucija aktivnosti:

$$A = A_0 e^{-\lambda t} \quad (2.1.14)$$

gdje je A_0 početna aktivnost, a A aktivnost nakon proteklog vremena t . Za karakterizaciju nekog radionuklida uobičajeno je umjesto konstante raspada koristiti vrijeme poluraspada $t_{1/2}$ koje je potrebno da se raspadne polovica broja radionuklida unutar uzorka te je povezano s konstantom radioaktivnog raspada izrazom:

$$t_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\lambda} \quad (2.1.15)$$

koji se dobije uvrštavanjem $A = \frac{1}{2} A_0$ u izraz (2.1.14). Aktivnosti (odnosno sadržaj radionuklida) u uzorku određuje se brojenjem raspada. Raspadi se ovisno o vrsti raspada i detektora bilježe direktno ili posredno kroz događaje međudjelovanja raspadnih produkata i materijala detektora. U rijetkim slučajevima se detektiraju svi raspadi iz uzorka, no detektorom opažena aktivnost R proporcionalna je aktivnosti uzorka A :

$$R = \varepsilon A \quad (2.1.16)$$

gdje je ε efikasnost mjerenja. Opažena aktivnost izražava se događajima (određenih energija) ili impulsima u jedinici vremena, često sekundi ili minuti, odnosno *cps* ili *cpm* (od *engl. counts per second* odnosno *counts per minute*). Efikasnost detektora ovisi o mnogim čimbenicima od kojih su značajni vrsta detektora, geometrija mjernog postava, vrsta i energija zračenja. Izraz (2.1.16) vrijedi ukoliko je vrijeme brojenja t , puno manje nego vrijeme poluraspada radionuklida od interesa, što je slučaj sa svim radionuklidima određivanim unutar ovog rada. Vrijeme poluraspada nekih određivanih radionuklida jest vrlo kratko, svega nekoliko minuta,²⁹ no pri tome se radi o radionuklidima u sekularnoj ravnoteži s radionuklidom roditeljem, o čemu će biti više rečeno u daljnjem tekstu. Neki radionuklidi mogu se raspasti na više potomaka s

različitim vjerojatnostima, odnosno razgranatim raspadom. Primjer takvog slučaja, koji će se pojavljivati u ovom radu, je raspad ^{212}Bi . U 64,07 % slučaja ^{212}Bi se raspada beta negativnim raspadom u ^{212}Po , dok u preostalih 35,93 % slučajeva prelazi u ^{208}Tl alfa raspadom. Svaki mogući način razgranatog raspada je neovisan i karakteriziran svojom konstantom raspada λ_i te vrijedi:

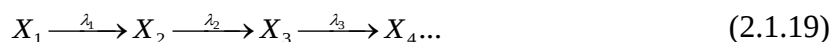
$$\lambda_1 + \lambda_2 + \dots + \lambda_n = \lambda_{\text{tot}} \quad (2.1.17)$$

Za vrijeme poluraspada takvog roditelja vrijedi:

$$t_{1/2} = \ln(2) / \lambda_{\text{tot}} \quad (2.1.18)$$

te će nakon vremena poluraspada udio pojedinih pretvorbi i biti jednak udjelu odgovarajuće konstante raspada λ_i u ukupnoj konstanti raspada λ_{tot} .^{30,31}

Jezgra potomak radioaktivnog raspada u nekim slučajevima je i sama nestabilna te se raspada u daljnje (ne)stabilne jezgre. U slučajevima prirodno pojava teških elemenata poput U ili Th, postoji desetak uzastopnih raspada do nastanka stabilne jezgre:



U uzorcima koji sadrže takve elemente, uz njih su prisutni i radionuklidi drugih elemenata koji iz njih nastaju te konačni stabilni nuklid. Takav skup, koji sadrži radionuklide nastale uzastopnim raspadima iz izvornog radionuklida X_1 , naziva se raspadni niz X_1 . Poznavanje međusobnih odnosa članova raspadnih nizova izuzetno je važno za praćenje aktivnosti članova niza. U posebnim okolnostima, poznavanjem aktivnosti jednog člana niza moguće je izvoditi zaključke o aktivnosti drugih članova niza. Razmotrimo za početak kinetiku prva dva radionuklida nekog raspadnog niza. Neka je $N_{1,0}$ početni broj radionuklida roditelja niza X_1 , $A_{1,0}$ njegova aktivnost, a λ_1 konstanta raspada, dok je $N_{2,0}$ početni broj radionuklida potomka niza X_2 , $A_{2,0}$ njegova aktivnost te λ_2 konstanta raspada. Budući da su raspad X_1 i X_2 međusobno neovisni vrijedi:

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (2.1.20)$$

rješenje te diferencijalne jednačbe glasi:

$$N_2 = \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \right) N_{1,0} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_{2,0} e^{-\lambda_2 t} \quad (2.1.21)$$

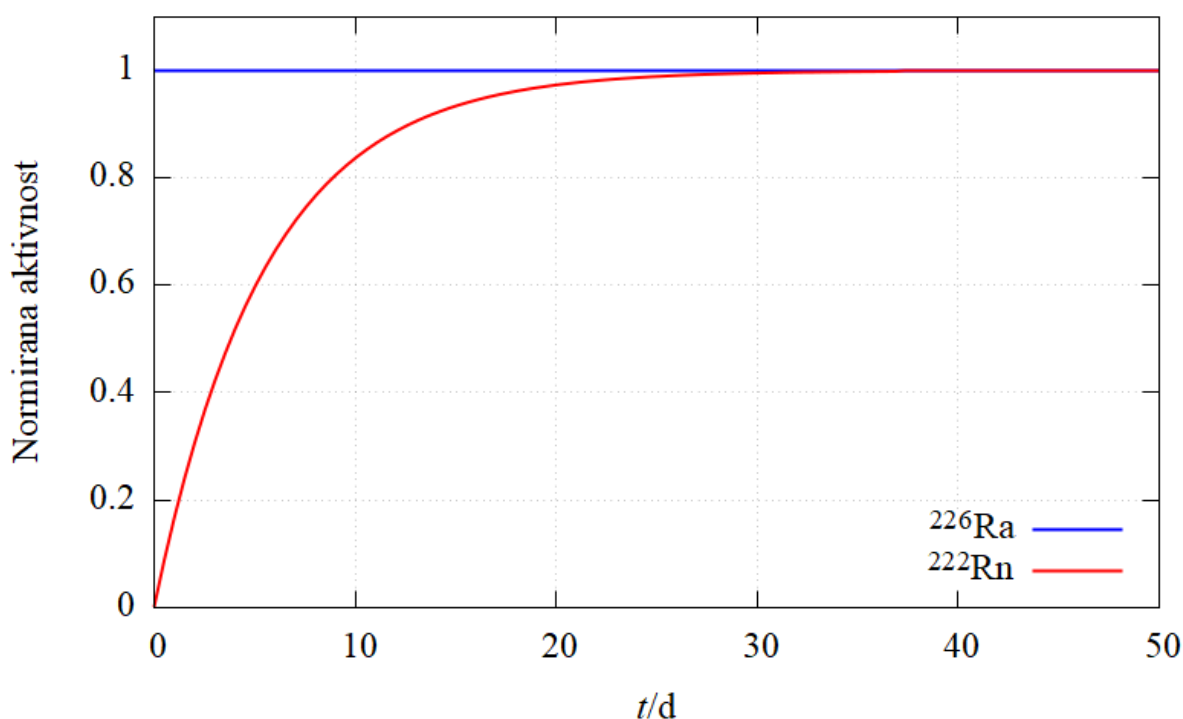
Prvi član s desne strane jednačbe opisuje prirast i raspad X_2 jezgara koje nastaju raspadom iz X_1 . Drugi član opisuje raspad X_2 jezgara prisutnih u trenutku promatranja t_0 . Ukoliko je $\lambda_2 \gg \lambda_1$, odnosno vrijeme poluraspada potomka je puno kraće nego vrijeme poluraspada roditelja te je $N_{2,0} = 0$, izraz (2.1.21) pojednostavljuje se u:

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} N_{1,0} (1 - e^{-\lambda_2 t}) \quad (2.1.22)$$

broj potomka N_2 raste eksponencijalno s konstantom poluraspada λ_2 . Kada vrijeme teži u beskonačnost vrijedi:

$$N_2 \lambda_2 = N_{1,0} \lambda_1 \quad (2.1.23)$$

odnosno aktivnost potomka jednaka je početnoj aktivnosti roditelja. Takav proces naziva se prirast potomka iz roditelja. U zatvorenom sustavu potomak postigne početnu aktivnost roditelja nakon desetak vremena poluraspada potomka te se taj odnos naziva **sekularna ravnoteža**. Nakon uspostave sekularne ravnoteže aktivnost potomka je podržana od roditelja te njegova aktivnost opada s vremenom poluraspada roditelja. Slika 1 prikazuje primjer takvog sustava, prirast ^{222}Rn ($t_{1/2} = 3,8232 \text{ d}$) iz ^{226}Ra ($t_{1/2} = 1600 \text{ a}$).²⁹



Slika 1. Prirast ^{222}Rn iz ^{226}Ra u zatvorenom sustavu. Nakon približno 30 dana sustav je u sekularnoj ravnoteži, aktivnost ^{222}Rn jednaka je početnoj aktivnosti ^{226}Ra , to jest aktivnost ^{222}Rn je podržana aktivnošću ^{226}Ra .

Iako su u prirodi sustavi poput opisanog česti, gdje je vrijeme poluraspada roditelja izrazito dugačko, postoje segmenti raspadnih nizova u kojima je vrijeme poluraspada roditelja duže od vremena poluraspada potomka, no usporedivo s vremenom poluraspada potomka te u tom slučaju izraz (2.1.22) ne vrijedi. Tijekom prirasta aktivnost roditelja značajno opada. U jednom

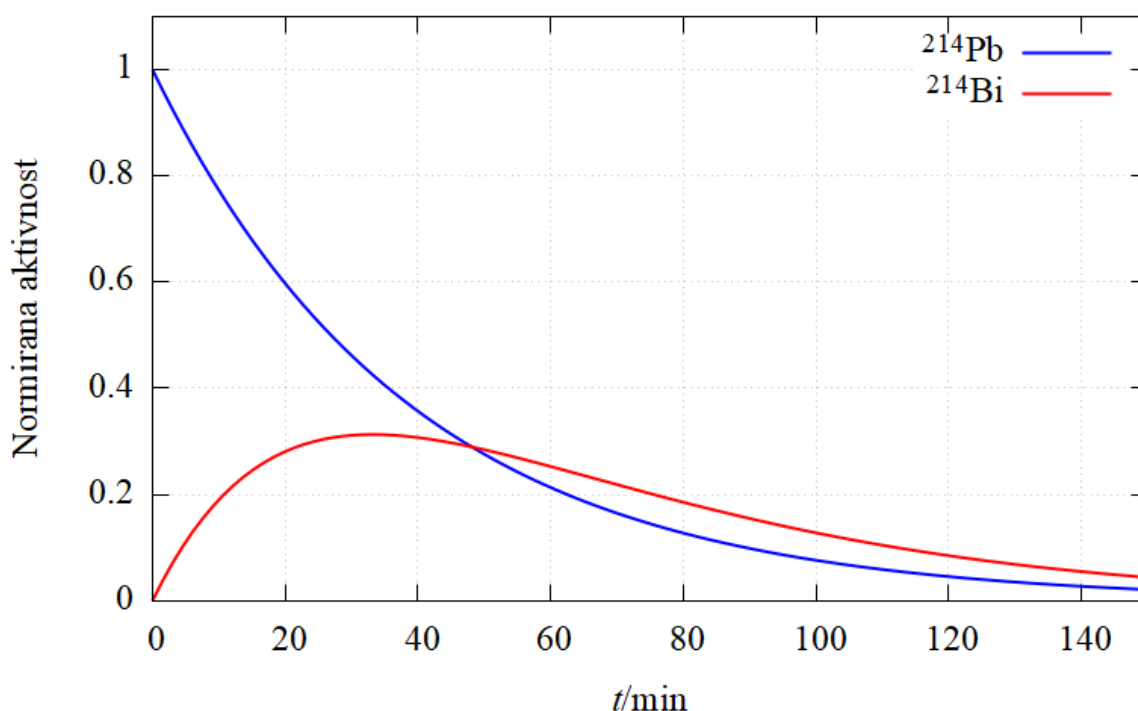
trenutku aktivnost potomka dosegne maksimum te krene padati zajedno s aktivnošću roditelja. Nakon približno pet vremena poluraspada potomka drugi ekponencijalni član u jednadžbi (2.1.21) postaje zanemariv te slijedi:

$$N_2 = \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \right) N_{1,0} (e^{-\lambda_1 t}) = \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \right) N_1 \quad (2.1.24)$$

Sustav je u **prijelaznoj ravnoteži**, aktivnosti potomka i roditelja su u konstantnom omjeru te opadaju. Iz jednadžbe (2.1.24) supstitucijom broja radionuklida i aktivnosti te konstante raspada i vremena poluraspada slijedi:

$$\frac{A_2}{A_1} = \frac{t_{1/2,1}}{t_{1/2,1} - t_{1/2,2}} \quad (2.1.25)$$

Slika 2 prikazuje prirast ^{214}Bi ($t_{1/2} = 19,8 \text{ min}$) iz ^{214}Pb ($t_{1/2} = 26,916 \text{ min}$).²⁹

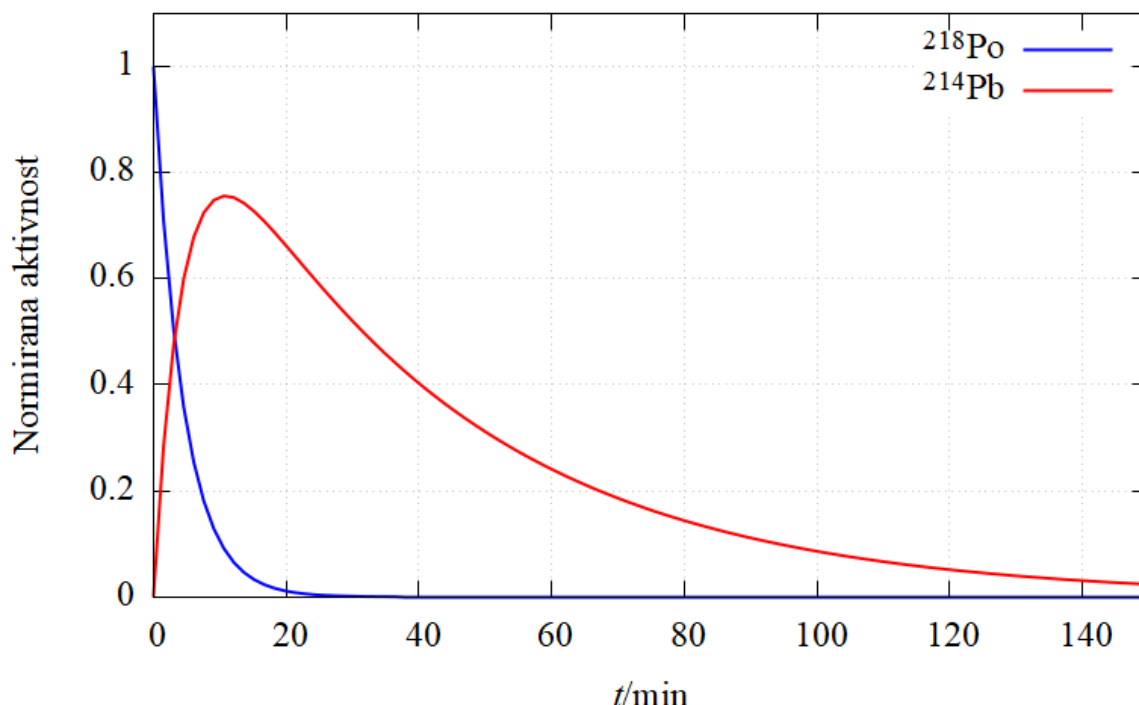


Slika 2. Prirast ^{214}Bi iz ^{214}Pb u zatvorenom sustavu. Nakon 80 minuta sustav je u prijelaznoj ravnoteži, omjer aktivnosti potomka i roditelja dan je s (2.1.25) te se oba radionuklida raspadaju s vremenom poluraspada roditelja ^{214}Pb .

Ako je roditelj kraće živući nego potomak, aktivnost potomka će rasti, dosegnuti maksimum te opadati s vlastitim vremenom poluraspada. Trenutak kada će se postići maksimum aktivnosti može se odrediti iz:

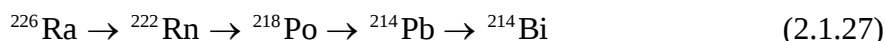
$$t_{\max} = \frac{1}{\lambda_2 - \lambda_1} \ln \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \quad (2.1.26)$$

Slika 3 prikazuje primjer takvog sustava, prirast ^{214}Pb ($t_{1/2} = 26,916$ min) iz ^{218}Po ($t_{1/2} = 3,071$ min).²⁹



Slika 3. Prirast ^{214}Pb iz ^{218}Po u zatvorenom sustavu. Ne postiže se ravnoteža, vrijeme postizanja maksimalne aktivnosti potomka ^{214}Pb dano je s (2.1.26), nakon kojeg se potomak ^{214}Pb raspada svojim vremenom poluraspada.

Iako je sekularna ravnoteža pokazana na primjeru niza 2 raspada, u dužim nizovima također se postiže ravnoteža s roditeljem niza ukoliko imaju vrijeme poluraspada značajno duže od ostalih članova niza. Sljedeći niz zadovoljava taj uvjet:



Ravnoteža se postiže nakon desetak vremena poluraspada sljedećeg najduže živućeg člana ^{222}Rn . Njegovo efektivno vrijeme poluraspada postane jednako vremenu poluraspada ^{226}Ra , postigne se sekularna ravnoteža između ^{222}Rn i ^{218}Po te efektivno vrijeme poluraspada ^{218}Po postane jednako vremenu poluraspada Ra itd. do ^{214}Bi . Ukoliko je sustav zatvoren, svi navedeni radionuklidi prisutni su nakon ravnoteže s aktivnostima i vremenima poluraspada jednakim ^{226}Ra . Navedena činjenica koristi se za određivanje ^{226}Ra gama-spektrometrijski preko određivanja ^{214}Pb i ^{214}Bi . Korištena ishodna jednadžba (2.1.20) specifičan je slučaj sustava

jednadžbi koje opisuju trenutnu promjenu količine svakog člana nekog niza, sačinjenog od n članova, uz pretpostavku da u trenutku t_0 prisutan samo roditelj niza:

$$\begin{aligned}\frac{dN_1}{dt} &= -\lambda_1 N_1 \\ \frac{dN_n}{dt} &= \lambda_{n-1} N_{n-1} - \lambda_n N_n \quad (n > 1)\end{aligned}\tag{2.1.28}$$

Rješenja sustava jednadžbi analitički je pronašao Harry Bateman 1910. godine³² te su poznata kao Batemanove jednadžbe:

$$\begin{aligned}N_n(t) &= N_{1,0} \cdot \prod_{i=1}^{n-1} \lambda_i \cdot \sum_{i=1}^n C_i e^{-\lambda_i t} \\ C_i &= \prod_{j=1}^n (\lambda_j - \lambda_i)^{-1} \text{ za } j \neq i\end{aligned}\tag{2.1.29}$$

uvrštavanjem $n = 2$ dobivamo jednadžbu (2.1.20) te njeno rješenje (2.1.21). Uporabom Batemanovih jednadžbi možemo izračunati sastav produkata raspada nekog radionuklida nakon proteklog vremena t od njegovog odjeljivanja.^{30,31}

2.1.5. Međudjelovanje elektromagnetskog zračenja visoke energije i tvari

Ionizirajuće zračenje u tvarima izaziva ionizaciju međudjelovanjem s elektronima. Budući da svaka vrsta zračenja ima različita fizikalna svojstva, različito međudjeluje s tvarima. Fotoni gama zračenja nemaju naboj te uglavnom međudjeluju s elektronima procesima fotoelektričnog efekta i Comptonovog raspršenja te međudjeluju s cijelim atomom u procesu tvorbe parova elektrona i pozitrona. Tim procesima je zajedničko da nastaju pobuđeni elektroni koji zatim predaju svu ili dio energije detektoru Coulombovim međudjelovanjem te nastaje električni signal.

Prilikom **fotoelektričnog efekta** gama foton međudjeluje s veznim elektronom atoma koji čini aktivni dio detektora. Za vrijeme međudjelovanja foton iščezava te izbacuje elektron iz atoma. Energija fotona podijeljena je između elektrona i atoma:

$$E_\gamma = E_e + E_v\tag{2.1.30}$$

gdje je E_γ energija fotona, E_e energija elektrona, a E_v energija vezanja, odnosno energija pobuđenog, novonastalog iona. Izbačeni elektron dalje ionizira detektor te stvara signal, dok se pobuđeni atom relaksira Augerovom kaskadom ili emisijom rendgenskih zraka, kao u slučaju beta pozitivnog raspada. Nastale rendgenske zrake također međudjeluju fotoelektričnim efektom te je naposljetku sva energija upadnog gama fotona predana detektoru. Ljuska iz koje je izbačen elektron ovisi o upadnoj energiji gama zračenja te je najčešće izbačen elektron iz K

ljuske. Ukoliko foton nema dovoljno energije izbacuju se elektroni iz L ili M ljuske. Zbog toga nastaju diskontinuiteti u krivuljama prigušivanja intenziteta to jest atenuacije gama zračenja pri energijama koje odgovaraju energijama prijelaza elektrona između ljusaka atoma materijala od kojeg je građen detektor. Pri tim energijama vjerojatnost fotoelektričnog efekta naglo raste što se očituje ostrim skokovima u atenuacijskim koeficijentima, takozvani rubovi ljusaka. Fotoelektrični efekt najznačajni je mehanizam međudjelovanja gama fotona niskih energija od desetak do stotinjak keV.^{33,34} Na slici 4, koja prikazuje doprinose pojedinih mehanizama međudjelovanja ukupnom prigušivanju intenziteta fotona u germanijevom kristalu, vidljiv je K rub pri otprilike 11 keV. Na slici 5, koja prikazuje skicu odziva detektora i doprinosa pojedinog mehanizma međudjelovanja uslijed detekcije monoenergetskog gama zračenja dovoljne energije za tvorbu parova elektrona i pozitrona, vidljiv je vrh kojem doprinosi fotoelektrični efekt isprekidanom crvenom linijom.

Prilikom **Comptonova raspršenja** foton međudjeluje s elektronom te se raspršuje pod određenim kutom u odnosu na upadnu putanju. Raspodjela energije ovisna je o kutu raspršenja. Energija raspršenog fotona dana je s:

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + (h\nu / m_0c^2)(1 - \cos \theta)} \quad (2.1.31)$$

gdje je $h\nu$ energija upadnog fotona, $h\nu'$ energija raspršenog elektrona, m_0c^2 energija ekvivalentna masi elektrona u mirovanju (511 keV), a θ kut raspršenja fotona. Energija elektrona jednaka je razlici energija upadnog i raspršenog fotona:

$$E_e = h\nu - h\nu' = h\nu \left[\frac{(h\nu / m_0c^2)(1 - \cos \theta)}{1 + (h\nu / m_0c^2)(1 - \cos \theta)} \right] \quad (2.1.32)$$

Unutar detektora dolazi do raspršenja u rasponu kuta od $\theta = 0$, odnosno ne dolazi do međudjelovanja, do $\theta = \pi$, kada se se foton pravocrtno odbije od elektrona te mu preda maksimalno energije. Ukoliko raspršeni foton napusti detektor, zbog nepotpuno apsorbirane energije fotona u detektoru, u spektru se bilježi događaj manje energije od potpunog vrha, te se stvara takozvani Comptonov kontinuum, koji započinje pri $E_e = 0$ te završava Comptonovim rubom pri $E_{e,\max}$. Uvrštavanjem $\theta = \pi$ u izraz (2.1.32) slijedi maksimalna energija predana elektronu u Comptonovom raspršenju:

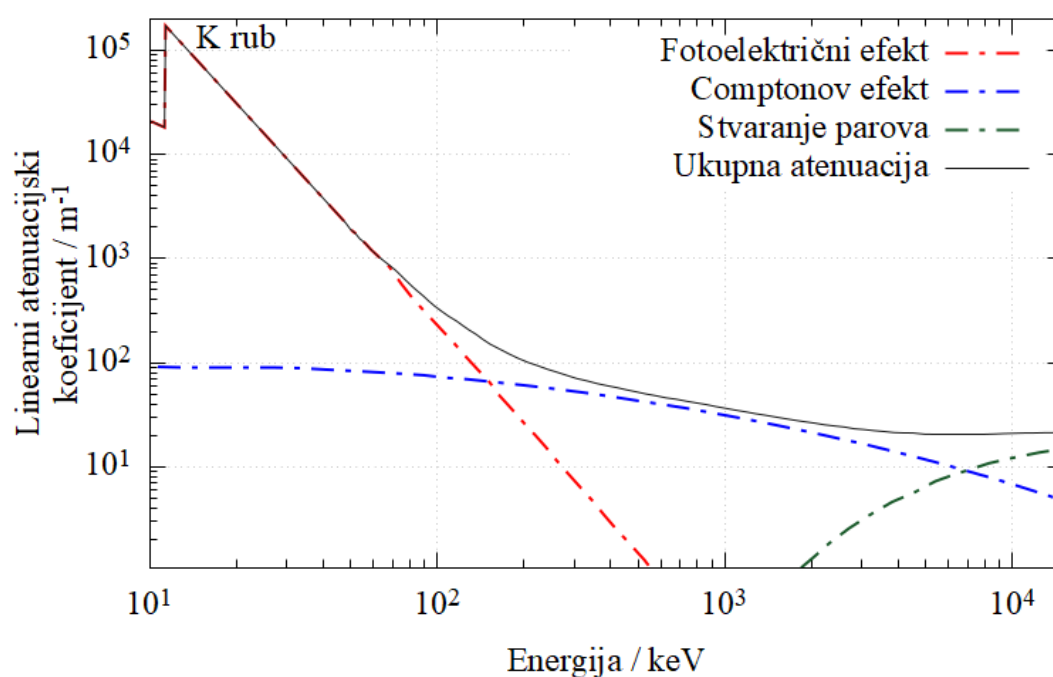
$$E_{e,\max} = h\nu \left(\frac{2h\nu / m_0c^2}{1 + 2h\nu / m_0c^2} \right) \quad (2.1.33)$$

Energijska razlika između potpunog vrha i Comptonova ruba može se izračunati prema:

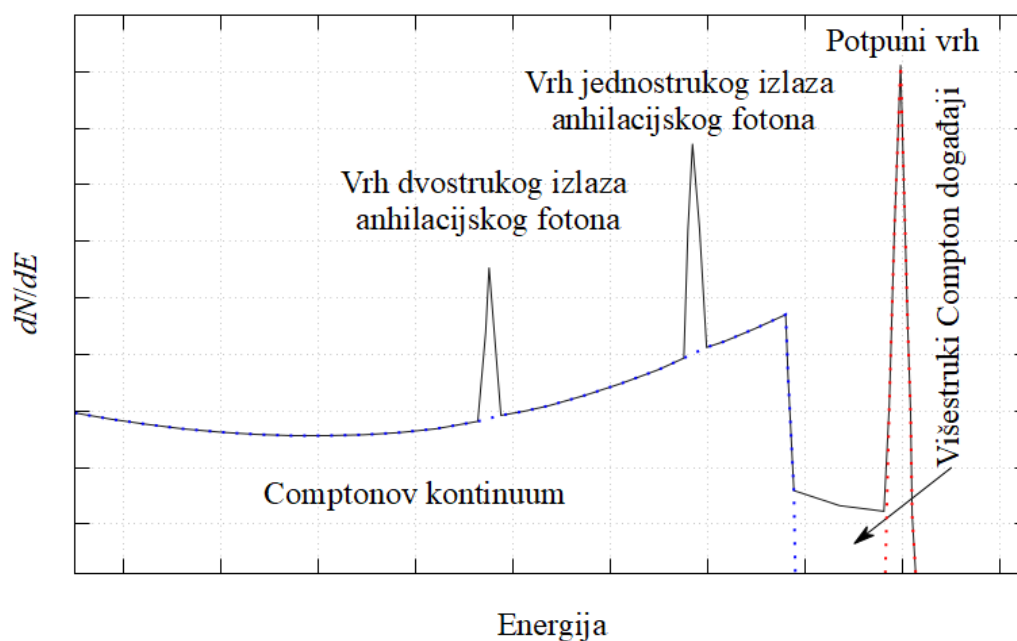
$$E_c = h\nu - E_{e,\max} = \frac{h\nu}{1 + 2h\nu / m_0c^2} \quad (2.1.34)$$

U slučaju ako se **raspršeni foton**, nakon Comptonova raspršenja, apsorbira fotoelektričnim efektom, sva energija fotona predana je detektoru te je odziv detektora vrh pri punoj energiji upadnog fotona. U slučaju kada raspršeni foton međudjeluje Comptonovim raspršenjem te novonastali raspršeni foton napusti detektor, u odzivu detektora popunjava se područje između potpunog vrha i Comptonova kontinuuma. Na slici 4 vidljiv je doprinos Comptonova raspršenja ukupnom prigušivanju intenziteta gama fotona u germaniju, dok je na slici 5 vidljiva skica Comptonovog kontinuuma, označena isprekidanom plavom linijom te područje višestrukih Comptonovih događaja. Comptonovo raspršenje najznačajni je mehanizam međudjelovanja gama fotona srednjih energija od dvjestotinjak do 2000 keV. Prilikom izvoda (2.1.31) pretpostavljeno je da je elektron slobodan, no u detektorima to nije slučaj te je zbog toga Comptonov rub zaobljen.^{33,34}

Tvorba parova je proces prilikom kojega gama foton međudjeluje s Coulombovim poljem jezgre, foton iščezava te nastaju parovi elektrona i pozitrona. Za taj proces potrebna je energija fotona viša od zbroja masa elektrona i pozitrona, odnosno $E_\gamma > 2m_0c^2 = 1022 \text{ keV}$. Proces postaje značajan mehanizam međudjelovanja fotona energija viših od 2 MeV te je najznačajni mehanizam međudjelovanja fotona energija viših od 10 MeV. Nastali elektron i pozitron daljnom ionizacijom predaju energiju detektoru. Kada energija pozitrona padne na razinu termalne energije, dolazi do sudara s elektronom te anihilacije prilikom koje nastaju dva gama fotona suprotnih orijentacija, svaki energije 511 keV. Ukoliko su oba fotona apsorbirana daljnim procesima odziv detektora je vrh potpune energije upadnog gama fotona. Međutim ukoliko jedan foton napusti detektor, odziv detektora je vrh energije upadnog gama fotona umanjene za 511 keV, odnosno vrh umanjen za 1022 keV u slučaju kad oba fotona napuste detektor.^{33,34} Na slici 4 vidljiv je doprinos tvorbe parova ukupnom atenuacijskom koeficijentu germanija, dok su na slici 5 vidljivi vrhovi **jednostrukog i dvostrukog izlaza** anihilacijskih fotona.



Slika 4. Doprinosi različitih mehanizama međudjelovanja linearnom atenuacijskom koeficijentu germanija [uređeno prema ref. 34].



Slika 5. Skica odziva detektora i doprinosa pojedinog mehanizma međudjelovanja uslijed detekcije monoenergetskog gama zračenja dovoljne energije za tvorbu parova elektrona i pozitrona [uređeno prema ref. 33].

Uz navedene procese dolazi i do Rayleighovog raspršenja, procesa u kojem elektron apsorbira foton te emitira foton iste energije ali drugačije orijentacije. Taj proces doprinosi padu intenziteta upadne zrake, to jest atenuaciji, ali ne i apsorpciji energije. Budući da se detekcija zasniva na apsorpciji energije unutar detektora, taj proces za detekciju nije značajan. Upadno gama zračenje također može inicirati nuklearne reakcije, međutim taj proces je zanemariv za fotone niže energije od 5 MeV. Energije raspada radionuklida koji se nalaze u prirodi uglavnom su niže od 3 MeV pa je to područje od interesa za okolišnu gama spektrometriju.^{33,34}

Detektori gama zračenja bilježe događaje interakcije fotona s materijom koji dolaze od svih prisutnih radionuklida zbog čega zabilježeni spektri mogu biti vrlo kompleksni. Stoga je za unaprijeđenje sustava za detekciju gama zračenja potrebno poznavati međudjelovanje elektromagnetskog zračenja visoke energije s materijom. Kaskadni događaji prouzrokovani jednim gama fotonom unutar detektora, poput nekoliko događaja Comptonova raspršenja te apsorpcija fotoelektričnim efektom, odvijaju se puno brže nego što se stvara signal u detektoru. Zbog toga foton gama zračenja, ovisno kojim mehanizmom međudjeluje, daje različite odzive detektora s različitom vjerojatnošću te naposljetku utječe na konačni izgled spektra. Svaki pojedini gama prijelaz radionuklida doprinosi spektru s odzivom koji izgleda kao slika 5.

2.1.6. Metode multivarijatne analize

Jedan od predmeta proučavanja ovog rada su uzorci četiri dubine tla, s različitim lokacija te različitih aktivnosti radionuklida (uzorci su detaljno opisani u poglavlju 3.1 *Uzorci i uzorkovanje*). Opisani skup podataka je multivarijatan te će se koristiti metode multivarijatne analize. To su metode namijenjene simultanoj analizi i vizualizaciji složenih skupova podataka sa velikim brojem varijabli koje su u različitim stupnjevima međusobne koreliranosti, a njihovi raznovrsni učinci ne mogu se interpretirati zasebno. U ovom radu provedena je analiza trivarijatnog skupa podataka metodama analize glavnih komponenata i analize paralelnih faktora. Navedene metode sažeto su opisane u sljedećih nekoliko odlomaka. Analizirani skup podataka o tlima sadrži sljedeće modove varijabilnosti: aktivnosti radionuklida u tlu, lokacija tla te dubina tla. Podaci imaju strukturu trosmjernog niza, to jest mogu se posložiti u trodimenzionalno polje (*engl. three-way array*) podataka.

Analiza glavnih komponenata (*engl. principal component analysis, PCA*) je metoda koja reducira i modelira bivarijatne podatke. Analiza trivarijatnih podataka s bivarijatnim metodama poput PCA moguća je na način da se trodimenzionalno polje podataka rastavi na više matrica, po jednom modu varijabilnosti te se spajanjem tih matrica dobije jedna matrica s

izmjeshana dva moda varijabilnosti. Glavna značajka metode je da iz n početnih varijabli konstruira n novih, međusobno ortogonalnih varijabli na sljedeći način: prva glavna komponenta objašnjava maksimalno moguće ukupne varijance promatranih podataka, druga glavna komponenta objašnjava maksimalno moguće preostale varijance uz uvjet ortogonalnosti na prvu komponentu, treća objašnjava maksimalno moguće preostale varijance uz uvjet ortogonalnosti na prvu i drugu komponentu i tako redom do komponente n . Svih n komponenata kumulativno objašnjava svu varijancu. Redukcija dimenzionalnosti postiže se odabirom broja glavnih komponenti koje objašnjavaju zadovoljavajući udio ukupne varijance te se skup podataka projicira u manje dimenzionalni prostor. Ako je model odgovarajuć za odabran skup, odbačene komponente sadržavaju šum, dok prihvaćene glavne komponente odražavaju međusobnu ovisnost početnih varijabli. Prikazivanjem skupa podataka u prostoru glavnih komponenti otkrivaju se skrivene strukture podataka što čini PCA korisnim alatom za eksploracijsku analizu podataka unutar raznih polja poput prirodnih znanosti, psihologije, medicine i drugih.^{35,36} Opisana redukcija dimenzionalnosti može se vizualizirati sljedećim primjerom. Neka je skup točaka u trodimenzionalnom prostoru grupiran u približno jednoj ravnini (neke točke leže ispod i iznad ravnine) i neka je izdužen u smjeru nekog pravca p . PCA metoda konstruira glavne komponente (PC n , nove varijable) iz postojećih na način da minimizira sumu ortogonalne udaljenost svih točaka od prve glavne komponente, PC1, to jest, ona leži na pravcu p uzduž kojeg se proteže i sam skup podataka. Drugu glavnu komponentu, PC2, konstruira tako da minimizira sumu kvadrata ortogonalnih udaljenosti točaka od PC2 uz uvjet ortogonalnosti na PC1. Treću glavnu komponentu, PC3, postavlja da minimizira kvadrat ortogonalnih udaljenosti točaka od PC3 uz uvjet ortogonalnosti na PC1 i PC2, to jest, proteže se po debljini skupa. Navedena procedura zapravo odgovara rotaciji koordinatnog sustava na način da podaci leže što bliže glavnim osima uzlaznim redom (od PC1 prema PC n). Ako za modeliranje ovakvog skupa odlučimo da su nam dvije glavne komponente dovoljne, točke se iz 3D prostora projiciraju na plohu koju razapinju prve dvije komponente, a treća komponenta se odbacuje. Procedura je identična u slučaju višedimenzionalnog skupa, u čijem se modelu reducirane dimenzionalnost mogu lakše uočiti skrivene strukture podataka. Rezultati PCA su matrica faktorskih opterećenja (*engl. loading matrix*) i matrica faktorskih bodova ili pogodaka (*engl. score matrix*). Matrica faktorskih opterećenja u redcima sadržava doprinose početnih varijabli za glavnu komponentu n koja se nalazi u n -tom stupcu, dok matrica faktorskih opterećenja po redcima sadrži točke modeliranog skupa u prostoru glavnih komponenata.

Razmatranjem i interpretacijom dijagrama koji prikazuju odnose novih i starih varijabli izvode se zaključci o analiziranom skupu podataka.^{35,36} Model analize glavnih komponentata glasi:

$$\mathbf{X} = \mathbf{TP}^T + \mathbf{E} \quad (2.1.35)$$

gdje je $\mathbf{X}$ matrica ($I \times K$) početnog skupa podataka, $\mathbf{T}$ ($I \times K$) matrica faktorskih bodova, K je broj početnih varijabli i broj glavnih komponentata, $\mathbf{P}$ matrica faktorskog opterećenja ($K \times I$), a $\mathbf{E}$ ($I \times K$) matrica reziduala. Stupci matrice faktorskih bodova i faktorskog opterećenja su međusobno ortogonalni te su stupci matrice faktorskog opterećenja normirani na vrijednost 1. Predkorak u implementaciji PCA su centriranje i skaliranje podataka. Ako podaci nisu centrirani, srednje vrijednosti varijabli mogu utjecati na PC1, umjesto varijabilnosti podataka. Prilikom centriranja matrice, svi elementi u nekom stupcu umanjuju se za srednju vrijednost tog stupca te je taj proces ponovljen za svaki stupac. Skaliranjem se podaci transformiraju u relativnu skalu kako bi se izbjegao pretjeran utjecaj varijabli koje imaju visoke vrijednosti, a ne doprinose puno opisu varijance unutar skupa podataka. Skalira se dijeljenjem svakog elementa nekog stupca sa standardnom devijacijom toga stupca te je taj proces ponovljen za svaki stupac. PCA se obično provodi dekompozicijom matrice skaliranih i centriranih početnih podataka u matricu singularnih ili jedinstvenih vrijednosti (*engl. singular value decomposition*, SVD) ili dekompozicijom matrice kovarijance ili korelacije u matricu svojstvenih vrijednosti (*engl. eigenvalue decomposition*). Glavne komponente jednake su singularnim vektorima skalirane matrice početnih podataka, to jest, svojstvenim vektorima matrice kovarijance. Kvadrat singularne vrijednosti matrice podataka, odnosno vlastite vrijednosti matrice kovarijance pojedine komponente opisuju udio u opisu varijance. Koliki je udio pojedine vlastite vrijednosti (ili kvadrat singularne vrijednosti u slučaju SVD) u zbroju svih K vlastitih vrijednosti (ili zbroj kvadrata singularnih vrijednosti u slučaju SVD), toliki udio varijance objašnjava pripadajući svojstveni vektor, odnosno pripadajuća glavna komponenta.^{35,36}

Analiza paralelnih faktora (*engl. parallel factor analysis*, PARAFAC) je metoda dekompozicije za n -varijantne podatke, najčešće korištena za trivarijantne podatke, koju je 1970. razvio R. Harshman³⁷ baziranu na radu J.D. Carrolla.³⁸ Metoda PARAFAC se najčešće primjenjuje za trivarijantne podatke. Model PARAFAC je zapravo ograničeni TUCKER3 model. Model TUCKER3 je tenzorska dekompozicija koja rastavlja trodimenzionalno polje na produkt manjeg polja jezgre i tri faktorske matrice, po jedna za svaki mod. Model TUCKER3 generalizira PCA za primjenu za n -varijantne podatke te glasi:

$$x_{ijk} = \sum_{p=1}^P \sum_{q=1}^Q \sum_{r=1}^R a_{ip} b_{jq} c_{kr} g_{pqr} + e_{ijk} \quad (2.1.36)$$

gdje je x_{ijk} element trodimenzionalnog polja skupa podataka $\underline{\mathbf{X}}$, a_{ip} , b_{jq} i c_{kr} su elementi matrica opterećenja $\mathbf{A}$ ($I \times P$), $\mathbf{B}$ ($J \times Q$) i $\mathbf{C}$ ($K \times R$) koje opisuju doprinos faktora n u tri moda varijabilnosti a , b i c . Elementi g_{pqr} čine trodimenzionalno polje jezgre $\underline{\mathbf{G}}$ ($P \times Q \times R$) (*engl. core array*), koji opisuje veličinu pojedinog faktora i doseg njihovog međudjelovanja, a e_{ijk} je element trodimenzionalnog polja reziduala $\underline{\mathbf{E}}$. U modelu PARAFAC broj faktora u svakom modu je jednak, $P = Q = R = N$, a polje $\underline{\mathbf{G}}$ ($N \times N \times N$) je super dijagonalno polje, to jest na prostornoj dijagonali ima elemente 1, dok su preostali elementi 0 te se izraz (2.1.36) pojednostavljuje na model PARAFAC:

$$x_{ijk} = \sum_{n=1}^N a_{in} b_{jn} c_{kn} + e_{ijk} \quad (2.1.37)$$

Važna karakteristika modela PARAFAC je jedinstvenost rješenja, to jest matrice $\mathbf{A}$, $\mathbf{B}$ i $\mathbf{C}$ izračunate za N faktora prema modelu (2.1.37) jedino je rješenje koje daje najmanji zbroj kvadrata reziduala. Drugim riječima, za razliku od modela PCA ili TUCKER3, rješenje se ne može rotirati bez gubitka prilagodbe (*engl. loss of fit*). Prema tome, ako je model odgovarajuć za skup podataka, mora biti sličan fizičkom modelu na kojem se zasniva promatrani skup podataka. Model PARAFAC je u kemiji često korišten za modeliranje podataka fluorescencijske spektrofotometrije. Takvih podaci su trivarijatni, jedan mod odgovara promjeni koncentracija u smjesi n fluorescirajućih vrsta, drugi valnoj duljini pobude, a treći valnoj duljini emisije. Model PARAFAC takvog skupa podataka daje n faktora koji odgovaraju eksitacijsko-emisijskim profilima pojedinih n vrsta, pomoću kojih se spektar smjesa može rastaviti na doprinose spektra svake pojedine vrste.^{35,39–41} Međutim, faktori modela PARAFAC nisu međusobno ortogonalni te se ne mogu sekvencijski računati kao glavne komponente u slučaju PCA, već se računa novi model za određen broj faktora N . Također, broj faktora za odgovarajuć model nije trivijalno odrediti te se može uzeti preveliki broj faktora koji će davati zadovoljavajuće prijanjanje iako model nije odgovarajuć za skup podataka. Neki od načina provjere je li odabran odgovarajuć broj faktora su analiza podijeljenih skupova (*engl. Split-half analysis*) i dijagnostika postojanosti jezgre (*engl. core consistency diagnostic, CORCONDIA*). U analizi podijeljenih skupova, početni skup se podijeli na dva podskupa te se

za svaki podskup računa zasebni model. Zbog jedinstvenosti rješenja, ako je odabran odgovarajuć broj faktora, modeli svakog podskupa biti će međusobno jednaki te jednaki modelu za cijeli skup. Odgovarajući model PARAFAC trebao bi imati u polju jezgre $\underline{\mathbf{G}}$ vrijednosti blizu jedinici na prostornoj dijagonali te vrijednosti blizu nule izvan nje. Kada to nije slučaj, podaci nisu ispravno modelirani PARAFAC modelom, odnosno korišteno je previše faktora ili podaci imaju odstupajuće vrijednosti (*engl. outliers*). Jednostavan način za procjenu ispravnosti modela je postupak CORCONDIA, koji uspoređuje jezgru modela $\underline{\mathbf{G}}$ s teorijskom $\underline{\mathbf{T}}$, koja ima elemente t_{pqr} jednake jedinici kada $p = q = r$, odnosno nuli kada to nije slučaj:

$$\text{Core consistency} = \left(\frac{1 - \sum_{p=1}^N \sum_{q=1}^N \sum_{r=1}^N (g_{pqr} - t_{pqr})^2}{\sum_{p=1}^N \sum_{q=1}^N \sum_{r=1}^N t_{pqr}^2} \right) \times 100\% \quad (2.1.38)$$

Odgovarajući model je onaj s najvećim brojem faktora i konzistencijom jezgre blizu 100 % [ref. 35,39–41]. Zbog trivarijatnosti podataka, centriranje i skaliranje podataka nije jednostavno kao u slučaju bivarijatnih podataka. Kako bi se sačuvala struktura podataka, centriraju se samo po jednom modu i , na način da se $I \times J \times K$ polje presloži u $I \times (J \times K)$ matricu koja se centriraju po stupcima. Skaliranje neke varijable j vrši se na način da se skalira svaki stupac u kojem se varijabla j nalazi, to jest da se $I \times J \times K$ polje presloži u $J \times (K \times I)$ matricu koja se skalira po redcima. Centriranje i skaliranje po jednom modu utječe na skaliranje i centriranje po drugim modovima te se provodi iterativnim postupkom. Također, nije moguće napraviti svaku kombinaciju centriranja i skaliranja. Model PARAFAC računa se iterativno, algoritmom izmjeničnih najmanjih kvadrata (*engl. alternating least squares*, ALS). Algoritam iz zadanih (najčešće nasumično) početnih vrijednosti matrica $\mathbf{B}$ i $\mathbf{C}$ jednadžbe (2.1.37) izračunava vrijednosti matrice $\mathbf{A}$, zatim iz vrijednosti matrica $\mathbf{A}$ i $\mathbf{C}$ određuje matricu $\mathbf{B}$ te iz matrica $\mathbf{A}$ i $\mathbf{B}$ određuje matricu $\mathbf{C}$. Račun se ponavlja iterativnim postupkom dok se ne postigne zadana konvergencija. Zbog ALS algoritma koja se temelji na početnoj procjeni matrica, moguće je modelirati skup kojem nedostaju podaci.^{35,39–41}

2.2. Okolišni radionuklidi

Radioaktivnost i povezani rizici izloženosti sveprisutni su na Zemlji od njenog postanka. Radionuklidi su prirodni dio okoliša, prisutni su od samog nastanka Zemlje, kontinuirano nastaju u atmosferi te dopijevaju na Zemlju gdje migriraju u različite segmente okoliša

različitim prijenosnim putevima. Prema tome, sva živa bića, uključujući ljude, unose u sebe radionuklide metaboličkim procesima. Na Zemlji je pronađeno više od 340 nuklida od kojih je više od 90 radioaktivno te ih je umjetno stvoreno oko 1000 od kojih je većina radioaktivna.⁴² Elementi s atomskim brojem većim od 83 i tehnećij ($Z = 43$) uopće ne tvore stabilne izotope. Radionuklidi se mogu podijeliti u četiri kategorije: **primordijalni** (nastali prije postanka Zemlje), **radiogeni** (nastaju raspadom primordijalnih radionuklida), **kozmojeni** (nastaju kao produkti kozmičkog zračenja) te **antropogeni** (nastaju uslijed ljudskog djelovanja). Radionuklidi u okolišu globalno se intenzivno proučavaju zadnjih pedesetak godina. Nuklearne nesreće, poput one u Černobilu 1986. godine, potakle su istraživanja radionuklida u okolišu, unaprijeđenje postojećih metoda te razvitak novih metoda detekcije radionuklida, čime je razvijeno znanstveno polje **radioekologije**.^{42–44}

2.2.1. Primordijalni i radiogeni radionuklidi

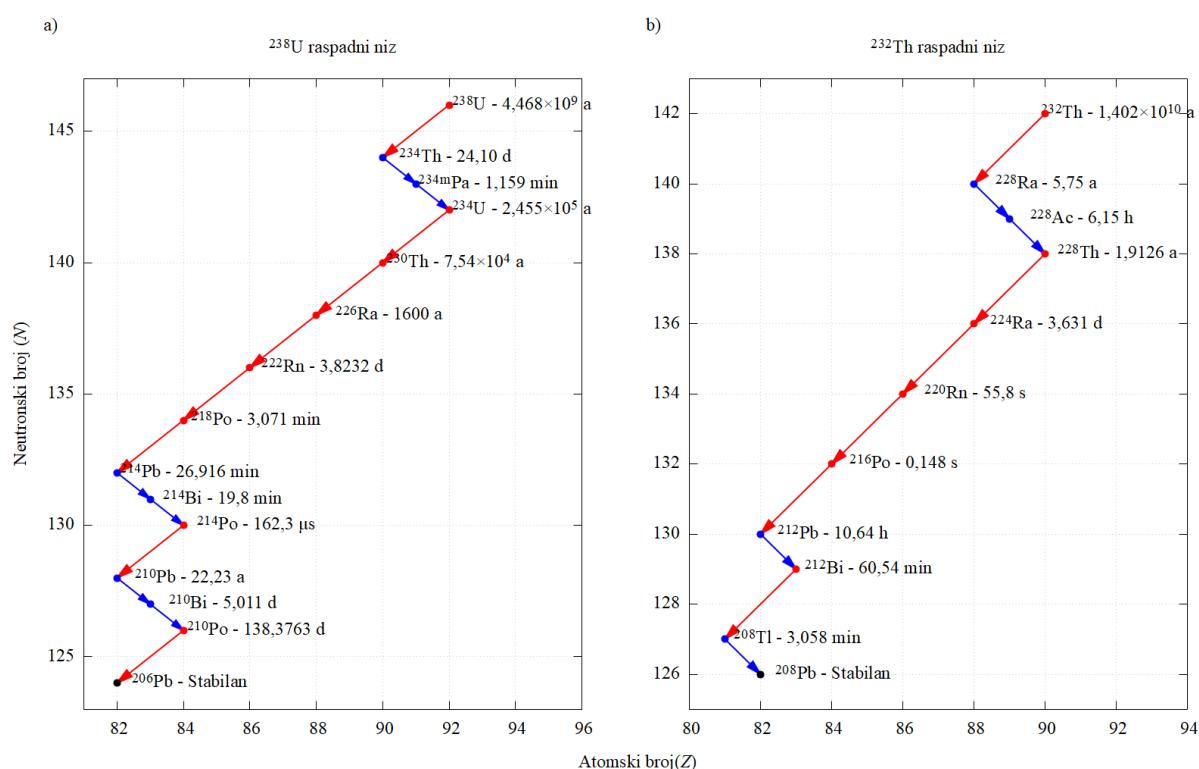
Primordijalni radionuklidi nastali su prije **4,5 milijarde godina**, pri stvaranju Sunčeva sustava. U prvom stadiju nukleosinteze nastali su lagani nuklidi ($Z < 60$) uslijed nuklearnih reakcija iniciranih protonima i alfa česticama. Daljnim uхватom neutrona te beta raspadom nastali su teži nuklidi ($60 \leq Z < 92$) te naposljetku i **teški nuklidi** ($Z \geq 92$) koji su podložni **alfa raspadu** i **spontanoj fisiji**. Budući da je vrijeme poluraspada većine tih radionuklida značajno kraće od 4,5 milijarde godina, samo dvadesetak primordijalnih radionuklida je zbog vrlo dugih vremena poluraspada i dalje prisutno na Zemlji. Raspadaju se direktno na stabilne nuklide ili započinju odgovarajući raspadni niz. Samo su ^{40}K , ^{87}Rb , ^{232}Th te ^{235}U , ^{238}U prisutni u značajnim količinama u okolišu.⁴²

Prosječna koncentracija kalija u litosferi iznosi $20,9 \text{ g kg}^{-1}$, no može značajno varirati,⁴⁵ dok prirodna zastupljenost izotopa ^{40}K iznosi $0,0117 \%$ [ref. 46]. Vrijeme poluraspada beta emitera ^{40}K iznosi $1,25 \times 10^9 \text{ a}$ [ref. 29], iz čega proizlazi da je specifična aktivnost ^{40}K u prirodnim (izotopski neizmjenjenim) uzorcima kalija 31 kBq kg^{-1} , odnosno prosječna specifična aktivnost ^{40}K u litosferi iznosi oko 650 Bq kg^{-1} . Njegova ukupna aktivnost veća je od kumulativne aktivnosti svih ostalih prirodnih radionuklida. Prosječna koncentracija K u ljudskom tijelu je $1,6 - 2,0 \text{ g kg}^{-1}$ [ref. 47] te specifična aktivnost ^{40}K u ljudskom tijelu iznosi oko 60 Bq kg^{-1} .

Koncentracija uranija u litosferi iznosi 3 mg kg^{-1} [ref. 48]. Nalazi se u otprilike 200 minerala od kojih samo nekolicina tvori rude poput uraninita (UO_2) ili karnotita ($(\text{K}_2(\text{UO}_2)_2(\text{VO}_4)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O})$). Zastupljenost ^{238}U ($t_{1/2} = 4,47 \times 10^9 \text{ a}$, alfa emiter) u prirodnim

uzorcima iznosi 99,27 %, dok je zastupljenost ^{235}U ($t_{1/2} = 7,04 \times 10^8$ a, alfa emiter) 0,72 %. Prema tome, specifične aktivnosti ^{238}U i ^{235}U u **litosferi** iznose približno **37 i 1,7 Bq kg⁻¹**. Koncentracija torija u litosferi je 8 mg kg⁻¹ [ref. 48]. Gotovo sav prisutan torij na Zemlji (99,9995 %) je izotop ^{232}Th ($t_{1/2} = 1,40 \times 10^{10}$ a, alfa emiter) te je njegova prosječna specifična aktivnost u litosferi **33 Bq kg⁻¹**. Iako je masena koncentracija ^{232}Th viša od masene koncentracije ^{238}U , zbog dužeg vremena poluraspada ^{232}Th , njihove specifične aktivnosti su približno jednake. U rudama se torij često pojavljuje zajedno s uranijem te je glavni izvor torija ruda monacit, u kojoj ga može biti do 12 % [ref. 42,48].

Primordijalni izotopi uranija, ^{235}U i ^{238}U zajedno s ^{232}Th započinju **raspadne nizove**. Prilikom nastanka Zemlje bio je prisutan i četvrti raspadni niz koji je započinjao ^{237}Np , no zbog relativno kratkog vremena poluraspada ^{137}Np od članova niza na Zemlji je prisutan još samo zadnji nuklid niza, ^{209}Bi s vremenom poluraspada od 2×10^{19} a. Na slici 6 su prikazani raspadni nizovi ^{238}U i ^{232}Th . Cijeli raspadni nizovi ili njihovi dijelovi mogu biti u sekularnoj ili prijelaznoj ravnoteži kako je objašnjeno u potpoglavlju 2.1.4 *Kinetika radioaktivnog raspada*.



Slika 6. Raspadni niz a) ^{238}U b) ^{232}Th . Alfa raspad prikazan je crvenom strelicom zdesna nalijevo, dok je beta raspad prikazan plavom strelicom slijeva nadesno. Uz nuklide je navedeno odgovarajuće vrijeme poluraspada.²⁹

Zbog postojanja raspadnih nizova, na Zemlji su od njena postanka prisutni **radiogeni radionuklidi** iako im je vrijeme poluraspada značajno kraće od vremena poluraspada primordijalnih radionuklida. Radiogeni radionuklidi su radioaktivni izotopi koji nastaju kao produkt raspada drugih, prirodno prisutnih radioaktivnih elemenata. Vremena poluraspada kreću im se od nekoliko stotinki sekunde do 10^5 godina. **Najveću pažnju s obzirom na izloženost ljudi prirodnom zračenju izazivaju** radiogeni radionuklidi ^{226}Ra ($t_{1/2} = 1,6 \times 10^3$ a, alfa emiter) i njegovi potomci ^{222}Rn ($t_{1/2} = 3,82$ d, alfa emiter), ^{210}Pb ($t_{1/2} = 22,23$ a, beta emiter) i ^{210}Po ($t_{1/2} = 138,38$ d, alfa emiter) zbog svoje sveprisutnosti. Radionuklid ^{222}Rn je plemeniti radioaktivni plin koji nastaje raspadom ^{226}Ra u stijenama i tlu, otapa se u podzemnim vodama te iz njih ili direktno iz tla **isplinjava** i dospijeva u atmosferu. U zatvorenim sustavima (špilje, podrumi, kuće) može se i značajno akumulirati. Procjenjuje se da je 70 % smrti uzrokovanih rakom pluća kod nepušača posljedica udisanja ^{222}Rn .⁴⁹ Njegovim raspadom nastaje i ^{210}Pb koje se raspada preko ^{210}Po do stabilnog olova. **Atmosferskom depozicijom ^{210}Pb i ^{210}Po** dospijevaju na tlo, lišće i plodove bilja te ulaze u hranidbene lance. Raspadni nizovi ^{235}U i ^{232}Th također sadržavaju izotope radona, ^{219}Rn ($t_{1/2} = 3,98$ s, alfa emiter) i ^{220}Rn ($t_{1/2} = 55,8$ s, alfa emiter), međutim oni su kratkog vremena poluraspada te ne dospijevaju u atmosferu u značajnoj mjeri kao ^{222}Rn [ref. 42].

2.2.2. Kozmičko zračenje i kozmogeni radionuklidi

Kozmičko zračenje potječe od Sunca, zvijezda, ugaslih zvijezda, kvazara i iz vruće galaktičke i intergalaktičke plazme. Sadrži fotonsko (rendgensko i gama) i čestično (protoni, alfa čestice, elektroni, neutroni i dr.) zračenje energija od nekoliko eV do 1000 keV. Ulaskom u atmosferu kozmičko zračenje međudjeluje s atmosferom te je više od 98 % energije zračenja apsorbirano u atmosferi,⁴³ pri čemu može doći do nastanka sekundarnog zračenja (mioni, neutrini i dr.). Također, prilikom tog kontinuiranog međudjelovanja zračenja u atmosferi dolazi do fragmentacije jezgre ili do zahvata termalnih neutrona, pri čemu nastaju radionuklidi u atmosferi. Neki kozmogeni radionuklid su ^3H , ^7Be , ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{37}Ar , ^{39}Ar , ^{81}Kr ... Oni iz atmosfere dospijevaju na površinu Zemlje ili u vode uslijed raznih atmosferskih procesa.^{43,44}

2.2.3. Sustav za redukciju kozmičke pozadine antikoincidencijskom spregom detektora

Mali udio kozmičkog zračenja ipak dospijeva i do površine Zemlje, gdje međudjeluje s tvarima. Time posredno ili neposredno stvara **šum u gama spektru** pozadinskog zračenja. **Pozadinski signal** tipičnog detektora sadrži otprilike 10 % doprinosa iz samog detektora, 40 % od

radionuklida iz okruženja detektora, 10 % od radona iz zraka te preostalih 40 % od kozmičkog zračenja.⁵⁰ Najznačajniji doprinos kozmičkom zračenju dolazi od **miona**, negativno nabijenih čestica mase 200 puta veće od elektrona te neutrona.⁵¹ Mioni imaju veliku prodornost te prolaze kroz (i ioniziraju) pasivnu zaštitu načinjenu od olova koje se uobičajeno koristi za smanjenje pozadinskog zračenja u gama-spektrometrijskim mjernim postavima. To rezultira šumom u pozadinskom spektru te višim granicama detekcije koje ovise o broju detektiranih događaja u kontinuumu pozadinskog spektra u području očekivanog vrha.⁵² Zbog toga se laboratoriji za niske razine aktivnosti grade ispod površine Zemlje, gdje je tok miona smanjen prolaskom kroz sloj tla.^{53,54} Često gradnja duboko podzemnih laboratorija nije izvediva i financijski je zatjevna te se utjecaj kozmičkog zračenja u površinskim laboratorijima može smanjiti na drugi način, nadogradnjom sustava aktivnom štitom.^{50,55–57} **Aktivni štit** je sustav s dodatnim detektorima izvan pasivne zaštite, najčešće plastičnim scintilatorima s odgovarajućim fotomultiplikacijskim cijevima (*engl. photomultiplier tube*, PMT), kojima se direktno detektiraju mioni nastali pod utjecajem kozmičkog zračenja. Prolaskom kroz aktivni štit mioni su detektirani te nastavljaju svoj put, pri čemu mogu proći i kroz olovljen štit i ostaviti signal i u primarnom, germanijevom detektoru. Za takva dva ili više impulsa koji su gotovo istovremeno detektirani u dva ili više detektora kažemo da su koincidentni. Odbacivanjem koincidentnih događaja zabilježenih glavnim detektorom smanjuje se broj impulsa od kozmičkog zračenja u pozadinskom spektru. Takav način rada zove se antikoincidenijski način, a opisani aktivni štit je sustav za redukciju kozmičke pozadine antikoincidenijskom spregom detektora. Smanjenje impulsa kozmičkog zračenja u spektru dovodi do smanjenja granica detekcije. Pokrivanjem većeg prostornog kuta oko germanijevog detektora sustavom aktivnog štita povećava se vjerojatnost za detekciju većeg broja koincidentnih događaja. Pravilno odabacivanje koincidentnih događaja omogućio je razvoj digitalne elektronike za detektorske sustave. Novi digitalni multikanalni analizatori uz osnovnu funkciju podijele impulsa u odgovarajuće kanale također obavljaju funkcije i zamjenjuje sljedeće analogne komponente: pojačalo, izvor visokog napona, analogno-digitalni pretvornik te mogu bilježiti vremensku koordinatu i valni oblik impulsa.⁵⁰ Na tržištu postoje komercijalno dostupni sustavi za redukciju kozmičke pozadine antikoincidenijskom spregom detektora, no obično su sačinjeni od jednog scintilatora i pokrivaju manji prostorni kut, dok su sastavljeni sustavi kompleksniji, imaju više scintilacijskih detektora, modularni su te prilagođeni specifičnim zahtjevima laboratorija u kojem su sastavljeni.

2.2.4. Antropogeni radionuklidi

Antropogeni radionuklidi su radionuklidi koji potječu od ljudske djelatnosti. Zbog tehnoloških, znanstvenih, medicinskih i industrijskih aktivnosti, kroz zadnjih 80-ak godina stvorene su stotine umjetnih radionuklida različitih vremena poluraspada, od kojih je dio dospio u okoliš. U antropogene radionuklide također spadaju i oni prirodni radionuklidi čija je aktivnost značajno povećana zbog ljudskog djelovanja. Tu skupinu čine uglavnom radionuklidi uranijevog raspadnog niza nastali fisijom u nuklearnim reaktorima ili korištenjem nuklearnog oružja. Iako u okoliš antropogeni radionuklidi dopijevaju iz mnogo izvora, samo nekolicina njih značajno doprinosi kontaminaciji okoliša, dok je doprinos uslijed testiranja nuklearnog oružja u atmosferi najznačajniji.⁴²

Testiranja nuklearnog oružja započela su 1945. te je do 2006. provedeno 2053 testiranja.⁵⁸ Većinu testiranja (85 %) provele su Sjedinjene Američke Države i Sovjetski Savez između 1945. i 1992. Jedna četvrtina svih testova (530) provedena je u atmosferi, prilikom čega su velike količine radioaktivnog materijala ispuštene u atmosferu. Atmosferskom depozicijom radioaktivni materijal rasprostranjen je globalno.^{59,60} Iako je prilikom testiranja u okoliš ispušten cijeli spektar fisijskih i fuzijskih produkata, do danas su u značajnim količinama u okolišu preostali ^{137}Cs ($t_{1/2} = 30,02$ a, beta i gama emiter) i ^{90}Sr ($t_{1/2} = 28,80$ a, beta emiter), kojih je kumulativno ispušteno u atmosferu **919 PBq**, u slučaju ^{137}Cs , i **612 PBq** u slučaju ^{90}Sr [ref. 45].

Sljedeći najveći doprinos antropogenih radionuklida u okolišu je nekontrolirani ispušt radionuklida uslijed nuklearnih nesreća. Procjenjuje se da je prilikom najveće nuklearne nesreće, one u **Černobilu 1986. godine**, u okoliš je ispušteno **(74 – 98) PBq ^{137}Cs** i **(4 – 10) PBq ^{90}Sr** . Prilikom druge najveće nesreće, one u **Fukušimi 2011. godine**, u okoliš je ispušteno **(6 – 17 PBq) ^{137}Cs** i oko **0,02 PBq ^{90}Sr** [ref. 4]. Zbog ispuštene količine, relativno dugačkog vremena poluraspada te jednostavnosti gama-spektrometrijskog mjerenja, migracija ^{137}Cs kroz tlo detaljno je istražena.

Prema tome, ciljani i očekivani radionuklidi u uzorcima analiziranim u ovom radu su: ^{40}K , ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{235}U , ^{238}U i njegovi potomci, posebice ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{210}Po te ^{232}Th i njegovi potomci. Svi potomci ^{238}U i ^{232}Th , vrste raspada te vremena poluraspada vidljivi su na slici 6.

2.2.5. Migracija ^{137}Cs kroz tlo

Radionuklid ^{137}Cs u okoliš dopijeva u obliku kationa Cs^+ unutar kontaminiranih koloidnih čestica. Koloidne čestice deponiraju se na tlo. Prilikom djelovanja okolišnih voda, na granici

faza voda – kontaminirana čestica dolazi do procesa adsorpcije i desorpcije kationa Cs^+ . Sedimenti i tla brzo i jako adsorbiraju Cs^+ iz kontaminirane vode, koji dalje migrira kroz sediment ili tlo. Procesi sorpcije cezija ovise o svojstvima tla i otopine kao što su vrijednost **pH**, **kapacitet izmjene kationa** (engl. *Cation exchange capacity*, CEC), **ionska jakost**, **udio gline**, udio organske tvari. Sorpcija radiocezija na tlo može se opisati **adsorpcijom** na tri različita vezna mjesta sastavnog minerala gline, **filosilikata**. Vezna mjesta imaju **različite selektivnosti** prema kationima. Dva tipa veznog mjesta su planarna vezna mjesta filosilikata. Silikatni tetraedarski anioni tvore niz paralelnih slojeva te se kationi poput Cs^+ , Na^+ , K^+ , Rb^+ vežu neselektivno, brzo i reverzibilno uzduž vanjskih slojeva i na rubovima minerala. Ta mjesta zovu se **uobičajena izmjenska mjesta** (engl. *regular exchnage sites*) i **rubna mjesta** (engl. *edge sites*). Treća vrsta veznog mjesta, **oštećena rubna mjesta** (engl. *frayed edge sites*, FES) nastaje oštećenjem kristala kada se stvaraju procjepi između dva anionska sloja. Za njih je karakteristično da vežu katione cezija selektivno i sporo te da sačinjavaju 0,1 – 2 % ukupnog kapaciteta izmjene kationa.^{61,62} **Jednostavan model kinetike migracije** ^{137}Cs kroz tlo pretpostavlja **brzu adsorpciju i desorpciju** ^{137}Cs na vezna mjesta minerala gline te daljnu **migraciju** kroz tlo zbog **difuzije**. Prema takvom modelu, raspodjela ^{137}Cs unutar tla opada eksponencijalno s dubinom. Kinetička istraživanja adsorpcije ^{137}Cs slažu se s jednostavnim modelom ako je sustav promatran kratko vrijeme, nekoliko dana. Međutim, nakon pet dana eksperimentalni profil aktivnosti ^{137}Cs počinje odstupati od jednostavnog modela, što upućuje na **složeniji mehanizam migracije** ^{137}Cs kroz tlo.^{63–65} Dugoročni eksperimenti pokazali su da se migracija ^{137}Cs odvija kroz 3 vremenske faze. Prva faza je gotovo instantna, karakteristično vrijeme mjeri se u minutama. Druga faza je sporija i događa se kroz nekoliko dana, dok treća faza traje godinama. Za objašnjenje tih rezultata pretpostavljen je napredniji model, koji uključuje brzu reverzibilnu reakciju opisanu **Freundlichovom izotermom**, nakon koje slijedi **ireverzibilni proces** prvog reda. Takav model slaže se s mehanističkim razmatranjima u literaturi.^{66,67} Prilikom prve faze migracije (minute) dolazi do brze **reverzibilne adsorpcije** ^{137}Cs na površinska vezna mjesta. U drugoj fazi migracije dolazi do relativno spore (dani), **ireverzibilne preraspodjele** ^{137}Cs iz neselektivnih veznih mjesta u selektivna te u trećoj fazi (mjeseci) ^{137}Cs sporo, **ireverzibilno migrira** kroz pukotine međuslojeva filosilikata.^{66,67} Opisani **difuzijsko-sorpcijski-fiksacijski** model slaže se s eksperimentalnim mjerenjima kinetike u laboratorijskim uvjetima. Međutim postoje, odstupanja modela u slučaju stvarnih sustava. Unaprijeđenje difuzijsko-sorpcijsko-fiksacijskog modela postignuto je uvođenjem

advekcijaskog člana. **Advekcija** je prijenos tvari masovnim gibanjem tekućine, primjerice kiše. Takav model uspješno opisuje profile raspodjele ^{137}Cs u šumama Fukušime,⁶⁸ te predviđa često opažen maksimum aktivnosti ^{137}Cs nekoliko cm ispod same površine tala bogatih organskim tvarima.

2.2.6. Faktori prijenosa (TF) radionuklida iz tla u biljku

Okolišni radionuklidi iz tla dospijevaju u biljku te ulaze u hranidbene lance ljudi i životinja. Prijenos radionuklida iz tla u biljke odvija se kroz korijenski sustav zbog pasivnog protoka tvari ili zbog sličnosti radionuklida s biljci vitalnim elementima. **Faktor prijenosa** (engl. *transfer factor*, **TF**) nekog radionuklida je parametar za praćenje prijenosa tog radionuklida iz tla u biljku. Definiran je kao omjer **specifične aktivnosti** radionuklida u **suhoj tvari biljke** i **specifične aktivnosti** radionuklida u suhoj **tvari tla**, na kojem je biljka izrasla, dubine **od 0 do 20 cm**:

$$\text{Faktor prijenosa, } TF = \frac{a(\text{biljka, suha tvar})}{a(\text{tlo, 0 - 20 cm, suha tvar})} \quad (2.2.1)$$

Varijabilnost faktora prijenosa ovisi o šest glavnih čimbenika: **fizikalno – kemijskim svojstvima radionuklida**, oborinama i okolišnim uvjetima, **vrsti biljke**, **karakteristikama tla** (pH, ionska jakost, sastav, električna provodljivost i druge), metodi uzgoja biljke, proteklom vremenu od kontaminacije (odnosi se na prijenos antropogenih radionuklida). Radionuklidi u biljke dospijevaju i drugim mehanizmima, primjerice atmosferskom depozicijom kroz lišće. Zbog nemogućnosti razlučivanja doprinosa pojedinog mehanizma mjerenoj aktivnosti, nesigurnost faktora prijenosa izračunata prema (2.2.1) je velika. Faktor prijenosa definiran je u svrhe procjene **radiološke pogodnosti tla** za uzgoj određene biljke. Uobičajno se ne računa za svaku pojedinu vrstu, već za grupu biljaka. Međutim, zbog varijabilnosti sastava i karakteristika tla, faktori prijenosa radionuklida za biljnu grupu variraju i po nekoliko redova veličine.^{69,70} Stoga je procjena pogodnosti tla korištenjem općih faktora prijenosa prebirna te ju je potrebno potvrditi eksperimentima s tlima specifičnim promatranoj lokaciji.³ Izvori s faktorima prijenosa za pojedine radionuklide u određene skupine biljaka relativno su rijetki,⁷¹ posebice za neke radionuklide poput izotopa Po, koji su zahtjevni za analizu. U najopsežnijoj bazi podataka s faktorima prijenosa, koju je objavila **Međunarodna agencija za atomsku energiju** (engl. *International Atomic Energy Agency*, **IAEA**),⁷¹ faktori prijenosa ^{210}Po izračunati su iz samo dva uzorka za četiri od deset grupa kultura. Vrijednosti faktora prijenosa koje navodi IAEA i

neke druge pronađene u literaturi prikazane su u tablici 1. Objavljeni podaci često su nepotpuni te im nedostaju podaci o karakteristikama tla, što je prepreka prema izgradnji kompleksnog modela na temelju do sada već objavljenih podataka.³

Tablica 1. Faktori prijenosa za odabrane radionuklide i grupe poljoprivrednih kultura iz Hrvatske i globalno.

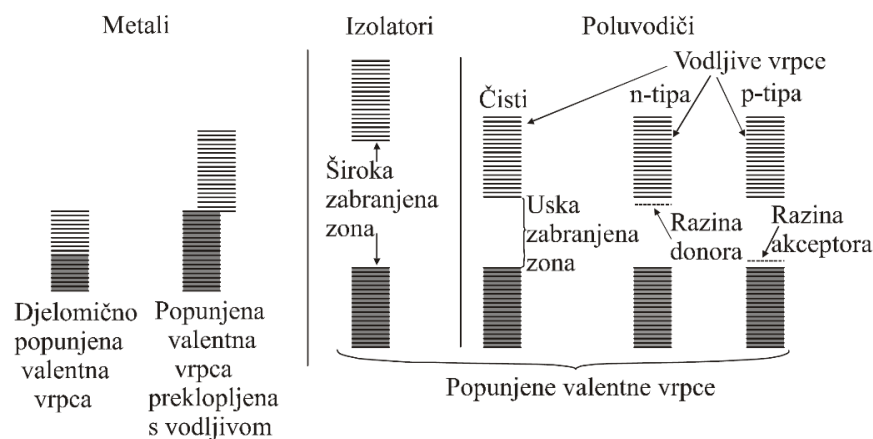
Grupa kultura	Faktor prijenosa						Regija	[ref.]
	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra		
Žitarice	$7,40 \times 10^{-1}$	$2,90 \times 10^{-2}$	$1,10 \times 10^{-1}$	$1,10 \times 10^{-2}$	$2,40 \times 10^{-4}$	$1,70 \times 10^{-2}$	globalno	71
	$5,70 \times 10^{-1}$	$1,50 \times 10^{-2}$					Hrvatska	69
				$1,84 \times 10^{-2}$	$2,42 \times 10^{-4}$	$1,07 \times 10^{-1}$	globalno	3
Lisnato povrće	$1,30 \times 10^0$	$6,00 \times 10^{-2}$	$7,60 \times 10^{-1}$	$8,00 \times 10^{-2}$	$7,40 \times 10^{-3}$	$9,10 \times 10^{-2}$	globalno	71
	$2,20 \times 10^{-1}$	$6,33 \times 10^{-3}$					Hrvatska	69
				$2,11 \times 10^0$	$1,90 \times 10^{-2}$	$2,58 \times 10^0$	globalno	3
Plodovito povrće		$2,10 \times 10^{-2}$	$3,60 \times 10^{-1}$	$1,50 \times 10^{-2}$	$1,90 \times 10^{-4}$	$1,70 \times 10^{-2}$	globalno	71
				$7,77 \times 10^{-1}$	$1,93 \times 10^{-4}$	$2,62 \times 10^{-1}$	globalno	3
Korijenasto povrće		$4,20 \times 10^{-2}$	$7,20 \times 10^{-1}$	$1,50 \times 10^{-2}$	$5,80 \times 10^{-3}$	$7,00 \times 10^{-2}$	globalno	71
				$4,14 \times 10^{-1}$	$1,20 \times 10^{-2}$	$1,93 \times 10^0$	globalno	3
Gomolji		$5,60 \times 10^{-2}$	$1,60 \times 10^{-1}$	$1,50 \times 10^{-3}$	$2,70 \times 10^{-3}$	$1,10 \times 10^{-2}$	globalno	71
	$3,73 \times 10^{-1}$	$9,00 \times 10^{-3}$					Hrvatska	69
				$9,12 \times 10^{-2}$	$7,98 \times 10^{-3}$	$1,38 \times 10^{-1}$	globalno	3

2.3. Metode detekcije ionizirajućeg zračenja

2.3.1. Poluvodički detektori

Rad poluvodičkog detektora temelji se na pojavama na granicama faza dvaju različitih tipova kristalnih poluvodiča u dodiru. Prema teoriji elektronskih vrpca krutih tvari, kristal je jedinstven elektronski sustav u kojemu su elektroni raspoređeni u elektronske razine, to jest molekulske orbitale nastale preklapanjem atomskih orbitala. Preklapanjem atomskih orbitala nastaje jednak broj molekulskih orbitala različite energije. U svaku orbitalu mogu se smjestiti dva elektrona suprotnog spina. Niz uzastopnih razina koje se vrlo malo razlikuju u energiji čine elektronske vrpce. Elektronske vrpce obično su međusobno odijeljene zabranjenim zonama, područjima energije koje elektroni u krutini ne mogu imati. Valentni elektroni smješteni su u valentnoj vrpci, iznad koje je prazna vrpca više energije, vodljiva vrpca. Električna vodljivost krutina ovisi o popunjenosti valentne vrpce i širini zabranjene zone između valentne i vodljive vrpce.

U nekim slučajevima valentne i vodljive vrpce mogu se preklapati. Elektroni potpuno popunjene vrpce (spareni) ne mogu sudjelovati u električnoj vodljivosti krutine. Na slici 7 prikazane su razlike u popunjenosti vrpca i razlike u širini zabranjenih zona za metale (vodiče), izolatore te poluvodiče.



Slika 7. Razlika u popunjenosti valentne vrpce i razlike u širini zabranjenih zona za metale, izolatore i poluvodiče [preuzeto iz ref. 72].

U metalima je valentna vrpca djelomično popunjena, ili je potpuno popunjena i preklapa se s vodljivom vrpcom te sadrži nesparene elektrone koji se gibaju po kristalnoj strukturi metala pod djelovanjem vanjskog električnog polja u smjeru polja, odnosno tvore tok električne struje. U izolatorima je valentna vrpca popunjena, a zabranjena zona toliko široka da elektroni nemaju dovoljno toplinske energije, niti je mogu dobiti pobudom da bi mogli prijeći u vodljivu vrpcu i biti nosioci naboja, odnosno ne mogu stvoriti tok električne struje uslijed djelovanja vanjskog električnog polja.⁷²⁻⁷⁴

U poluvodičima vodljiva vrpca odijeljena je od potpuno popunjene valentne vrpce uskom zabranjenom zonom. Toplinska energija elektrona pri sobnoj temperaturi je nedostatna da im omogući prijelaz preko zabranjene zone u vodljivu vrpcu. Međutim, zbog razdiobe energije elektrona (Fermi-Diracova razdioba), nemaju svi elektroni istu energiju. Jedan broj elektrona, i pri sobnoj temperaturi, ima energiju koja omogućuje prijelaz zabranjene zone. Prijelazom elektrona iz valentne u vodljivu vrpcu stvaraju se šupljine, prostor s pozitivnim nabojem. Pri konstantnoj temperaturi koncentracije vodljivih elektrona i šupljina su također konstantne, to jest uspostavlja se dinamička ravnoteža:

$$c_e \times c_s = \text{konst.} \quad (2.3.1)$$

gdje je c_e koncentracija elektrona, c_s koncentracija šupljina. Koncentracija vodljivih elektrona u poluvodičima ovisi o temperaturi i širini zabranjene zone:

$$c_e = 2(2\lambda m_e kT / h^2)^{3/2} e^{-E_g/2kT} \quad (2.3.2)$$

gdje je c_e koncentracija vodljivih elektrona, m_e masa elektrona, k Boltzmannova konstanta, E_g širina zabranjene zone poluvodiča, T termodinamička temperatura, a h Planckova konstanta. Djelovanjem vanjskog električnog polja šupljine putuju u suprotnom smjeru od kretanja elektrona iz vodljive vrpce. Dakle, u električnoj vodljivosti poluvodiča sudjeluju elektroni i šupljine. Postoje dvije vrste poluvodiča, čisti ili unutarnji, odnosno intrinzični poluvodiči i primjesni ili dopirani odnosno ekstrinzični poluvodiči.⁷²⁻⁷⁴

Čisti poluvodiči poput silicija ili germanija imaju četiri valentna elektrona. U čistim poluvodičima koncentracija vodljivih elektrona, c_e , jednaka je koncentraciji šupljina c_s . Uvođenjem nečistoća, čisti poluvodič postaje primjesni, mijenja se elektronska struktura poluvodiča, dok kristalna struktura ostaje nepromijenjena. Ako se radi o poluvodičima p-tipa, elementi s kojima se onečišćuju imaju tri valentna elektrona, što uzrokuje povećanje broja šupljina u strukturi te je njihova koncentracija viša od koncentracije elektrona, to jest glavni nosioci naboja su šupljine. Ako se radi o poluvodiču n-tipa, onečišćuje se atomima s pet valentnih elektrona, koncentracija elektrona je viša od koncentracije šupljina te su elektroni glavni nosioci naboja. Koncentracija primjese vrlo je mala, obično jedan dio na milijun. Električna otpornost poluvodiča, ρ , ovisi koncentraciji primjese:

$$\rho = 1 / (eN\mu) \quad (2.3.3)$$

gdje je N koncentracija primjese, μ mobilnost glavnog nosioca naboja, a e elementarni naboj. Nadzirano dodanu nečistoću nazivamo dopant, a postupak unošenja dopiranja (engl. *dopant*, *doping*). Na slici 7 prikazani su dijagrami energijskih vrpce čistoga poluvodiča, poluvodiča s primjesom elemenata s atomima s tri elektrona u vanjskoj ljusci atoma, tj. p-tipa, i poluvodiča onečišćenog atomima s 5 elektrona u vanjskoj ljusci, tj. n-tipa. Preklapanjem atomskih orbitala silicija ili germanija s orbitalama nečistoće formiraju se energijske razine (orbitale) koje se ne prostiru cijelim kristalom poluvodiča, nego su djelomično lokalizirane oko atoma nečistoća. Te energijske razine nalaze se između granica valentne i vodljive vrpce. Na slici 7 prikazane su isprekidanom crtom. U poluvodičima n-tipa, u kojima atomi nečistoće imaju 5 valentnih elektrona, nastale lokalizirane energijske razine blizu su donje granice vodljive vrpce te ih nazivamo razine donora. U poluvodičima p-tipa lokalizirane energijske razine blizu su gornje granice razina u valentnoj vrpce. To su razine akceptora. Nove razine smanjuju širinu zabranjene zone, to jest dopiranjem se povećava vodljivost poluvodiča.⁷²⁻⁷⁴

Zbog različitih koncentracija elektrona i šupljina, različiti su i njihovi kemijski potencijali u poluvodičima p-i n-tipa. Spajanjem poluvodiča p-tipa s poluvodičem n-tipa dolazi do difuzije šupljina iz p-tipa prema n-tipu, odnosno do difuzije elektrona u obratnom smjeru. Na samom spoju stvara se osiromašena zona, tanko područje siromašno nosiocima naboja zbog rekombinacije. Oko zone osiromašenja nalaze se područja s lokalno pozitivnim nabojem (poluvodič p-tipa) i lokalno negativnim nabojem (poluvodič n-tipa) te kontaktnim potencijalom između njih. Polarizacijom spoja na način da se p strana spoji na negativan potencijal, a n strana na pozitivan potencijal dolazi do proširenja osiromašene zone. Veličina osiromašene zone može se procijeniti jednadžbom:

$$d \approx \sqrt{2\kappa\mu\rho(V_0 + V_v)} \quad (2.3.4)$$

Gdje je d dužina osiromašane zone, κ dielektrična konstanta, μ mobilnost glavnog nosioca naboja, ρ električna otpornost poluvodiča, V_0 kontaktni potencijal, a V_v vanjski potencijal. Osiromašena zona ujedno je i aktivno područje poluvodičkog detektora. Ionizacijom u aktivnoj zoni stvaraju se nabijeni parovi elektrona i šupljina, koji se gibaju pod utjecajem električnog polja te stvaraju električni impuls. Stvoreni naboj linearno ovisi o energiji gama zrake ili alfa čestice i energijskoj razlici valantne i vodljive vrpce poluvodiča detektora, koja je konstantna za detektor. Sakupljanjem nastalog naboja na kondenzatorima pretpojačala raste napon na njima, to jest signal se iz domene naboja transformira u domen napona te se pojačava u pojačalu. Integral tog signala proporcionalan je energiji ionizacije. Daljnom elektroničkom obradom, impuls (događaj, detektirana ionizacija) se svrstava u kanal, grupu impulsa definiranog i uskog energijskog raspona. Histogram koji pokazuje broj događaja po kanalima je zapravo spektar detektiranog zračenja. Opisani poluvodički detektori, ovisno o tehničkim izvedbama koriste se za gama ili alfa spektrometriju.^{72–74}

2.3.2. Poluvodički detektori za gama spektrometriju

Karakteristike nužne za učinkovit gama detektor su relativno visoka vjerojatnost apsorpcije potpunog vrha i niska energijska razlika između valantne i vodljive vrpce. Visoka vjerojatnost apsorpcije postiže se korištenjem materijala visokog atomskog broja i konstrukcijom detektora s velikom aktivnom zonom. Prema jednadžbama (2.3.3) i (2.3.4) to se postiže korištenjem visokog napona i vrlo čistih poluvodičkih kristala. Stoga je germanij, koji ima relativno visok atomski broj i nisku razliku energije između valantne i vodljive vrpce te se može proizvesti iznimno čist, najbolji materijal za detektor za gama spektrometriju visoke razlučivosti.

Međutim, niske razlike energije između valentne i vodljive vrpce uzrokuju prijelaze iz valentne u vodljivu vrpcu i pri sobnoj temperaturi što rezultira šumom u spektru. Stoga je germanijev kristal, izoliran vakuumom od samog kućišta detektora, potrebno hladiti na niske temperature, što se najčešće provodi korištenjem tekućeg dušika. Nadalje, detektor je zajedno s posudom postavljen u olovljivu zaštitu, kako bi se smanjio doprinos okolnog zračenja u spektru. Dodatno, za uklanjanje radona iz okoline detektora koristi se pretlak tekućeg dušika kako bi se iz prostora unutar zaštite istisnuo zrak koji ga sadrži. Uzorak, u standardnoj geometriji, postavlja se na zaštitnu kapu iznad samog kristala te se mjeri određeno vrijeme. Efikasnost detekcije pojedinog radionuklida u uzorku ovisi o veličini i geometriji germanijskog detektora, geometriji i matrici uzorka te se može odrediti eksperimentalno, mjerenjem standarda u istoj geometriji i sličnoj (idealno istoj) matrici, ili matematičkim proračunima i Monte Carlo simulacijama. Zabilježeni spektar sadrži doprinose pozadinskog zračenja i one iz uzorka. Pozadinski signal tipičnog detektora sadrži doprinose iz samog detektora, iz okruženja detektora, od radona iz zraka te od kozmičkog zračenja. Pozadinski spektar sastoji se od kontinuuma signala nastalog raznim međudjelovanjima izvora iz okoliša i detektora, te diskretnih vrhova radionuklida iz okoliša. Signal iz uzorka sadrži doprinose gama zraka svih radionuklida prisutnih u uzorku, čime se tvori spektar na način kako je prethodno opisano i prikazano na slici 5. Specifična aktivnost pojedinog radionuklida računa se iz površine identificiranog potpunog vrha umanjene za površinu vrha iz pozadinskog spektra ako postoji, prema jednadžbi:

$$a = \frac{S}{t \times \varepsilon \times I \times m} \times f \quad (2.3.5)$$

gdje je a [Bq kg^{-1}] specifična aktivnost gama emitera u uzorku, S je korigirana površina ispod vrha, t [s] je vrijeme snimanja spektra, $\varepsilon(E)$ je efikasnost mjerne geometrije pri energiji prijelaza E , I je vjerojatnost emisije gama zrake, m [kg] je masa uzorka, a f korekcijski faktor za prava koincidentna sumiranja (*engl. true coincidence summing*). To je pojava prilikom koje detektor, zbog kratkog vremenskog razmaka, dva uzastopna prijelaza istog raspada detektira kao jedan događaj, sa zbrojem energija tih dvaju događaja.^{73,75}

2.3.3. Poluvodički detektori za alfa spektrometriju

Zbog male prodornosti alfa čestica, to jest velike vjerojatnosti njihove apsorpcije u materijalu, za konstrukciju učinkovitog poluvodičkog detektora alfa čestica nema potrebe za voluminoznim poluvodičkim kristalom visokog atomskog broja, budući da se alfa čestice

apsorbiraju te ioniziraju detektor u tankom sloju. Suvremeni alfa spektrometri koriste silicijeve poluvodičke detektore u kojima se alfa čestice do 15 MeV (čime su obuhvaćeni svi poznati alfa emiteri) potpuno apsorbiraju već u 140 μm kristala, što rezultira gotovo 100 % efikasnošću detekcije alfa čestica koje pristignu do detektora.⁷⁴ Zbog više energijske razlike između valentne i vodljive vrpce silicija naspram germanija, (1,1 eV naspram 0,7 eV)⁷³ u slučaju silicijevog detektora, ne dolazi do šuma u signalu uslijed termičke pobude pri sobnoj temperaturi te silicijev alfa detektor nije potrebno hladiti. Silicijevi detektori za alfa-spektrometrijska mjerenja nisu osjetljivi na gama i beta zračenje, što čini alfa spektrometriju iznimno osjetljivom metodom za detekciju niskih aktivnosti alfa emitera. Pozadinski spektar alfa spektrometra ima samo doprinose alfa emitera zaostalih u vakuumu, primjerice radon, iz samog diska na koji se nanosi tanki sloj alfa emitera te iz same komore i detektora. Tipični pozadinski signal detektora iznosi oko 10^{-5} cps.⁷⁶ Uz to, alfa-spektrometrijski sustav pristupačniji je od većine drugih detekcijskih sustava s mogućnošću identifikacije radionuklida. Međutim, alfa spektrometrija zahtjeva kemijsko odjeljivanje elemenata, što je vremenski i financijski zahtjevno te je potreban pristup radiokemijskom laboratoriju. Zbog male prodornosti alfa čestica, glavni problem alfa spektrometrije je omogućiti da alfa čestice u što većem broju dosegnu detektor. To se postiže kemijskim odjeljivanjem ciljanih elemenata, koji se zatim nanose u tankom sloju na držač, najčešće metalni disk, u samoj blizini prozora detektora u vakuumskoj komori (zrak značajno apsorbira alfa čestice te je potreban vakuum za učinkovitu detekciju). U slučaju savršenog jednosloja alfa emitera, dio alfa čestica emitira se od sloja na držaču u smjeru detektora, no ostatak se emitira u drugim smjerovima, čime je geometrijska efikasnost cijelog postava maksimalno 50 %. Zbog nesavršenosti vakuuma ili pripremljenih izvora te samoapsorpcije, realne efikasnosti alfa detektora kreću se od 20 % do 40 % za uzorke u neposrednoj blizini velikog detektora.⁷⁶ Kako bi se kemijsko odjeljivanje i priprema izvora za alfa spektrometriju smatrali valjanim, trebaju zadovoljiti nekoliko uvjeta. Potrebno je ukloniti smetnje koje bi prouzročile smanjeno iskorištenje ciljanog elementa u pripremljenom izvoru. Potrebno je ukloniti elemente koji bi se nanijeli (taložili, elektrodeponirali, itd.) zajedno s ciljanim elementom te tvorili debeli sloj koji povećava samoapsorpciju alfa čestica. Potrebno je ukloniti alfa emitere čiji se vrhovi preklapaju s vrhovima ciljanih emitera. Zbog potpune apsorpcije energije alfa čestice i niskog pozadinskog signala, alfa spektar je uglavnom manje kompleksan od gama spektra. Sastoji se najčešće od nekoliko vrhova pri punoj energiji ciljanog radionuklida i vrhova potomaka koji prirastaju nakon odjeljivanja te drugih izotopa ciljanog

elementa i njihovih potomaka ako su prisutni. Vrhovi nemaju oblik Gaussove krivulje, već su asimetrično razvučeni prema nižim energijama. Naime, alfa čestice se emitiraju pod raznim kutevima te gube različite količine energije prolaskom kroz prozor detektora, što rezultira pomakom detektiranih energija prema nižim vrijednostima.^{74,76}

2.3.4. Usporedba poluvodičkih detektora za alfa i gama spektrometriju

U tablici 2 prikazane su glavne karakteristike dva tipična poluvodička detektorska sustava. Oba sustava su korištena u Laboratoriju za radioekologiju (LRE). Sustav Ortec Alpha Ensemble 6 koristi se za detekciju alfa čestica, a HPGe Canberra GX3018 za detekciju gama zračenja. Prikazani parametri poluvodičkih kristala preuzeti su iz literature.⁷³ Razlučivost, napon i temperatura rada te efikasnost parametri su mjernih postava LRE za mjerenje izvora ²²⁶Ra pripremljenog mikrokoprecipitacijom na aluminijski disk, u slučaju alfa sustava, odnosno uzoraka tla u mjernoj geometriji LRE, u slučaju HPGe sustava.

Tablica 2. Usporedba glavnih karakteristika tipičnog poluvodičkog detektora alfa čestica Ortec Alpha Ensemble 6 i HPGe detektora Canberra GX3018.

Detektorski sustav	Ortec Alpha Ensemble 6	Canberra GX3018 (HPGe)
Primjena	Alfa spektrometrija	Gama spektrometrija
Materijal poluvodičkog kristala	Silicij	Germanij
Z	14	32
Gustoća	2,33 g cm ⁻³	5,32 g cm ⁻³
Razlike energije vodljive i valentne vrpce	1,106 eV	0,67eV
E (tvorba para elektrona i šupljine)	3,62 eV	2,96 eV
Temperatura rada	Sobna temperatura	77 K (hlađen N ₂ (l))
Razlučivost (puna širina vrha pri pola maksimuma)	45 keV ($E_\alpha = 4871$ keV)	1,71 keV ($E_\gamma = 1332,5$ keV)
Napon rada	50 V	3000 V
Efikasnost	28 % (ne ovisi o E_α)	0,64 % ($E_\gamma = 1847$ keV) – 5,23% ($E_\gamma = 99$ keV)

2.3.5. Scintilacijski detektori

Uz poluvodičke detektore, za detekciju ionizirajućeg zračenja često se koriste scintilacijski detektori. Princip njihova rada temelji se na procesu **scintilacije**, emisije elektromagnetskog zračenja UV i VIS dijela spektra nakon pobude uslijed ionizacije. Tvari kod kojih je opažen taj fenomen nazivaju se scintilatori te se koriste za izradu scintilacijskih detektora. Za izradu učinkovitog detektora poželjne su sljedeće karakteristike:⁷⁷ 1. Efikasna pretvorba kinetičke energije ionizirajućih čestica u fotone, 2. Linearnost između energije pobude i intenziteta emisije (broja fotona), 3. Transparentnost tvari za emitiranu svjetlost, 4. Brzo gašenje pobude radi stvaranja impulsa, 5. Dobra optička svojstva i lakoća izrade, 6. Indeks loma blizak staklu ($n = 1,5$) radi učinkovite sprege s optičkim elementima. Međutim, ne postoji optimalni materijal koji zadovoljava sve navedene uvjete za sve vrste zračenja. Uobičajno se za gama i detektore kozmičkog zračenja koriste čvrsti scintilatori, kristali alkalijskih halogenida poput NaI i CsI (za gama zračenje)⁷⁷ ili plastični scintilatori poput polivinil toluena (za kozmičko zračenje).⁵⁰ Za detektore alfa i beta čestica koriste se tekući organski scintilatori. Obje izvedbe scintilatora (čvrsti i tekući) optički su spojeni s fotoosjetljivim detektorom, najčešće fotomultiplikacijskom cijevi. Uslijed fotoelektričnog efekta u fotomultiplikacijskoj cijevi dolazi do oslobođenja elektrona koji se kaskadno umnožavaju djelovanjem vanjskog električnog polja unutar cijevi te generiraju električni impuls. Napon impulsa proporcionalan je energiji ionizacije scintilatora te se prikupljanjem i daljnjom obradom signala stvara spektar.^{77,78}

Tekućinsko scintilacijsko brojenje (*engl. liquid scintillation counting*, LSC) je radioanalitička tehnika koja koristi tekuće scintilatore za detekciju alfa i beta čestica. Nakon kemijskog odjeljivanja ciljanog radionuklida uzorak u tekućem obliku pomiješa se sa scintilacijskim koktelom u standardnoj bočici, koja se postavlja u tamnu komoru optički povezanu s dvije (ili više) fotomultiplikacijske cijevi koje detektiraju fotone u komori te se u njima stvaraju impulsi. Kako bi se izostavili lažni signali i pozadina, u spektar se prihvaćaju samo koincidentni impulsi, to jest samo oni koji su generirani u obje cijevi istovremeno. **Scintilacijski koktel** je otopina koja sadrži **organsko otapalo** s **π -elektronskim** sustavom, **organski scintilator**, **fluorescirajuće tvari** za pomak valnih duljina (*engl. wavelength shifter*), **emulgatore** i **stabilizatore**. Budući da se reflektivnim materijalima zatvara potpuni prostorni kut oko emitera, metoda tekućinskog scintilacijskog brojenja nema gubitaka efikasnosti zbog same geometrije mjernog postava. Međutim, uslijed pretvorbe energije u fotone te detekcije

fotona dolazi do gubitaka efikasnosti, koja iznosi ponekad od 50-ak do 100 %, ovisno o samoj matrici uzorka i energiji čestica. Nakon raspada, čestice pobuđuju scintilatore ili otapalo s kojeg se energija prenosi na scintilatore te scintilatori emitiraju fotone. Fluorescirajuće tvari apsorpcijom i ponovnom emisijom mijenjaju valnu duljinu fotona unutar raspona detekcije fotomultiplikacijske cijevi. Prilikom prijenosa energije unutar opisanog sustava može doći do gašenja pobude, to jest gubitka fotona što uzrokuje pomak spektra energija detekiranih čestica prema nižim energijama te smanjenu efikasnost detekcije. Postoje tri vrste gašenja: kemijsko, fotometrijsko te optičko gašenje. Uzrok **kemijskog gašenja** (*engl. chemical quenching*) su neradijativni procesi disipacije energije ionizacije koje uzrokuju razne tvari u matrici, poput elektronegativnih funkcionalnih skupina ili aniona. Uzrok **fotometrijskog gašenja** je apsorpcija emitiranih fotona unutar uzorka. Obojene tvari prisutne u matrici pridonose fotometrijskom gašenju. **Optičko gašenje** nastaje zbog optičkih prepreka između fotona i fotomultiplikacijske cijevi poput ogrebotina na stijenkama bočica, razdvajanja faza, mehaničkih nečistoća itd.^{77–79}

Stoga, za ispravnu kalibraciju sustava, kvantificira se učinak gašenja parametrom gašenja te se pravi kalibracijska krivulja koja opisuje efikasnost detekcije kao funkciju parametra gašenja. Mjerni sustav korišten u sklopu ovog rada za uobičajeno brojenje pomoću scintilatorskog koktela koristi transformirani spektralni indeks vanjskog standarda (*engl. transformed spectral index external standard*, tSIE). Uzorak se ozrači s vanjskim gama standardom te prilikom Comptonova raspršenja unutar koktela dolazi do scintilacija. Iz dobivenog spektra matematičkom transformacijom dobiva se parametar tSIE, koji iznosi od 0 za potpuno gašenje do 1000 u slučaju kada nema gašenja. Točan algoritam transformacije je zaštićeni proizvod tvrtke Perkin Elmer, Inc. koja je razvila taj parametar. Za tehniku Čerenkovljevog brojenja, koja je opisana u idućem odlomku, koristi se parametar spektralni indeks uzorka (*engl. spectral index sample*, SIS) koji je jednak prosječnoj energiji spektra uzorka. Za svaki radionuklid koji se određuje tehnikom tekućinskog scintilacijskog brojenja potrebno je napraviti zasebnu kalibracijsku krivulju gašenja.^{77–79}

Prilikom prolaska nabijene čestice kroz medij brzinom većom od brzine svjetlosti u tom mediju dolazi do emisije svjetlosti. Intenzitet emitirane svjetlosti ovisi o brzini čestica i indeksu loma medija. Emitirano svjetlo je polarizirano i emitirano anizotropno, pod određenim kutem, tvoreći stožac svjetlosti oko putanje čestice. Kut emisije ovisi o brzini čestice. Ruski fizičar Pavel Aleksejevič Čerenkov prvi je opisao naveden fenomen⁸⁰ te je po njemu nazvan

Čerenkovljevo zračenje. Čerenkovljevo zračenje može se detektirati fotomultiplikacijskim cijevima unutar suvremenih tekućinskih scintilacijskih analizatora. Uzorak se postavlja u bočicu za scintilacijsko brojenje bez scintilacijskog koktela. Ovom tehnikom mogu se detektirati samo visokoenergijski raspad, budući da samo oni emitiraju Čerenkovljeve fotone. Prednost opisane tehnike je diskriminacija pozadinskog zračenja niskih energija. Međutim, zbog anizotropne emisije Čerenkovljevih fotona pada efikasnost detekcije scintilacija.^{77–79}

2.4. Radiokemijska odjeljivanja radionuklida

Fundamentalna je i često kritičan dio analize radionuklida u okolišu potpuno razaranje matrice, nakon kojeg slijedi radiokemijsko odjeljivanje ciljanih radionuklida. Potrebno je ukloniti sve kemijski interferirajuće tvari prisutne u otopini nakon razaranja poput onih koje mogu utjecati na pripremu izvora u slučaju alfa spektrometrije (primjerice neželjena taloženja) ili obojene tvari koje gase scintilacije u slučaju tekućinskog scintilacijskog brojenja. Uz kemijski ometajuće tvari, također je potrebno ukloniti i radiometrijski ometajuće tvari čiji se spektri preklapaju sa spektrima ciljanih radionuklida. U klasičnim radiokemijskim metodama **odjeljivanja** najčešće su korištene tehnike precipitacije, koprecipitacije, destilacije, ionske izmjene, ekstrakcije tekuće – tekuće. Često se navedene tehnike kombiniraju i ponavljaju više puta.

Precipitacije (taloženja) procesi su koji se koriste za uklanjanje nečistoća ili za ukoncentriravanje ciljanog radionuklida (elementa) ili grupa elemenata kojoj pripada. Često su koncentracije ciljanih iona radionuklida preniske da talože sami te se koristi **koprecipitacija**. To je proces prilikom kojeg je ciljani ion taložen kao primjesa zajedno s drugim ionom, sličnog radijusa i karakteristika kristalne rešetke. Iako su precipitacije i koprecipitacije efikasne te ponovljive, to su vremenski zahtjevni kompleksni procesi. **Ekstrakcije tekuće – tekuće** koriste organsko otapalo za ekstrakciju radionuklida. Tehnika je jednostavna i brza te je korištena za odjeljivanje radionuklida od teško odjeljivih alkalijskih i zemnoalkalijskih metala koji čine matricu. Međutim, tehnika troši velike količine otapala koja su lako hlapljiva, otrovna te skupa. Većina ionskih izmjenjivača korištenih za radiokemijska odjeljivanja su organske smole koje sadrže funkcionalne skupine poput $-\text{SO}_3\text{H}$ ili $-\text{COOH}$ za izmjenu kationa ili $-\text{N}(\text{CH}_3)_3\text{OH}$, $-\text{N}(\text{CH}_3)_2\text{OH}$ za izmjenu aniona koje su učvršćene za umreženi polimerni nosač. Kapacitet izmjene ovisi od stupnja umreženosti nosača, vrsti radionuklida koji se odjeljuje, ionskoj jakosti otopine, temperaturi i dr. Iako je učinkovita za odjeljivanja radionuklida, tehnika ionske izmjene vremenski je zahtjevnija.^{81–83}

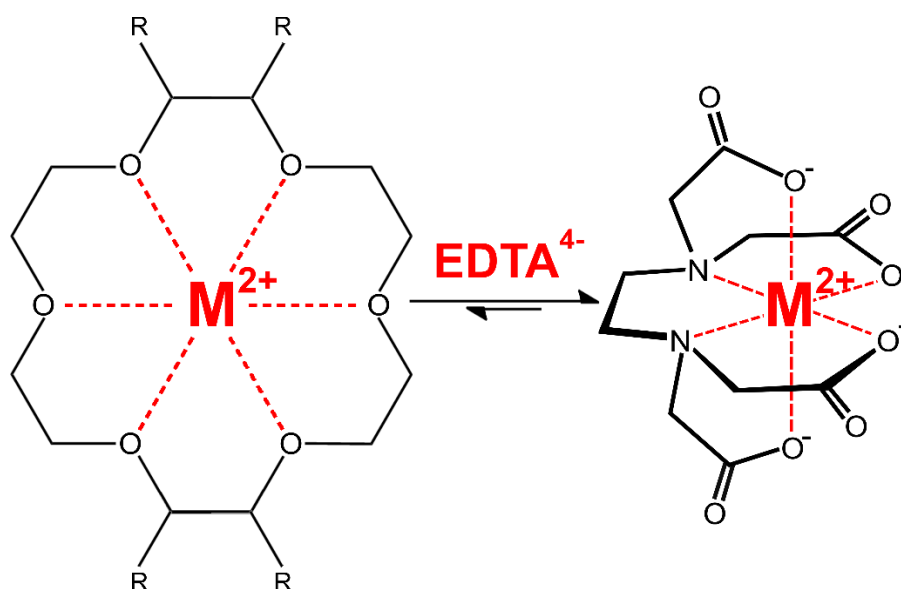
Ekstrakcija na čvrstoj fazi je tehnika pripreme uzoraka koristeći adsorbens na čvrstoj fazi za ekstrakciju ciljanih iona ili molekula iz otopine. Otopina s ciljanim analitom se propušta kroz ekstrakcijski materijal (smolu) koji se nalazi u kromatografskoj koloni. Ekstrakcijski materijal je silikagel ili neki drugi čvrsti nosač na koji je vezan adsorbens. Adsorbens snažno i reverzibilno veže ciljani analit. Za razliku od kromatografskih metoda, odjeljivanje nije temeljeno na razlici između zadržavanja analita te ostalih tvari matrice na čvrstoj fazi, već na selektivnom vezanju analita. Zbog toga je moguća prekoncentracija analita iz uzoraka velikih volumena s niskom koncentracijom analita. Nakon što je propuštena sva otopina te je ciljani analit vezan na ekstrakcijskom materijalu, isti se uklanja s materijala ispiranjem s otopinom koja snažnije veže analit od ekstrakcijskog materijala. Nakon što je analit uspješno ispran s ekstrakcijskog materijala, ispiranjem zaostalih otopina ekstrakcijski materijal je spreman za ponovno korištenje.^{81–83}

Moderan pristup razvijanju radiokemijskih odjeljivanja uključuje automatizaciju procesa odjeljivanja. Navedene klasične tehnike nisu pogodne za automatizaciju. Uključuju motoričke pokrete koji su prekompleksni za jednostavnu automatizaciju, poput miješanja dviju faza u lijevku za odjeljivanje te odjeljivanje iz istog, ili taloženje i uklanjanje taloga s filter papira. Međutim, SPE je tehnika pogodna za automatizaciju. Proces odjeljivanja događa se na granici faza tekuće – čvrsto te su svi potrebni reaktanti i uzorci u tekućem stanju. To omogućuje jednostavno ispumpavanje potrebne otopine te sakupljanje odgovarajuće frakcije. Zbog visoke selektivnosti korištenih ekstrakcijskih materijala, za pročišćavanje i prekoncentraciju ciljanih radionuklida, potrebna ga je mala količina (ekstrakcijskog materijala), troši manje kemikalija i stvara manje otpada od klasičnih metoda. Također, ekstrakcijski materijali često vežu više radionuklida, koji se mogu sekvencijalno eluirati pri različitim uvjetima. Prema tome, SPE tehnika pogodna je za razvijanje automatiziranog sekvencijalnog odjeljivanja radionuklida iz okolišnih matrica. Automatizacija se postiže uporabom računalno kontroliranih pumpi, ventila te uređaja za automatiziranu izmjenu bočica u koje se skupljaju pojedine frakcije^{84,85}

Razvijeni su brojni SPE materijali koji uklanjaju različite metale iz kompleksnih matrica.^{86–88} Za odjeljivanje radionuklida alkalijskih, zemnoalkalijskih te metala p bloka (Pb, Bi i dr.) koriste se makrociklički ligandi^{88–90} poput kruna etera. Tvrtka IBC Advanced Technologies razvila je razne ekstrakcijske materijale za različite elemente pod nazivima AnaLig® za analitičke primjene ili SuperLig® za industrijske procese. AnaLig®Sr-01 je ekstrakcijski materijal (smola) osmišljen ciljano za ione Sr^{2+} , no također veže Pb^{2+} , Ra^{2+} , Ba^{2+}

i druge.^{85,91} AnaLig®Sr-01 kao čvrsti nosač koristi silika gel na koji je najvjerojatnije⁸⁵ vezan modificiran 18-kruna-6 eter.

U Laboratoriju za radioekologiju razvijena je metoda⁸⁵ za sekvencijalno odjeljivanje izotopa Sr, Pb i Ba iz vodenih otopina korištenjem AnaLig®Sr-01 ekstrakcijskog materijala te otopina Na₂H₂EDTA različitih koncentracija i pH vrijednosti kao eluirajućih otopina. Jednadžba reakcije eluiranja metala M²⁺ (M = Pb, Sr, Ra, Ba) s ekstrakcijskog materijala AnaLig®Sr-01 prikazana je na slici 8. U sklopu ovog rada, navedena metoda je modificirana i prilagođena za odjeljivanje izotopa Sr, Pb i Ra iz uzoraka vegetacije te implementirana na sustav za automatizirano sekvencijalno odjeljivanje radionuklida. Čine ga peristaltičke pumpe, protočni ventili te skupljač frakcija s kolone, spojeni s teflonskim cjevčicama te kontrolirani pomoću Raspberry Pi računala programskim jezikom Python. Sustav je detaljno opisan u poglavlju 3.5 *Automatizirano sekvencijalno odjeljivanje radionuklida iz tekuće faze*.



Slika 8. Reakcija eluiranja metala M²⁺ (M = Pb, Sr, Ra, Ba) s ekstrakcijskog materijala AnaLig®Sr-01 korištenjem EDTA⁴⁻.

2.5. Doze ionizirajućeg zračenja

Prema sustavu **Međunarodne komisije za radiološku zaštitu** (engl. *International Commission on Radiological Protection, ICRP*) za kvantifikaciju štetnosti ionizirajućeg zračenja definirane su sljedeće dozimetrijske veličine: **apsorbirana doza** ionizirajućeg zračenja **D** je mjerljiva fizikalna veličina definirana kao energija ionizirajućeg zračenja apsorbirana u materiji po jedinici mase. Mjerna jedinica apsorbirane doze je J kg⁻¹ dok se u dozimetriji koristi SI mjerna

jedinica gray (Gy) $Gy = J\ kg^{-1}$. Biološki učinci zračenja u tkivu ovise o kvaliteti zračenja (vrsti i energiji) te o vrsti tkiva. **Ekvivalentna doza** ionizirajućeg zračenja H_T definirana je za svako tkivo T kao umnožak apsorbirane doze ionizirajućeg zračenja tog tkiva i bezdimenzionalnog težinskog koeficijenta w_R za vrstu zračenja R . Primjerice, težinski faktor za fotone i elektrone iznosi 1, dok za neutrone ovisno o energiji iznosi između 5 – 20 te za alfa čestice iznosi 20. Mjerna jedinica ekvivalentne doze ionizirajućeg zračenja je svert, Sv. Množenjem ekvivalentne doze ionizirajućeg zračenja H_T s težinskim koeficijentom za pojedino tkivo w_T te sumiranjem doprinosa svih tkiva definirana je **efektivna doza** ionizirajućeg zračenja:

$$E = \sum_T w_T \sum_R w_R D_{T,R} \quad (2.5.1)$$

Mjerna jedinica efektivne doze ionizirajućeg zračenja također je Sv. Efektivna doza ionizirajućeg zračenja je funkcija količine apsorbirane energije, vrste zračenja i tkiva koje izloženo zračenju. Ona je mjera koliko je pojedino ozračivanje štetno za organizam. ICRP preporuča da efektivna doza za članove opće populacije dok su izloženi svakodnevnom okruženju, koja ne uključuje prirodne pozadinske doprinose i doprinose medicine, ne prelazi 1 mSv godišnje.⁹²

Kumulativni doprinos svih ekvivalentnih doza ionizirajućeg zračenja koje u tijelo unosimo hranom i pićem naziva se **ingestijska doza** ionizirajućeg zračenja. Izbor hrane i prehrambeni obrasci unutar populacije mijenjaju se s dobi, a različite dobne skupine pokazuju i različitu osjetljivost na utjecaj radionuklida. Stoga ICRP za izračun ingestivskih doza uzima u obzir skupine dojenčadi, jednogodišnjaka, petogodišnjaka, desetogodišnjaka, petnaestogodišnjaka te odraslih. Ingestivska doza E_k za dobnu skupinu k računa se prema:

$$E_k = \sum_i \sum_j a_{ij} \times e_{ik} \times p_{jk} \quad (2.5.2)$$

gdje je a_{ij} [$Bq\ kg^{-1}$] specifična aktivnost radionuklida i u skupini hrane j , e_{ik} [$Sv\ Bq^{-1}$] je koeficijent ingestivske doze ionizirajućeg zračenja dobne skupine k za radionuklid i , dok je p_{jk} [$kg\ a^{-1}$] godišnja potrošnja hrane iz skupine j za dobnu skupinu k . Koeficijent ingestivske doze ionizirajućeg zračenja za radionuklid i različit je za dobne skupine. Ovisi o vrsti i energiji raspada radionuklida, biološkom vremenu poluživota i mnogim drugim metaboličkim parametrima.²³

§ 3. EKSPERIMENTALNI DIO

3.1. Uzorci i uzorkovanje

Predmet proučavanja ovog rada je radioaktivnost u komercijalno dostupnoj dječjoj hrani u Hrvatskoj te **poljoprivredne kulture** i pripadajuća **tla OPG** Hrvatske. Istraživanje je provedeno u sklopu projekta Hrvatske zaklade za znanost (HRZZ) „Radionuklidi u dječjoj hrani i razvoj metoda za određivanje njihovih niskih aktivnosti“, IP-2019-04-1401 (*engl. Radionuclides in children food and novel methods for low level activity determination, RiChFALL*). U sklopu RiChFALL projekta, uz ovdje provedena mjerenja metodom **gama spektrometrije**, također su korišteni rezultati alfa-spektrometrijskih analiza ^{210}Po , ^{228}Th , ^{230}Th i ^{232}Th te LSC analize ^{90}Sr [ref. 21,22] radi potpunosti izračuna **ingestijskih doza** i proračuna **faktora prijenosa**.

3.1.1. Komercijalna dječja hrana

Komercijalna dječja hrana proizvedena u Hrvatskoj ili EU, ukupno 31 proizvod, nabavljena je u trgovačkim centrima u količinama potrebnim za provedbu analiza. Hrana je prema sadržaju namirnica podijeljena u pet skupina te je unutar skupina podijeljenja u podskupine prema dobi konzumenta za koju je proizvod namijenjen. Skupine, podskupine i broj uzoraka unutar njih prikazani su u tablici 3.

Tablica 3. Uzorci komercijalne dječje hrane dostupne u Hrvatskoj podijeljeni u skupine po sastavu te podskupine prema namijenjenoj dobi konzumenta.

Skupina	Broj uzoraka	Dob (mjeseci)	Broj uzoraka u podskupini	Oznaka podskupine
Mlijeko u prahu	13	0 - 6	6	PM1
		Od 6	3	PM2
		Od 10	4	PM3
Žitne kašice u prahu	6	Od 4	2	C4
		Od 5	3	C5
		Od 6	1	C6
Gotove voćne kašice	2	Od 4	2	F4
Homogenizirani obrok s povrćem	3	Od 5	3	V5
Homogenizirani obrok s povrćem i mesom	7	Od 4	2	M4
		Od 5	4	M5
		Od 12	1	M12

U svim navedenim uzorcima određeni su **gama emiteri** spektrometrijski, korištenjem germanijevog detektora visoke čistoće. Također je u svim uzorcima određen ^{90}Sr , korištenjem proporcionalnog brojača ili tekućinskog scintilacijskog brojača tehnikom Čerenkovljeva brojenja. Dodatne analize rađene su na smanjenom broju uzoraka, što je prikazano u tablici 4.

Tablica 4. Dodatne radiometrijske analize provedene na podskupu uzoraka komercijalno dostupne dječje hrane u Hrvatskoj.

Vrsta analize	Podskupina									
	PM1	PM2	PM3	C4	C5	F4	V5	M4	M5	M12
Unaprijeđena gama spektrometrija	6	0	0	0	0	1	3	1	4	1
Alfa spektrometrija ^{210}Po	6	2	3	3	3	1	3	1	4	1
Alfa spektrometrija ^{228}Th , ^{230}Th i ^{232}Th	6	3	2	2	1	1	2	1	4	1

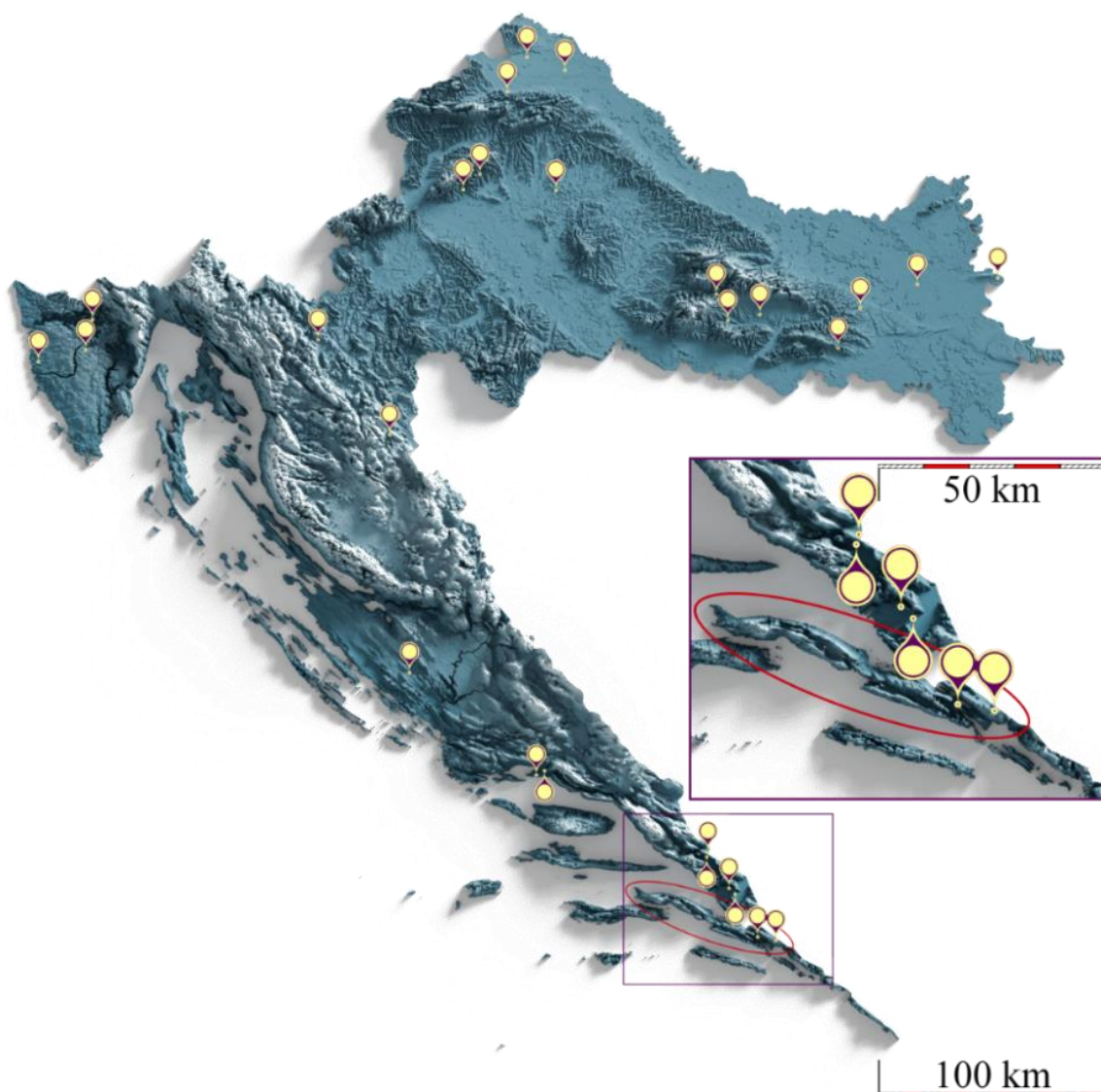
3.1.2. Poljoprivredne kulture i tla OPG Hrvatske

Uzorkovano je 69 uzoraka 25 različitih vrsta poljoprivrednih kultura s 26 OPG Hrvatske. Lokacije OPG prikazane su na slici 9, dok su koordinate globalnog položajnog sustava (*engl. Global Positioning System, GPS*) mjesta u kojem je OPG registriran prikazane u tablici D2 u

dodatku. Sve kulture, osim žitarica, svježe su ubrane s polja ili iz vrta te je također uzorkovano tlo iz kojeg su kulture uzgajane. Kulture su podijeljene u 8 skupina prema napucima IAEA⁷⁰, što je vidljivo u tablici 5. Četiri dubine tla, 0 – 5 cm, 5 – 10 cm, 10 – 20 cm te 50 cm, za nekoliko parcela po lokaciji OPG, uzorkovana su pomoću motornog svrdla. Uzorkovanje je provedeno na način da su sa parcele na kojoj je uzgajana kultura uzorkovana tla sa barem tri, u slučaju većih parcela četiri točke, te su tla spojena u jedan reprezentativni primjerak po dubini za tu parcelu. U slučaju kada je više kultura uzgajano na istoj parceli isti uzorak tla parcele sparen je s više kultura.

Tablica 5. Podijela uzorkovanih kultura u biljne grupe prema IAEA.⁷⁰

Biljna skupina	Broj uzoraka u skupini	Kultura (broj uzoraka kulture)
Gomolji	14	Krumpir (8), batat (6)
Korijenasto povrće	7	Mrkva (3), cikla (4)
Lisnato povrće	9	Kelj (2), špinat (1), cvjetača (2), brokula (1), kupus (1), blitva (2)
Plodovito povrće	19	Krastavac (1), tikvica (3), tikva (10), paprika (4), patlidžan (1)
Voće	11	Jabuka (6), mandarina (2), kruška (2), kaki jabuka (1)
Orašasti plodovi	2	Lješnjak (1), orah (1)
Žitarice	2	Pšenica (1), pir (1)
Začinsko bilje	5	Kamilica (5), smilje (1), ružmarin (1), kadulja (1)



Slika 9. Lokacije OPG na karti Hrvatske sa kojih su uzorkovana kulture i tla.

Na svim uzorcima kultura i tla provedena je gama-spektrometrijska analiza. Podskup od 37 uzoraka analiziran je prvotnim gama-spektrometrijskim sustavom, 8 uzoraka analizirano je s oba sustava, dok su 24 uzorka analizirana nadograđenim gama-spektrometrijskim sustavom. Također je za većinu uzoraka napravljena analiza ^{90}Sr . Izuzetak je bilo nekoliko uzoraka kora, kojih nije bilo dovoljno za analizu. Budući da analiza ^{210}Po zahtjeva provođenje analize unutar 6 mjeseci od uzorkovanja, zbog vremena poluraspada ^{210}Po i prirasta iz ^{210}Pb , napravljena je na 29 uzoraka kultura.

3.2. Priprema uzoraka za analize

3.2.1. Predpriprema

Predpriprema uzoraka obuhvaća sve korake pripreme koji su zajednički svim korištenim metodama: gama spektrometriji, alfa spektrometriji i tekućinskom scintilacijskom brojenju. U sljedećih nekoliko odlomaka opisana je predpriprema prema vrsti uzorka.

Komercijalna mlijeka u prahu i žitne pahuljice u prahu ne zahtijevaju nikakvu posebnu predpripremu te su u svom izvornom obliku proslijeđena na daljnju obradu za odgovarajuće metode.

Gotove voćne kašice, homogenizirani obroci s povrćem te homogenizirani obroci s mesom posušeni su na 105 °C do konstantne mase. Mala količina uzoraka namijenjena za alfa-spektrometrijsko određivanje ^{210}Po sušena je na 70 °C do konstantne mase, kako bi se sačuvao polonij, koji se gubi pri višim temperaturama. Posušeni uzorci dalje su mljeveni u grubi prah pomoću kuhinjskih sjeckalica za namirnice te su praškasti uzorci pripremljeni za daljnje analize po potrebi.

Poljoprivredne kulture su oprane pod mlazom vode i uklonjene su mehaničke nečistoće. Potom su plodovi oguljeni te su izdvojeni dijelovi biljke koji se ne jedu, poput jezgara ploda s košticama, lišća, peteljke, itd. Oguljeni plodovi narezani su na sitnije komade. Plodovi i kore zasebno su analizirani, posušeni su do konstantne mase na 105 °C, odnosno na 70 °C za potrebe analize specifične aktivnosti ^{210}Po . Suhi uzorci kultura usitnjeni su u grubi prah pomoću kuhinjske sjeckalice.

Iz uzoraka tla su otklonjene mehaničke nečistoće poput kamečića, lišća, granja, gujavica, itd. Zatim su tla posušena do konstantne mase na 105 °C, odnosno na 70 °C za potrebe analize specifične aktivnosti ^{210}Po . Suho tlo samljeveno je u rotacijskom mlinu s keramičkim kuglicama. Usitnjeno tlo prosijano je kroz sito gradacije 250 μm .

3.2.2. Priprema uzoraka za gama spektrometriju

Nakon predpripreme uzoraka, za potrebe gama spektrometrije, suhi usitnjeni uzorci homogeno su pakirani do vrha u standardne cilindrične polipropilenske posudice s poklopcem, promjera 62 mm, visine 49 mm te debljine stijenke 1 mm. Nakon vaganja, posudice su hermetički zatvorene omatanjem samoljepljivom PVC vrpcom oko spoja posudice i poklopca. Uzorke je potrebno hermetički zatvoriti kako ne bi došlo do gubitka plinovitih potomaka raspadnih nizova – izotopa radona, ^{222}Rn iz ^{238}U raspadnog niza, odnosno ^{220}Rn iz ^{232}Th raspadnog niza. Uzorci

su spremni za detekciju na gama spektrometru nakon približno četiri tjedna, kada je uspostavljena sekularna ravnoteža između ^{226}Ra i njegovih kratkoživućih potomaka ^{214}Pb i ^{214}Bi iz ^{238}U raspadnog niza, odnosno između ^{228}Th i kratkoživućih potomaka ^{212}Pb i ^{212}Bi iz ^{232}Th raspadnog niza.

3.2.3. Priprema uzoraka za alfa spektrometriju ^{210}Po

Kemijsko odjeljivanje polonija provedeno je prema postupcima opisanim u literaturi^{93,94} uz male izmjene. Za provedbu analize korišteno je približno 5 g suhog uzorka. Svakom uzorku dodano je 0,03 Bq ^{209}Po (NIST, standardni referentni materijal 4326a) koji se koristi kao obilježivač za određivanje kemijskog iskorištenja analize. Uzorcima je dodano 25 mL koncentrirane HNO_3 i 5 mL koncentrirane HCl te su ostavljeno preko noći na sobnoj temperaturi. Sljedećeg dana, uzorci su pažljivo zagrijani u Erlenmeyerovim tikvicama pokrivenim satnim staklom kako bi se spriječili gubici polonija. Nakon početne digestije, uzorci su ohlađeni. Zatim je svakom uzorku pažljivo dodano 10 mL 30 % H_2O_2 te su ponovno kratko zagrijani na grijačoj ploči. Nakon hlađenja, dobivena otopina profiltrirana je kroz filter papir crna vrpca kako bi se uklonili svi organski ostaci i nečistoće, a zatim uparavana do suhog na 80 °C. Zatim je dodan 1 mL HCl i uzorak je ponovno zagrijavan do suhog. Preostali ostatak je konačno otopljen u 0,5 M HCl uz dodatak približno 0,4 g askorbinske kiseline. Polonij se spontano taložio iz otopine na Ag disk, uz pomoć zagrijavanja i miješanja te mu je specifična aktivnost određena alfa spektrometrom. Iskorištenje je variralo od 72 do 99 %.

3.2.4. Priprema uzoraka za alfa spektrometriju izotopa torija

Za pripremu torijevih izvora za alfa spektrometriju, posušeni uzorci gotovih homogeniziranih obroka (ekvivalent 500 – 1000 g svježje tvari) i mliječne formule (100 g) spaljeni su tijekom 24 sata na 650 °C kako bi se uklonila organska tvar. Pepelima uzoraka (2 – 5 g) dodano je 15 mL 5 M HNO_3 te obilježivač ^{229}Th ($a = 0,02 \text{ Bq mL}^{-1}$). Otopine su uparene do suha te je uparni ostatak ponovno otopljen u 10 mL 2 M HNO_3 . Otopina je nanijeta na *TransUranic* (TRU) smolu, predhodno kondicioniranu s otopinama 2M HNO_3 te 2M HNO_3 / 0,01 M NaNO_2 kako bi se odijelio torij.⁹⁵ Nakon provođenja otopine uzoraka, kolona je isprana otopinama 2 M HNO_3 / 0,01 M NaNO_2 (15 mL), 4 M HCl (20 mL) te 4 M HCl / 0,01 M TiCl_3 (10 mL). Th je eluiran s 1,5 M HCl (10 mL) te mikroprecipitiran dodatkom vode (10 mL), 0,1 mL Nd^{3+} (0,5 mg mL^{-1}) i 5 mL HF (40 %).^{96,97} Mikroprecipitati su filtrirani kroz 0,1 μm polipropilenski Resolve® filter (Eichrom technologies, Lisle, IL, SAD), promjera 25 mm te

zajedno s filterom posušeni ispod IR lampe te učvršćeni na aluminijski disk. Aktivnosti izotopa Th izmjerene su alfa spektrometrom. Određena iskorištenja odjeljivanja iznosila su između 42 i 99 %.

3.2.5. Priprema uzoraka za analizu ^{90}Sr metodom tekućinskog scintilacijskog brojenja

Posušeni i homogenizirani uzorci hrane i kultura spaljeni su pri 600 °C te je količina pepela koja odgovara 1 kg svježih namirnica, odnosno hrane, otopljena u 5 M HNO_3 uz dodatak poznate količine stabilnog stroncija koji služi kao obilježivač. Otopine su filtrirane te uparene skoro do suhog nakon čega je zaostala tvar ponovno otopljena u 5 M HNO_3 te je nastala otopina propuštena kroz Sr smolu koja veže Sr^{2+} . Vezani Sr eluiran je odgovarajućom otopinom te je frakcija pripremljena za daljnja LSC mjerenja.⁹⁸ Za razvitak metode odjeljivanja izotopa Ra, skupljane su frakcije podskupa uzoraka kultura nakon odjeljivanja Sr te im je dodan obilježivač ^{133}Ba .

Za analizu tla, stroncij je odjeljen pomoću kationskog izmjenjivača. Uzorcima tala (50 g) dodana je poznata količina stabilnog stroncija (obilježivač) te su pomiješani s deioniziranom vodom i kationskim izmjenjivačem Amberlite IR-120 u protoniranoj formi. Kationski izmjenjivač odjeljen je od tla ispiranjem istog kroz sito te su kationi eluirani s njega pomoću 5 M HNO_3 . Dobivena otopina propuštena je kroz Sr smolu koja veže Sr^{2+} . Vezani Sr eluiran je odgovarajućom otopinom te je frakcija pripremljena za daljnja LSC mjerenja.^{98,99}

U oba slučaja stroncij je eluiran s Sr smole pomoću deionizirane vode te je dobivena otopina uparena skoro do suha. Uparni ostatak pomiješan je s dušičnom kiselinom te prenesen u plastične bočice za brojenje na scintilacijskom brojaču. Nakon stupanja prijelazne ravnoteže između ^{90}Sr i njegovog potomka ^{90}Y , aktivnost ^{90}Y mjerena je tehnikom Čerenkovljevog brojenja pomoću tekućinskog scintilacijskog brojača Quantulus GCT 6220.

3.2.6. Priprema uzoraka za eksperimente automatiziranog odjeljivanja

Za eksperimente odjeljivanja korištene su tri vrste uzoraka: modelne otopine, referentni materijali poznate aktivnosti ciljanih radionuklida te uzorci poljoprivrednih kultura, u kojima su određene aktivnosti ciljanih radionuklida.

Modelne otopine pripremljene su dodavanjem poznate količine iona Pb^{2+} i Sr^{2+} te poznate količine obilježivača ^{133}Ba u 0,05 M otopinu HNO_3 .

Referentni materijali odvagani su te obogaćeni poznatom količinom iona Pb^{2+} , Sr^{2+} te obilježivača ^{133}Ba . Otopine referentnih materijala pripremljene su korištenjem mikrovalne

digestije. Za digestiju je odvagano 0,5 g referentnog materijala u posudu za mikrovalnu digestiju te je dodano 5 mL koncentrirane HNO_3 i 1 mL 30 % otopine H_2O_2 . Pokrenut je odgovarajući protokol digestije sustava za zadanu matricu uzorka.

Budući da su koncentracije aktivnosti u stvarnim uzorcima značajno manje nego u referentnim materijalima, za eksperimente odjeljivanja korišteni su i realni uzorci poljoprivrednih kultura, paljeni na 450 ili 600 °C. Pepelima su dodani odgovarajući ioni Pb^{2+} i Sr^{2+} odnosno obilježivač ^{133}Ba te su razoreni korištenjem mikrovalne digestije. Za svakih 0,25 g pepela u sustav za mikrovalnu digestiju dodano je 5 mL koncentrirane HNO_3 te 1 mL 30 % otopine H_2O_2 . Korišteni su odgovarajući protokoli sustava za zadanu matricu uzorka. Zbog veće količine pepela, jedan uzorak (RF-MRK-VS) je razoren u kiselini, zagrijavanjem na grijačoj ploči, korištenjem istih volumena kiseline i vodikova peroksida kao za mikrovalno razaranje.

Koncentracije iona nakon odjeljivanja, odnosno iskorištenja odjeljivanja stroncija i olova određena su pomoću plamene atomske apsorpcijske spektrometrije, dok je iskorištenje odjeljivanja barija i radija određeno pomoću gama spektrometrije korištenjem ^{133}Ba kao obilježivača.

Za analize aktivnosti ^{210}Pb , frakcijama u kojima se nalazilo olovo je dodano 15 mL Ultima Gold™ LLT scintilacijskog koktela te su izmjerene aktivnosti ^{210}Pb i potomka ^{210}Bi , nakon uspostave sekularne ravnoteže tekućinskim scintilacijskim brojačem. Aktivnosti ^{90}Sr određene su Čerenkovljevim brojenjem prirasta aktivnosti ^{90}Y , izravno iz odjeljenih frakcija, bez ikakve dodatne pripreme.

Aktivnosti ^{226}Ra izmjerene su alfa spektrometrom nakon pripreme izvora mikroprecipitacijom. Odjeljenoj frakciji koja sadrži Ba i Ra dodano je 5 mL 10 % otopine $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ te joj je ugođen pH u rasponu između 4,0 i 4,5 dodatkom octene kiseline (oko 7,5 mL). Otopine su zagrijavane 2 minute u vodenoj kupelji pri 85 °C te hlađene 30 minuta u kupelji pri sobnoj temperaturi. Otopina je ostavljena 2 minute u ultrazvučnoj kupelji te je filtrirana pomoću vakuuma preko polietersulfonskih membranskih filtera veličine pore 0,1 μm . Kiveta sa otopinom i lijevak isprani su etanolom te je filter ostavljen da se posuši na zraku. Suhi filter je zalijepljen pomoću univerzalnog uredskog lijepila za aluminijski disk koji služi kao izvor za alfa spektrometriju.

3.3. Radioanalitičke metode

3.3.1. Alfa spektrometrija

Svi pripremljeni alfa izvori brojani su pomoću Ortec Alpha Ensemble 6 alfa-spektrometrijskog sustava sa silicijevim poluvodičkim detektorima. Mjerenja su trajala do 500 000 s ili dok se ne sakupi više od tisuću impulsa u odgovarajućim vrhovima. Aktivnosti su računate iz odgovarajućeg vrha ciljanog radionuklida. Za izračun aktivnosti ^{210}Po efikasnost je izračunata iz mjerenja standardnog diska proizvedenog elektrodepozicijom, međutim geometrija tog standarda ne odgovara geometriji istaloženog Ra diska. Stoga je za kalibraciju efikasnosti geometrije Ra diska pripremljen Ra disk taloženjem Ra iz standardne otopine poznate aktivnosti kako je opisano u prethodnom potpoglavlju.

3.3.2. Tekućinsko scintilacijsko brojenje

Aktivnost ^{210}Pb određena je tekućinskim scintilacijskim brojenjem. Nakon odjeljivanja, Pb frakcija (5 mL) pomiješana je s 15 mL scintilacijskog koktela Ultima Gold™ LLT te je ostavljena barem 30 dana radi postizanja radiokemijske ravnoteže između ^{210}Pb i ^{210}Bi . U uzorcima je nakon postizanja ravnoteže izmjerena kumulativna aktivnost ^{210}Pb i ^{210}Bi te je pomoću prije poznate efikasnosti određena specifična aktivnost ^{210}Pb u uzorcima.

Aktivnost ^{90}Sr određena je Čerenkovljevim brojenjem. Nakon odjeljivanja Sr frakcija (20 mL) ostavljena je radi postizanja radiokemijske ravnoteže između ^{90}Sr i ^{90}Y . U uzorcima je nakon postizanja ravnoteže izmjerena aktivnost ^{90}Y te je pomoću prije poznate efikasnosti određena aktivnost ^{90}Sr .

3.3.3. Gama spektrometrija

Gama-spektrometrijske analize izvršene su pomoću dva germanijeva detektora visoke čistoće, planarni, oznake B2 i koaksijalni, oznake E, oba s ugljikovim kompozitnim prozorom i mogućnošću mjerenja na niskim energijama ($> 3 \text{ keV}$). Planarni detektor oznake B2 je za vrijeme istraživanja nadograđen aktivnim štitom za smanjenje utjecaja kozmičkog zračenja u pozadinskom spektru. Stoga je korišten za mjerenje svih vrsta uzoraka hrane (dječja hrana i poljoprivredne kulture), u kojima se očekuju niske razine aktivnosti.

Detektor oznake B2 je germanijev detektor visoke čistoće sa širokim energijskim rasponom, Canberra BE5030P, rezolucije 1,95 keV pri energiji vrha ^{60}Co 1332,5 keV, relativne efikasnosti 48 %. Osim za mjerenja uzoraka hrane, također je korišten i za neke uzorke tla.

Detektor oznake E, je germanijev detektor visoke čistoće, Canberra GX3018, koaksijalne izvedbe, s proširenim energijskim rasponom, rezolucije 1,71 keV pri energiji potpunog vrha ^{60}Co 1332,5 keV, relativne efikasnosti 30 %. Detektor E, uz detektor B2, korišten je za mjerenje nekih uzoraka tla.

Efikasnost i energijska kalibracija oba detektora provjeravaju se jednom tjedno pomoću točkastog izvora koji sadržava ^{137}Cs i ^{60}Co , odnosno jednom mjesečno pomoću izvora zračenja definiranog volumena koji sadržava ^{137}Cs , ^{60}Co i ^{241}Am . Pozadinski spektri mjere se u pravilu u trajanju od 300 000 s svaka tri mjeseca. Oba detektora okarakterizirani su od strane proizvođača što omogućuje korištenje programskog alata LabSOCS za matematičko određivanje kalibracija efikasnosti mjernog postava.

Uzorci tla (nakon postignute sekularne ravnoteže) postavljeni su na središte detektorske zaštitne kape, unutar olovnog štita detektora te su u pravilu mjereni 80 000 s, dok su uzroci hrane postavljeni na isti način i mjereni ovisno o masi uzorka i raspoloživim vremenom detektora, od 100 000 s do 300 000 s za uzorke najmanje mase. Referentni datum za proračun aktivnosti svih nuklida je postavljen na dan uzorkovanja uzoraka. Nakon mjerenja, spektri su analizirani pomoću programskog paketa GENIE2000. Korištena je matematička kalibracija efikasnosti mjerne geometrije, izračunata prema LabSOCS metodologiji.

Za izračun krivulje efikasnosti, pomoću programa unutar paketa GENIE 2000, modelirana je standardna polipropilenska posudica promjera 62 mm, visine 49 mm te debljine stijenke 1 mm postavljena na središte zaštitne kape germanijevog detektora. Za modeliranje različitih matrica mjenjao se sastav i gustoća punjenja posudice. Za modele uzoraka tla elementni sastav punjenja je: H 2,66 %, C 2,52 %, N 0,08 %, O 57,95 %, Mg 0,50 %, Al 4,80 %, Si 25,91 %, S 0,04 %, K 0,36 %, Ca 0,82 %, Ti 0,14 %, Mn 0,04 % i Fe 4,18 %, a gustoća varira od $0,88 \text{ g mL}^{-1}$ (120 g / posudici) do $1,47 \text{ g mL}^{-1}$ (200 g / posudici). Za modele uzorka kultura i hrane elementni sastav punjenja je: H 6,22 %, C 44,45 %, O 49,34 %, a gustoća varira od $0,22 \text{ g mL}^{-1}$ (30 g po posudici) do $0,88 \text{ g mL}^{-1}$ (120 g / posudici). Modeli su izrađeni za posudice s uzorcima masa koje su umnošci mase 10 g i cijelih brojeva. U slučaju kada količina uzorka nije bila dostatna za potpuno ispuniti posudu, izrađen je model djelomično ispunjene posude prema realnoj geometriji. Na temelju karakterizacije detektora, unesene geometrije, elementnog sastava i gustoće, izračunata je krivulja efikasnosti mjernog sustava. Valjanost matematičke kalibracije efikasnosti provjerena je korištenjem interkomparacijskih i

referentnih uzoraka tla i vegetacije. Za kalibraciju efikasnosti spektra mjerenog uzorka, korišten je model odgovarajućeg detektora i matrice te najsličnije mase uzorka.

Nakon kalibracije efikasnosti, određeni su vrhovi u spektru korištenjem metode druge derivacije. Zatim su bazna linija i Gaussove krivulje prilagođene oko zabilježenih točaka spektra. Nakon integracije Gaussove krivulje te umanjenja integrala s odgovarajućim integralom iz spektra pozadinskog zračenja, specifična aktivnost pojedinog emitera izračunata iz pojedinačnog prijelaza korištenjem jednadžbe (2.3.5):

$$a = \frac{S}{t \times \epsilon \times I \times m} \times f \quad (2.3.5)$$

gdje je a [Bq kg^{-1}] specifična aktivnost gama emitera u suhoj tvari, S je korigirana površina ispod vrha, t [s] je stvarno vrijeme (engl. *live time*) snimanja spektra, $\epsilon(E)$ je efikasnost mjerne geometrije pri energiji prijelaza E , I je vjerojatnost emisije gama zrake, m [kg] je masa suhog uzorka, a f korekcijski faktor za prava koincidentna sumiranja (engl. *true coincidence summing*). To je pojava prilikom koje detektor dva uzastopna prijelaza istog raspada detektira kao jedan, zbog vrlo kratkog vremenskog razmaka, sa zbrojem energija tih dvaju događaja. Za modeliranu geometriju mjernog postava navedeni faktor sumiranja računa programski paket Genie 2000.

Neki nuklidi imaju više gama prijelaza, ili se određuju indirektno preko više potomaka gama emitera. Tada je specifična aktivnost nuklida izračunata kao težinski prosjek svih pojedinih vrijednosti iz detektiranih prijelaza, gdje je težina pojedine vrijednosti određena prema mjernoj nesigurnosti. U tablici 6 prikazani su nuklidi određivani gama spektrometrijom, korištene energije i vjerojatnosti prijelaza preuzete iz baze podataka projekta *Decay Data Evaluation Project* (DDEP).²⁹

Tablica 6. Nuklidi određeni gama spektrometrijom, uz odgovarajuće energije E i vjerojatnosti prijelaza I .²⁹

Ciljani radionuklid	Određivan preko	E / keV	I / %
⁴⁰ K	direktno	1460,82	10,55
¹³⁷ Cs	direktno	661,66	85,01
²¹⁰ Pb	direktno	46,54	4,252
²²⁶ Ra	²¹⁴ Pb	295,22	18,414
		351,93	35,6
	²¹⁴ Bi	609,31	45,49
		1120,29	14,91
		1764,49	15,31
²²⁸ Ra	²²⁸ Ac	338,32	11,4
		911,2	26,2
		968,96	15,9
²²⁸ Th	²¹² Pb	238,63	43,6
	²⁰⁸ Tl*	583,19	85,0
	²¹² Bi	727,33	6,65
²³⁵ U	direktno	143,767	10,94
		163,356	5,08
		185,72*	57
²³⁸ U	²³⁴ Th	92,38‡	2,18
		92,8‡	2,15
	^{234m} Pa	1001,026	0,847

* - grananje raspadnog niza, potreban korekcijski faktor 35,93 %

‡ - prijelaz se preklapa s prijelazom ²²⁶Ra. ²²⁶Ra je izračunat iz potomaka te se njegovi doprinosi vrhu umanjuje za izračun specifične aktivnosti ²³⁵U

‡ - nemogućnost razlučivanja pojedinih prijelaza, računa se kao jedan vrh s vjerojatnošću prijelaza jednako zbroju vjerojatnosti pojedinih prijelaza

Za uzorke tla pretpostavljeno je da je jedini prekid sekularne ravnoteže napravljen prilikom uzorkovanja kada je ispušten radon te da su raspadni nizovi u potpunoj ravnoteži četiri tjedna nakon zatvaranja uzoraka u posudice. Prema tome, specifične aktivnosti radionuklida ²²⁸Th i ²²⁸Ra međusobno su jednake te je specifična aktivnost roditelja niza ²³²Th također jednaka. Međutim, to nije slučaj za biljke i hranu. Prilikom transporta radionuklida u biljku (ili životinju

te naposljetku u hranu) zbog složenosti procesa te različitog kemijskog ponašanja pojedinih elemenata dolazi do prekida sekularne ravnoteže u raspadnim nizovima. Za uzorke hrane je nakon mjerenja spektra napravljena korekcija prirasta ^{228}Th iz ^{228}Ra u vremenu između uzorkovanja i mjerenja te se sve iznese aktivnosti odnose na dan uzorkovanja.

3.4. Unaprijeđenje gama-spektrometrijskog sustava antikoincidenциjskom spregom sa scintilacijskim detektorima

3.4.1. Početni gama-spektrometrijski mjerni postav

Početni gama-spektrometrijski mjerni postav temeljen je na **germanijevom detektoru** (visoke čistoće) **širokog energijskog odziva** (engl. *Broad energy germanium*, **BEGe**) Canberra BE5030P realtivne efikasnosti 48 % i rezolucije 1,80 keV (širina Gaussove krivulje na pola maksimalne visine) pri 1332 keV. Unutar takvog detektora germanijev kristal postavljen je u aluminijsko kućište s gornjim prozorom, iznad kojeg se postavlja uzorak, od ugljičnog kompozita. Takav prozor apsorbira manje gama zračenja te omogućava i prolaz i detekciju zraka niskih energija. Detektor je postavljen u olovljevu zaštitu Canberra model 777, za smanjenje utjecaja okolišnog zračenja. Zaštita je sačinjena od olovne stijenke debljine 15 cm, presvučene sa slojem kositra debljine 1 mm te slojem bakra debljine 1,5 mm. Kositar se postavlja jer apsorbira interferirajuće rendgenske zrake olova (uslijed pobude kozmičkim zračenjem) te emitira svoje rendgenske zrake niže energije. Stoga se nakon kositra postavlja i sloj bakra koji apsorbira rendgenske zrake kositra, dok su nastale rendgenske zrake bakra preniskih energija da bi stvarale pozadinski šum u spektru. Na štiti se nalazi otvor za istiskivanje zraka iz volumena oko detektora, korištenjem pretlaka tekućeg dušika koji se koristi za hlađenje germanijevog kristala.

Opisani sustav nadograđen je s 3 scintilacijska detektora – ploče (70 cm × 70 cm × 5 cm) od poliviniltoluen (PVT), proizvođača Saint Gobain, s fotomultiplikacijskim cijevima ET Enterprises model 9266B. Izvor visokog napon CAEN N1470 korišten je za napajanje fotomultiplikacijskih cijevi. Za postavljanje i ugađanje sustava korišten je digitalni multikanalni analizator CAEN DT5781, koji ima 4 ulaza za detektore i mogućnost pohranjivanja vremenske koordinate svakog detektiranog događaja.

3.4.2. Geometrijska optimizacija aktivnog štita

Tok miona na površini Zemlje pokazuje ovisnost o zenitnom kutu, pri čemu je tok najveći za mione koji dolaze okomito odozgo (zenitni kut 0°) dok orijentacijski simetrično opada sa

povećanjem zenitnog kuta do 0 iz horizontalnog smjera. U idealnom slučaju optimalni geometrijski položaj scintilacijskih detektora je onaj u kojem je potpuno zatvoren prostorni kut oko samog germanijevog detektora. U realnim sustavima to uglavnom nije izvedivo te se detektori postavljaju po mogućnosti u položaje u kojima će se pokriti prostor sa što većim tokom prolaska miona. Mjerni sustav LRE nalazi se u podrumu zgrade izgrađene na kosini. Više tla nalazi se između sustava i atmosfere (izvora kozmičkog zračenja) sa sjeverne nego s južne strane zgrade. Zbog toga je prethodno unutar prostorije ispitana varijacija toka miona s obzirom na orijentaciju i zenitni kut. Za testiranje je korišten mjerni postav s dva mala PVT scintilacijska detektora ($30\text{ cm} \times 10\text{ cm} \times 5\text{ cm}$), učvršćena na drveni pravokutni okvir paralelno, udaljena 1,5 m. Na pola udaljenosti između scintilatora postavljena je vodoravna os oko koje se okvir i scintilatori rotiraju. Mjerenjem takvim postavom u koincidentnom načinu mjeren je tok miona koji dolaze pod određenim zenitnim kutem. Mjerenja su trajala 30 min, napravljena su za svakih 10° , za dvije orijentacije sjever – jug i istog – zapad.⁵⁰

3.4.3. Optimizacija parametara za antikoincidenzijska mjerenja

Nakon eksperimenata geometrijske optimizacije scintilacijski detektori su postavljeni na optimalne položaje. Germanijev detektor i svaki od tri scintilacijska detektora spojeni su u zasebni ulaz. Kao izvor napona i pretpojačalo za HPGe detektor korišten je DSA-LX analizator. Za podešavanje i ugađanje parametara korišten je program CoMPASS tvrtke CAEN. Detaljan opis parametara i njihovo podešavanje već je opisano u literaturi.¹⁰⁰ Najvažniji parametri sustava za redukciju kozmičke pozadine antikoincidenzijskom spregom detektora, aktivnog štita, su pojačanje, energijski prag (događaja detektiranih scintilatorima) te vremenski prozor, Δt , u kojem se događaji smatraju koincidentnima. Nakon ugađanja postavki za pojedine detektore, mjereni su spektri pozadinskog zračenja sva četiri detektora, u „list“ načinu rada, to jest zabilježen je događaj iz svakog detektora zajedno s vremenskom koordinatom. Analize dobivenih spektara provedene su korištenjem skripte napisane u programskom jeziku Python te su određeni optimalni energijski prag i vremenski prozor za nadograđeni mjerni postav.

3.4.4. Prilagodba za rutinska mjerenja

Nakon optimizacije parametara za antikoincidenzijska mjerenja, zbog jednostavnosti i pogodnosti za rutinska mjerenja okolišnih uzoraka, sustav je ponovno priključen na DSA-LX analizator s novim parametrima i dodatnom elektronikom za implementaciju aktivnog štita. Izlaz scintilacijskih detektora pretvoren je u logički signal korištenjem diskriminatora

konstantne frakcije amplitude CAEN N842. Signali su spojeni korištenjem logičkog sklopa ILI (or) unutar logičke jedinice CAEN N455. Zatim je logički signal produljen na eksperimentalno utvrđeni optimalni vremenski prozor korištenjem vremenske jedinice CAEN N93B. CAEN koristi NIM standard signala koji je za potrebe DSA-LX pretvoren u TTL (*engl. transistor-transistor logic*) standard pomoću pretvornika CAEN N89. Signal je zatim spojen u INH (od *engl. inhibit*) ulaz DSA-LX analizatora. Kada je na INH ulazu prisutan signal, sakupljanje HPGe spektra je onemogućeno, to jest sustav radi u antikoincidencijskom načinu rada.

3.5. Automatizirano sekvencijalno odjeljivanje radionuklida iz tekuće faze

Sustav za odjeljivanje radionuklida iz tekuće faze osmišljen je prvenstveno za implementaciju nove metode za odjeljivanje radionuklida ^{210}Pb , ^{90}Sr , ^{226}Ra , ^{228}Ra i ^{133}Ba metodom SPE. Takva metoda proširenje je postojeće metode ranije razvijene u LRE.⁸⁵ Nova metoda razvijena u ovom radu uključuje odjeljivanje radionuklida ^{226}Ra i ^{228}Ra koji značajno doprinose godišnjoj ingestivskoj dozi ionizirajućeg zračenja.^{16–20} Odjeljivanje izotopa radija postignuto je optimiranjem sastava i vrijednosti pH otopine za eluiranje. Eksperimenti optimiranja stare metode provedeni su ručno, korištenjem istih kemikalija i materijala kao i eksperimenti automatskog odjeljivanja opisani u potpoglavlju 3.2.6 *Priprema uzoraka za eksperimente automatiziranog odjeljivanja*. Uzorci s kojima je izvršeno optimiranje su podskup uzoraka kultura nakon odjeljivanja stroncija, čija je priprema opisana u potpoglavlju 3.2.5 *Priprema uzoraka za analizu ^{90}Sr metodom tekućinskog scintilacijskog brojenja*. Nakon unaprijeđenja i proširenja, nova metoda implementirana je na sastavljeni sustav za automatizaciju. Sastavljanje samih uređaja koji čine sustav, njihovu prilagodbu za komunikaciju s računalom te kreiranje korisničkog sučelja proveli su, prema nacrtu i planu LRE, vanjski suradnici iz tvrtke Majur d.o.o. iz Zagreba. Budući da je sustav modularan, uz promjenu konfiguracije uređaja koji ga čine te uz modifikaciju postojećih i kreiranje novih programa, koji upravljaju uređajima, moguća je laka prilagodba drugoj metodi.

3.5.1. Sastavni dijelovi sustava za automatizirano odjeljivanje radionuklida

Sustav za odjeljivanje radionuklida čine sljedeći uređaji i elementi: kontrolna jedinica, modul(i) s ventilima i peristaltičkom pumpom, skupljač frakcija s kolone teflonske cjevčice, kolona za ekstrakcijsku smolu sa stalkom, boce za otopine.

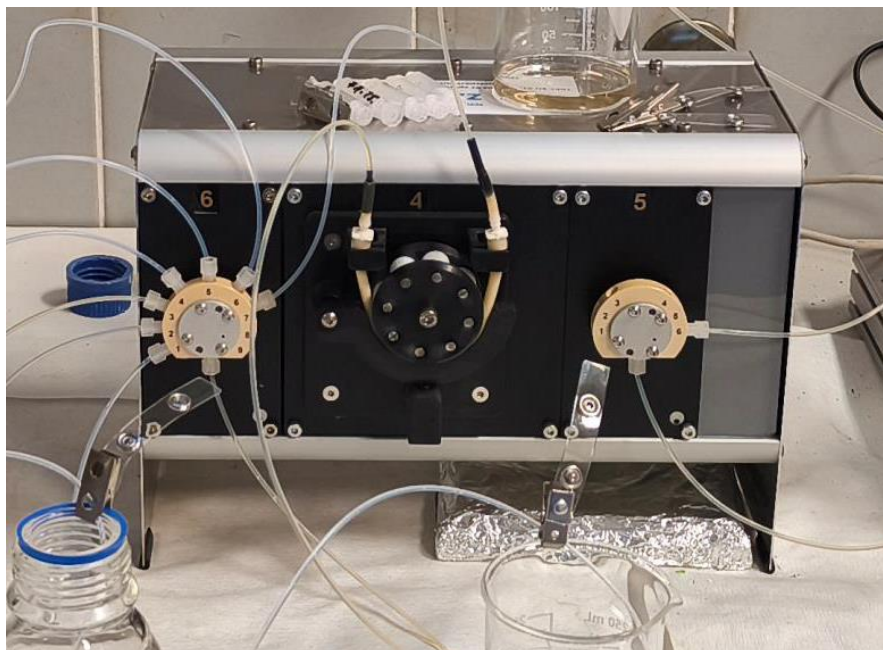
Kontrolnu jedinicu, prikazanu na slici 10 čini Raspberry Pi računalo s Linux operacijskim sustavom te odgovarajuća elektronika i priključci koji omogućuju komunikaciju i upravljanje s ostalim uređajima sustava pomoću programskog jezika Python.



Slika 10. Kontrolna jedinica sustava za odjeljivanje.

Kontrolna jedinica spojena je na lokalnu računalnu mrežu LRE te joj se pristupa pomoću bilo kojega osobnog računala spojenog na mrežu laboratorija korištenjem sučelja prilagođenog za internetske preglednike. Sučelje omogućava upravljanje u realnom vremenu zadavanjem Python naredbi direktno iz sučelja interaktivnim izbornicima (što se može koristiti pri umjeravanju i razvijanju novih metoda) ili učitavanjem gotove Python skripte koja je rezultat umjeravanja i razvitka metode.

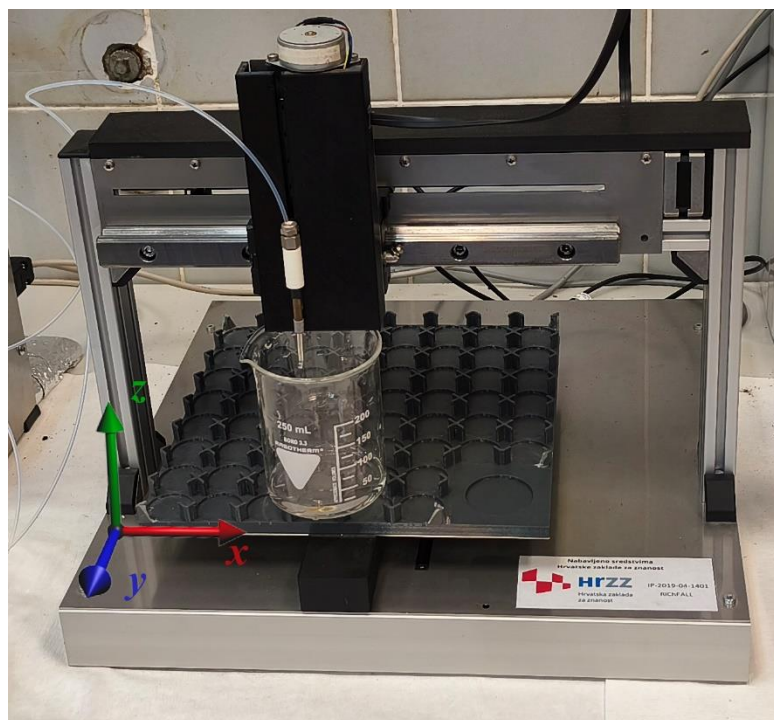
Peristaltička pumpa je vrsta pumpe koja se koristi u različitim laboratorijskim uređajima i instrumentima koji ispumpavaju tekućine, poput modernih spektrofotometara ili spektrometra masa, a način njihova rada opisan je u sljedećih nekoliko rečenica, dok je korištena pumpa prikazana na slici 11.



Slika 11. Modul s peristaltičkom pumpom i ventilima.

Tekućina se nalazi u fleksibilnoj cjevčici smještenoj unutar polukružnog utora na glavi pumpe. Rotacijskim gibanjem rotora, na njemu postavljeni valjci tlače fleksibilnu cjevčicu te istiskuju tekućinu kroz cjevčicu. Prilikom povratka cjevčice u početno stanje stvoreni podtlak uvlači novu tekućinu u cjevčicu te ju sljedeći valjak tlači itd., čime se postiže protok tekućine unutar cjevčice. Takve pumpe pogodne su za primjenu u radiokemijskom laboratoriju budući da je samo cjevčica u direktnom kontaktu s otopinom što ograničava potencijalnu kontaminaciju samo na cjevčicu, koja se lako zamjeni. Uz to, odabirom željenog materijala cjevčice, postiže se otpornost prema korozivnim kemikalijama poput kiselina. Peristaltičke pumpe omogućuju kontrolu brzine protoka tekućine te mogu reproducibilno ispumpati točan volumen željene tekućine. Količina ispumpanog volumena tekućine funkcija je broja okretaja pumpe odnosno koraka pumpe. Jedan okretaj glave pumpe u ovom slučaju ima 3200 koraka pumpe. Brzina protoka tekućine proporcionalna je rotacijskoj brzini te se zadaje u programu kodom koji definira broj koraka u jedinici vremena.

Korišteni **ventili**, također vidljivi na slici 11 elektronički se kontroliraju te protok tekućine preusmjeravaju iz jedne ulazne pozicije u neku od n izlaznih pozicija ili obratno. U izvornoj konfiguraciji korišteni su ventili s 9 i 6 pozicija. Dva ventila i jedna pumpa spojeni su u modul u istom kućištu radi praktičnosti, iako se mogu drugačije postaviti ili koristiti kao zasebne jedinice. Slika 12 prikazuje skupljač frakcija s kolone.

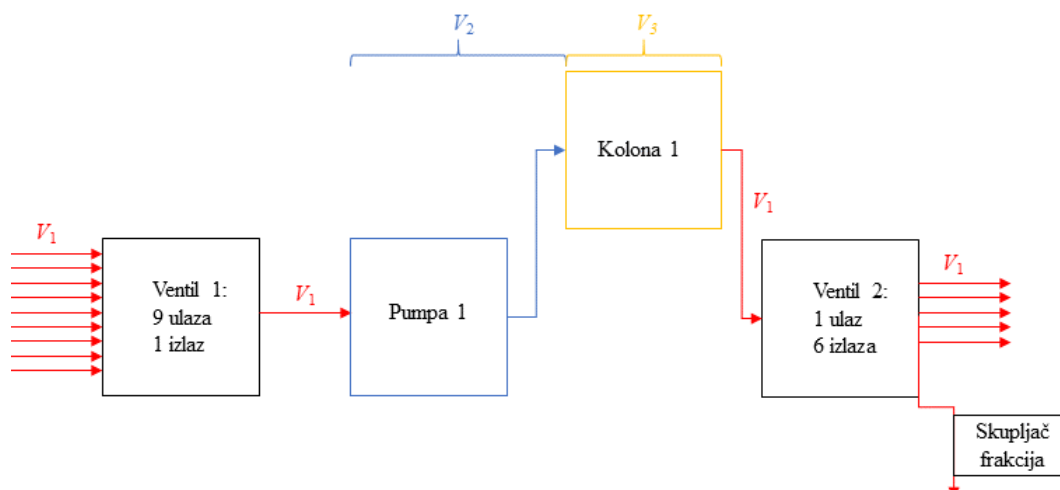


Slika 12. Skupljač frakcija s kolone korišten u sustavu za automatizirano odjeljivanje radionuklida.

Skupljač frakcija s kolone je kubična otvorena konstrukcija izrađena od aluminijskih profila i postolja od nehrđajućeg čelika. Unutar postolja te u pretincu između profila, nalazi se pripadajuća elektronika. Izlazna cjevčica iz kolone postavljena je u nosač koji se giba pomoću tračnice na aluminijskom profilu i elektromotora po x osi Kartezijevog koordinatnog sustava. Nosač spušta cjevčicu po z osi Kartezijevog koordinatnog sustava kako bi se izbjeglo prskanje otopina van bočica prilikom ispuštanja s visine. Na postolju se nalazi čelična ploča, koja se pomiče po y osi Kartezijevog koordinatnog sustava. Na ploči od nehrđajućeg čelika je pomoću magneta postavljena plastična ploča sa utorima za bočice. Plastična ploča je proizvedena procesom aditivne proizvodnje plastike što omogućava lako izmjenu u slučaju oštećenja, kontaminacije ili ukoliko je potrebna drugačija geometrija bočica za frakcije.

3.5.2. Spajanje sastavnih dijelova u sustav

U osnovnoj izvedbi, koja je korištena u svrhu potvrde izvedivosti automatizacije, sustav je sastavljen prema shemi prikazanoj na slici 13.



Slika 13. Shema osnovne izvedbe sustava za odjeljivanje radionuklida korištena za potvrdu izvedivosti automatizacije razvijene metode odjeljivanja.

Ulazne cjevčice za svaku otopinu, cjevčica između ventila 1 i pumpe 1, cjevčica koja povezuje kolonu 1 i ventil 2 te cjevčica izlaza ventila 2 i skupljača frakcija su cjevčice iste duljine i promjera, volumena V_1 (označeno crvenom bojom na slici 13). Cjevčica pumpe i cjevčica između izlaza pumpe i ulaza na kolonu zajedno čine volumen V_2 (označeno plavom bojom na slici 13), dok je efikasan volumen kolone V_3 (označen žuto na slici 13, ovisi o količini i vrsti korištene smole). Poznavanje nabrojanih volumena ključno je za dobro praćenje otopina u sustavu, odnosno za pravilno postavljanje skripti za odjeljivanje. Volumeni su određeni na način da su navedeni elementi napunjeni vodom te je izvagana masa vode koju sadrže u sebi, iz koje je izračunat volumen. Detaljni opis funkcija korištenih za izradu skripti te struktura i izrada skripti nalazi se u dodatku.

3.5.3. Odjeljivanja radionuklida iz modelnih otopina, referentnih materijala i vegetacije

Nakon sastavljanja i testiranja rada uređaja za odjeljivanje napisana je skripta koja implementira metodu razvijenu ručnim eksperimentima odjeljivanja na novosastavljeni sustav. Ispravnost implementiranja nove metoda te rad cijelog sustava provjereni su korištenjem modelnih otopina, referentnih materijala te uzoraka poljoprivrednih kultura poznatih aktivnosti (prethodno izmjerenih) ciljanih radionuklida. Kolona je napunjena s 0,2 g, odnosno 0,4 g ekstrakcijske smole AnaLig® Sr-01 proizvođača IBC Advanced Technologies. Za kondicioniranje smole korištena je destilirana voda, 0,05 M $\text{HNO}_3(\text{aq})$ te 0,01 M $\text{HNO}_3(\text{aq})$. Za eluiranje olova korištena je 0,01 M $\text{EDTA}(\text{aq})$ zakiseljena do $\text{pH} = 4$ s HCl , dok je za eluiranje stroncija korištena 0,05 M $\text{EDTA}(\text{aq})$ zalužena do $\text{pH} = 7$ s NaOH . Naposljetku je za eluiranje

barija, odnosno radija te za čišćenje kolone korištena otopina pripremljena miješanjem 0,25 M EDTA(aq) s NH₃(conc) u omjeru 10:3.

3.6. Izračun godišnje ingestijske doze ionizirajućeg zračenja

Godišnja ingestijska doza ionizirajućeg zračenja za dobnu skupinu k , E_k [Sv a⁻¹], računata je pomoću jednadžbe (2.5.2):

$$E_k = \sum_i \sum_j a_{ij} \times e_{ik} \times p_{jk} \quad (2.5.2)$$

gdje je a_{ij} [Bq kg⁻¹] specifična aktivnost radionuklida i u skupini hrane j , e_{ik} [Sv Bq⁻¹] je koeficijent ingestijske doze dobne skupine k za radionuklid i , dok je p_{jk} [kg a⁻¹] godišnja potrošnja hrane iz skupine j za dobnu skupinu k . **Koeficijenti ingestijskih doza** preuzeti su od ICRP²³ te su prikazani u tablici 7, dok su korištene srednje vrijednosti detektiranih specifičnih aktivnosti radionuklida i u skupini hrane j te su podaci o **potrošnji hrane u Hrvatskoj** preuzeti od Hrvatskog zavoda za statistiku.¹⁰¹ Za jednogodišnjake te desetogodišnjake godišnja potrošnja računata je kao 1 / 3 odnosno 2 / 3 potrošnje odraslih.⁴⁵

Tablica 7. Koeficijenti ingestijskih doza određenih radionuklida za četiri dobne skupine: dojenčad, jednogodišnjake, desetogodišnjake te odrasle.²³

$e / \text{Sv Bq}^{-1}$				
Nuklid	Dojenčad	Jednogodišnjaci	Desetogodišnjaci	Odrasli
⁴⁰ K	$6,20 \times 10^{-8}$	$4,20 \times 10^{-8}$	$1,30 \times 10^{-8}$	$6,20 \times 10^{-9}$
⁹⁰ Sr	$2,30 \times 10^{-7}$	$7,30 \times 10^{-8}$	$6,00 \times 10^{-8}$	$2,80 \times 10^{-8}$
¹³⁷ Cs	$2,10 \times 10^{-8}$	$1,20 \times 10^{-8}$	$1,00 \times 10^{-8}$	$1,30 \times 10^{-8}$
²¹⁰ Pb	$8,4 \times 10^{-6}$	$3,60 \times 10^{-6}$	$1,90 \times 10^{-6}$	$6,90 \times 10^{-7}$
²¹⁰ Po	$2,6 \times 10^{-5}$	$8,80 \times 10^{-6}$	$2,60 \times 10^{-6}$	$1,20 \times 10^{-6}$
²²⁶ Ra	$4,70 \times 10^{-6}$	$9,60 \times 10^{-7}$	$8,00 \times 10^{-7}$	$2,80 \times 10^{-7}$
²²⁸ Ra	$3,0 \times 10^{-5}$	$5,70 \times 10^{-6}$	$3,90 \times 10^{-6}$	$6,90 \times 10^{-7}$
²³² Th	$4,60 \times 10^{-6}$	$4,50 \times 10^{-7}$	$2,90 \times 10^{-7}$	$2,30 \times 10^{-7}$
²³⁵ U	$3,50 \times 10^{-7}$	$1,30 \times 10^{-7}$	$7,10 \times 10^{-8}$	$4,70 \times 10^{-8}$
²³⁸ U	$3,40 \times 10^{-7}$	$1,20 \times 10^{-7}$	$6,80 \times 10^{-8}$	$4,50 \times 10^{-8}$

3.7. Analiza glavnih komponenata i analiza paralelnih faktora specifičnih aktivnosti radionuklida u tlima Hrvatske

Skup podataka korišten za analizu glavnih komponenata te analizu paralelnih faktora čine specifične aktivnosti pet radionuklida: ⁴⁰K, ¹³⁷Cs, ²¹⁰Pb, ²²⁶Ra te ²³²Th (međusobno ovisne varijable te varijable s nepotpunim podacima su uklonjene), u 4 dubine tla (0 – 5, 5 – 10, 10 – 20 te 20 – 50) cm sa 38 lokacija diljem Hrvatske. Izostavljene su lokacije s Pelješca budući da se radi o odstupajućim podacima. Modovi varijabilnosti su lokacija, specifične aktivnosti te dubina.

Opisani skup podataka modeliran je bivarijantnim PCA modelom, miješanjem modova dubine i lokacije. Podaci su posloženi u matricu koja ima 152 (38×4) redaka koji odgovaraju miješanom modu lokacija i dubina dok je u pet stupaca specifična aktivnost radionuklida. Budući da negativne aktivnosti, lokacije i dubine nisu fizički smislene, korištena je inačica PCA s ograničenjem na pozitivna faktorska opterećenja, koja implementira algoritam očekivanja i maksimizacije (*engl. Expectation-maximization algorithm*).¹⁰² Algoritam očekivanja i maksimizacije postavlja nove varijable u nasumičnom smjeru u prostoru početnih varijabli te

projicira podatke na nove varijable. Zatim se postavlja nova iteracija varijabli u smjeru maksimalnog povećanja varijance projiciranih točaka. Negativne vrijednosti postavse se na nulu i provede se normalizacija varijabli. S dobivenim varijablama kreće sljedeća iteracija. Algoritam završava dok se postigne zadovoljavajuća konvergencija promjene smjera varijabli. Budući da sustav može konvergirati u lokalni minimum, postupak se ponavlja za više početnih varijabli te se kao PC n odabire onaj skup varijabli koji objašnjava najviše varijance početnih podataka. Algoritam očekivanja i maksimizacije implementiran je u korištenoj funkciji „nsprcomp“ iz istoimenog skupa ili paketa funkcija¹⁰³ za programski jezik R.¹⁰⁴ Varijable imaju raspon vrijednosti od tri reda veličine, stoga su ulazni podaci centrirani i skalirani s ugrađenom opcijom spomenute funkcije.

Metoda PARAFAC modelira trivarijatnu struktura podataka te je rezultat fizički smisleniji model, lakši za interpretaciju te s boljom prilagodbom podacima. Zbog različitih redova veličine aktivnosti radionuklida, podaci su skalirani. Trodimenzionalno polje podataka presložen je u matricu s pet redaka, koji odgovaraju aktivnostima nuklida, i 152 stupca te je izvršeno skaliranje po redcima. Skalirana matrica presložena je nazad u polje koje je zatim modelirano PARAFAC metodom. Korišten je brzi algoritam ne-negativnih najmanjih kvadrata (*engl. Fast Non-Negative Least Squares, FNNLS*)¹⁰⁵ implementiran u funkciju „parafac“ paketa „multiway“¹⁰⁶ programskog jezika R.¹⁰⁴ Algoritam FNNLS je modificiran, ubrzan, algoritam ne-negativnih najmanjih kvadrata (*engl. Non-Negative Least Squares, NNLS*). Algoritmi FNNLS i NNLS rješavaju problem pronalaska faktora pozitivnih faktorskih opterećenja na način da skup početnih varijabli podijele u dva podskupa, aktivni i pasivni podskup. U aktivnom podskupu su varijable čija su faktorska opterećenja izjednačena s nulom za mod varijacije za koji se traži rješenje. Koristeći ALS algoritam riješi se problem s pasivnim skupom varijabli. U slučaju kada su sva dobivena faktorska opterećenja pozitivna, premjesti se jedna varijabla iz aktivnog u pasivni podskup te kreće sljedeći korak iteracije. U slučaju kada su faktorska opterećenja negativna, odgovarajuće varijable se premjeste iz pasivnog u aktivni podskup te kreće sljedeći korak iteracije. Iteracija završava kada se niti jedna početna varijabla ne može premjestiti iz aktivnog u pasivni podskup i dobiti rješenje sa svim pozitivnim faktorskim opterećenjima. Nakon toga algoritam istim koracima pronalazi rješenja preostalih modova varijacije. Dijagnostika jezgre CORCONDIA provedena je korištenjem funkcije „corcondia“ iz paketa „multiway“.¹⁰⁶

§ 4. REZULTATI I RASPRAVA

4.1. Specifične aktivnosti radionuklida u uzorcima tla Hrvatske

Tlo na kojemu su kulture uzgajane jedan je od glavnih izvora radionuklida u biljci. Radionuklidi zbog raznih okolišnih procesa (fizički, biološki, geokemijski) migriraju vertikalno kroz tlo, a njihov prijenos u biljku ovisan je o njenom korijenskom sustavu. Stoga su zbog mogućnosti daljnjih istraživanja migracije i prijenosa radionuklida u provedenom istraživanju uzorkovana četiri sloja tla, do dubine 50 cm (0 – 5 cm, 5 – 10 cm, 10 – 20 cm te 20 – 50 cm). Međutim, prema naputcima IAEA⁷⁰ za izračun faktora prijenosa koristi se specifična aktivnosti tla dubine 0 – 20 cm. Stoga je za izračun faktora prijenosa korištena aritmetička sredina specifičnih aktivnosti prva tri sloja, koji odgovaraju navedenoj dubini, dok su za analizu glavnih komponenata i paralelnih faktora korištene specifične aktivnosti svih slojeva. Preliminarnim mjerenjima utvrđeno je da specifična aktivnost ⁹⁰Sr ne varira značajno s dubinom te je zbog toga za određivanje aktivnosti ⁹⁰Sr po lokacijama napravljen kompozitni uzorak miješanjem svih sakupljenih slojeva. Sve određene specifične aktivnosti radionuklida u tlima nalaze se u tablici D3 u dodatku.

4.1.1. Specifične aktivnosti u sloju prijenosa radionuklida u biljku

Specifične aktivnosti svih ciljanih radionuklida određene su u svim uzorcima uz nekoliko iznimaka. Specifična aktivnost ⁹⁰Sr odjeljenog iz jednog uzorka tla ispod je granica detekcije dok odjeljivanje Sr iz jednog uzorka nije bilo uspješno. Pregled rezultata sažeto je prikazan u tablici 8.

Tablica 8. Specifične aktivnosti radionuklida u suhim tlima s OPG Hrvatske.

Specifična aktivnost u suhom tlu, a / Bq kg ⁻¹							
	⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²³² Th
Minimalna vrijednost	120	0,14	2,41	31,4	18,8	30,6	22,8
Maksimalna vrijednost	831	5,01	70,3	345	344	385	117
Medijan	510	1,16	9,01	58,7	38,7	49,4	52,0
Aritmetička sredina	500	1,31	11,9	71,0	60,7	67,2	53,8
Standardna devijacija	115	0,91	11,5	55,6	66,8	59,7	20,8
N (broj uzoraka)	46	43	46	46	35	46	46

Očekivana sekularna ravnoteža između roditelja ²³⁸U i ²³²Th te odgovarajućih potomaka njihovih raspadnih nizova je potvrđena. Mjerene aktivnosti slažu se sa aktivnostima mjerenim u susjednim državama^{7,8,18,20,107,108} te s vrijednostima iz izvješća UN.⁴⁵

Na području poluotoka Pelješca opažene su značajno veće vrijednosti specifičnih aktivnosti prirodnih radionuklida ²³²Th, ²²⁶Ra i njegovih potomaka ²¹⁰Pb i ²¹⁰Po te antropogenih radionuklida ⁹⁰Sr i ¹³⁷Cs što se slaže s ranijim istraživanjima provedenim na neobrađivanim tlima Hrvatske.^{13,14} Sve maksimalne vrijednosti prikazane u tablici 8, osim maksimalne vrijednosti za specifičnu aktivnost ⁴⁰K, odgovaraju lokacijama s područja poluotoka Pelješca.

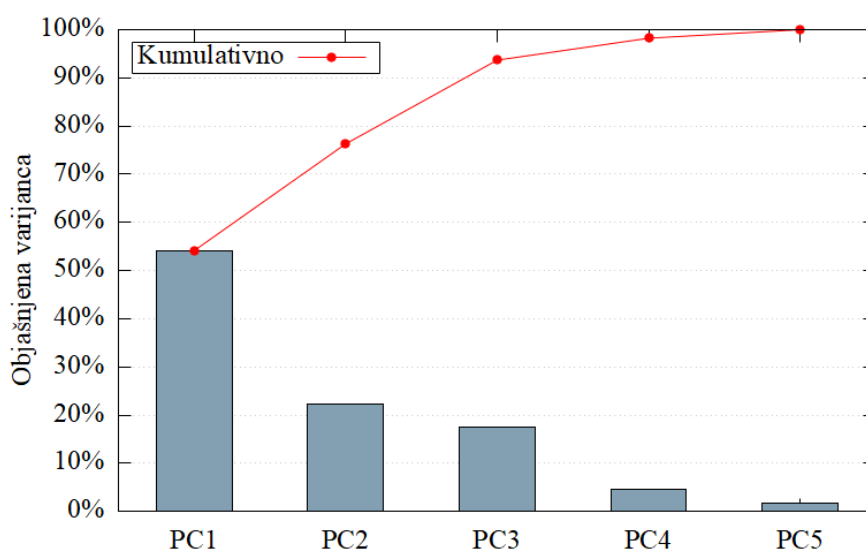
Specifične aktivnosti ²¹⁰Pb i ²¹⁰Po međusobno su korelirane, specifične aktivnosti ²¹⁰Pb uglavnom su više od aktivnosti njegovog potomka ²¹⁰Po. Također su navedene specifične aktivnosti negativno korelirane s dubinom tla. Opadanje specifične aktivnosti s dubinom očekivano je zbog depozicije ²¹⁰Pb iz atmosfere. Aktivnosti ostalih prirodnih radionuklida vertikalno ne variraju značajno, dok su opažena tri obrasca varijacije ¹³⁷Cs. U najvećem podskupu uzoraka, tlima koja redovito obrađuju, opažena je konstantna specifična aktivnost u prva tri sloja te značajan pad aktivnosti u najdubljem sloju. Razlog tome je stalno miješanje i homogenizacija prva tri sloja prilikom obrade. Tla na kojima se uzgajaju voćke stablašice se ne obrađuju miješanjem te je u tom podskupu uočen jedan od slijedeća dva obrasca. Specifična aktivnost opada eksponencijalno, što je u skladu s modelom adsorpcije i desorpcije Cs⁺ kationa na minerale gline te migracija dublje u tlo uslijed difuzije i padalina. U slučajevima tala s visokim udjelom organske tvari, koji je najviši u gornjem sloju zbog opadanja vegetacije, uočena je povišena specifična aktivnost ¹³⁷Cs u sloju ispod površinskog. Naime, organska tvar

stvara komplekse sa veznim mjestima na mineralima gline te ^{137}Cs migrira u dublji sloj gdje je koncentracija slobodnih veznih mjesta veća.

4.1.2. Rezultati analize glavnih komponenata (PCA) specifičnih aktivnosti radionuklida u tlima Hrvatske

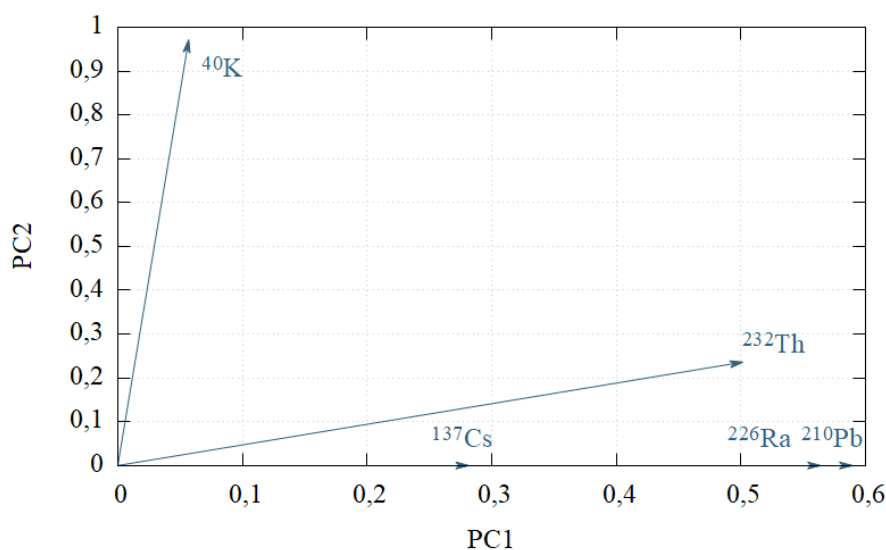
Rezultati analiza prikupljenih tla grupirana su prema geografskoj podijeli Hrvatske na 6 područja: Slavonija (područje istočno od Papuka), Sjeverna Hrvatska (područje oko Varaždina), Središnja Hrvatska (područje oko Zagreba), Gorska Hrvatska (područje Like), Istra, Dalmacija.

Na slici 14 prikazan je graf odrona (*engl. scree plot*) PCA modela skupa uzoraka tla. Slika 15 prikazuje faktorska opterećenja u PC1 – PC2 prostoru dok slika 16 prikazuje faktorska opterećenja u PC1 – PC3 prostoru. Graf odrona PC1 – PC2 prostora prikazan je na slici 17, odnosno PC1 – PC3 prostora na slici 18.



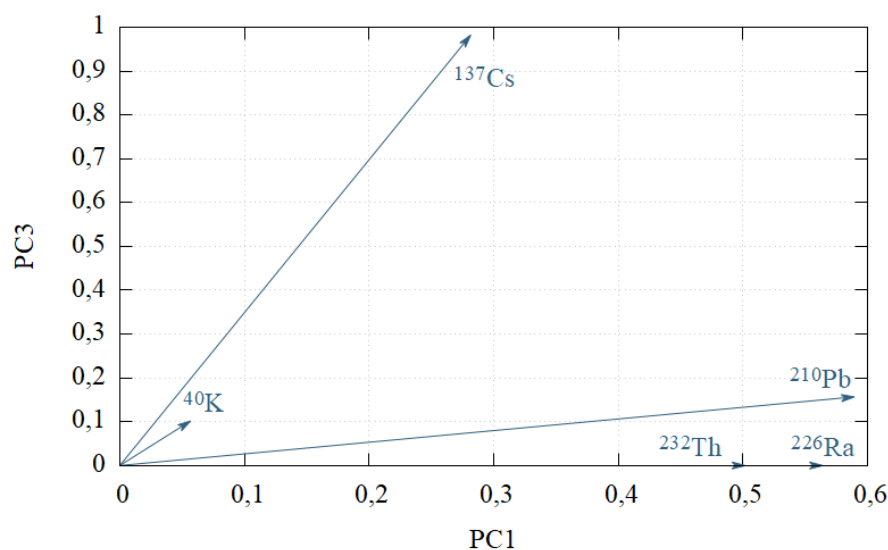
Slika 14. Graf odrona PCA modela uzoraka tla. Dijagram prikazuje udio varijance koji model objašnjava pojedinim glavnim komponentama, PC n te kumulativno objašnjeno varijance.

Kumulativno PC1, PC2 i PC3 objašnjavaju 93,67 % varijance podataka. Naredne glavne komponente dodatno objašnjavaju zanemarivo malo varijance, to jest, više komponente modeliraju šum i slučajnu grešku. Zadržane su prve tri komponente modela, dok su preostale odbačene.



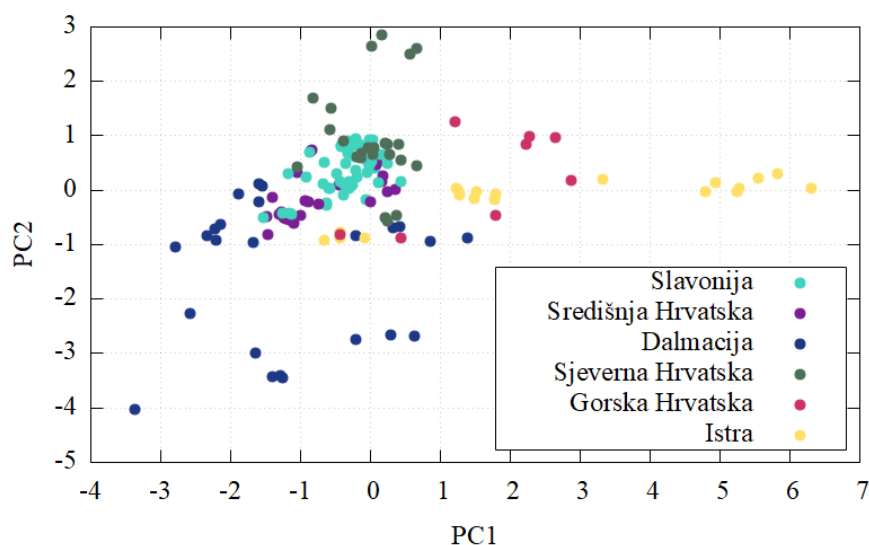
Slika 15. Faktorska opterećenja PC1 – PC2 prostora PCA modela skupa tala ograničenog na pozitivne vrijednosti. Vektori odgovaraju originalnim varijablama, aktivnostima označenih radionuklida u tlima.

Prva glavna komponenta, PC1, sadrži mali doprinos specifične aktivnosti ^{40}K , nešto veći doprinos specifične aktivnosti ^{137}Cs te značajan doprinos specifičnih aktivnosti ^{232}Th te ^{226}Ra i ^{210}Pb , potomaka ^{238}U . Naime, U i Th česte su primjese u mineralima rijetkih zemalja poput lantana,^{109,110} što objašnjava doprinose njihovih aktivnosti istoj glavnoj komponenti. Druga glavna komponenta, PC2, ima veliki doprinos specifične aktivnosti ^{40}K i te mali doprinos ^{232}Th , koji se može objasniti kemijski sličnim ponašanjem iona kalija i torija u tlu.¹¹¹



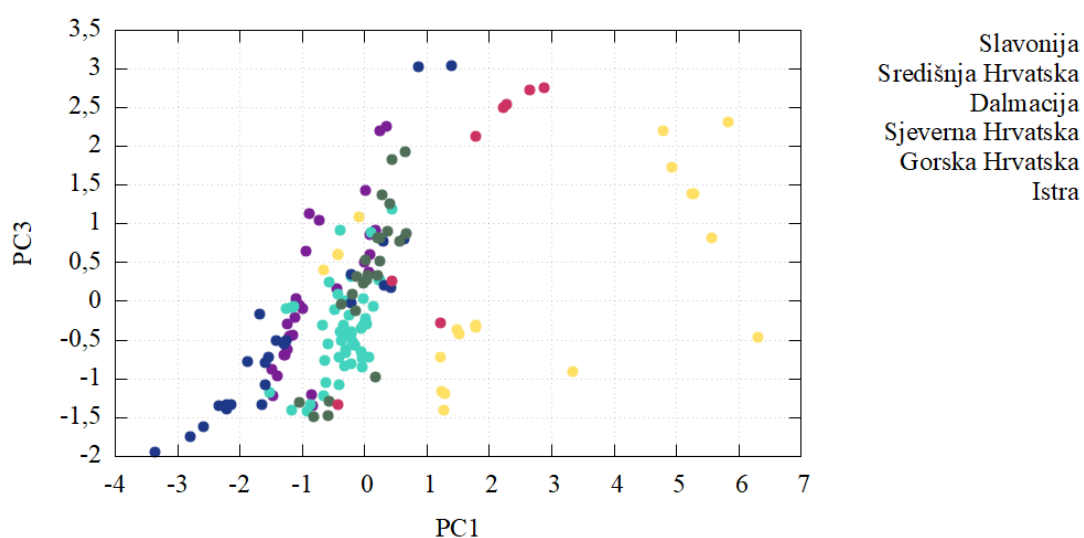
Slika 16. Faktorska opterećenja PC1 – PC3 prostora PCA modela skupa tala ograničen na pozitivne vrijednosti. Vektori odgovaraju originalnim varijablama, aktivnostima označenog radionuklida u tlima.

Treća glavna komponenta, PC3, ima veliki doprinos specifične aktivnosti ^{137}Cs te mali doprinos ^{210}Pb i ^{40}K . Budući da ^{137}Cs i ^{210}Pb dopijevaju u tlo atmosferskom depozicijom očekivano je da su im aktivnosti korelirane, to jest da doprinose zajedno istoj glavnoj komponenti. Doprinos ^{40}K PC3 kao i doprinos ^{137}Cs PC1 fizički nisu smisleni i najvjerojatnije su posljedica nesavršenosti bivarijatnog modela za modeliranje trivarijatnih podataka. Navedeni rezultati upućuju da u izračunatom modelu skupa tla, PC1 i PC2 opisuju aktivnost tala zbog geološke podloge. Komponenta **PC1 opisuje varijabilnost u frakciji tla koja sadrži minerale, dok PC2 opisuje frakciju koja sadrži kalij. Komponenta PC3 opisuje aktivnost tala zbog atmosferske depozicije radionuklida.**



Slika 17. Faktorski bodovi PCA modela skupa tala u PC1 – PC2 prostoru. Uzorci tala označenim su bojom prema regiji u kojoj su uzorkovani.

Sa slike 17, iz faktorskih bodova PC1 – PC2 prostora vidljivo je grupiranje uzoraka po područjima u kojima su uzorkovani. Prema visokim vrijednostima PC1 koordinata točaka jasno je da su specifične aktivnosti ^{232}Th , ^{226}Ra i ^{210}Pb povišene u Istri i Gorskoj Hrvatskoj naspram ostatka Hrvatske. Opaženi obrazac specifičnih aktivnosti slaže se s obrascem sadržaja lantana u tlima Hrvatske, istaknutog u Geokemijskom atlasu¹¹⁰ Hrvatske. Najveći raspon specifičnih aktivnosti potomaka ^{238}U i ^{232}Th prisutan je u Istri. Prema vrijednostima PC2 koordinata točaka, aktivnost ^{40}K niža je u Dalmaciji, a viša u Sjevernoj Hrvatskoj, naspram ostatka Hrvatske, što je korelirano sa sadržajem kalija u tlima Hrvatske.¹¹⁰

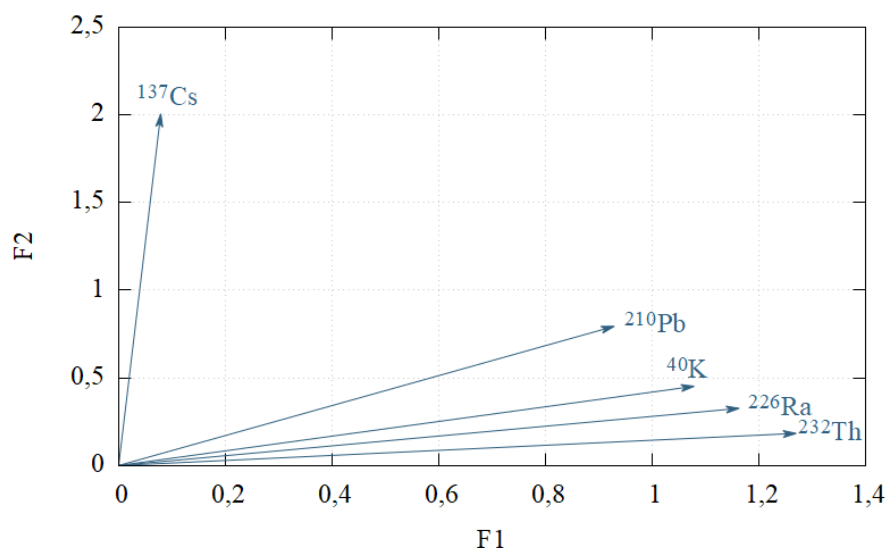


Slika 18. Faktorski bodovi PCA modela skupa tala u PC1 – PC3 prostoru. Uzorci tala označenim su bojom prema regiji u kojoj su uzorkovani.

Sa slike 18, iz prikaza odrona PC1 – PC3 prostora vidljivo je izduženje grupa uzoraka uzduž PC3. Mod dubina pomiješan je s modom lokacija te zbog toga svi uzorci u takvom miješanom modu sadrže velike raspone aktivnosti zbog atmosferske depozicije (koja varira s dubinom), koju PC3 opisuje. Na slici je vidljivo da u 2 uzorka iz Dalmacije dominiraju nuklidi prisutni zbog atmosferskog unosa te iskaču iz svoje grupe. Navedeni uzorci odgovaraju lokacijama iz mjesta Komin, u okolici Opuzena. Navedena lokacija nalazi se u blizini područja poluotoka Pelješca, za koje je uočeno da je značajno više atmosferski kontaminirano od ostatka Hrvatske, najvjerojatnije zbog testiranja nuklearnog oružja u Sjevernoj Africi. Nakon te dvije lokacije, najviše atmosferski kontaminirano područje je Gorska Hrvatska, potom Istra, slijede Središnja i Sjeverna Hrvatska te naposljetku ostatak Dalmacije i Slavonija. Takav obrazac kontaminacije poklapa se sa obrascem depozicije radiocezijia uslijed Černobilske nesreće.⁵⁹

4.1.3. Analiza paralelnih faktora (PARAFAC) specifičnih aktivnosti radionuklida u tlima Hrvatske

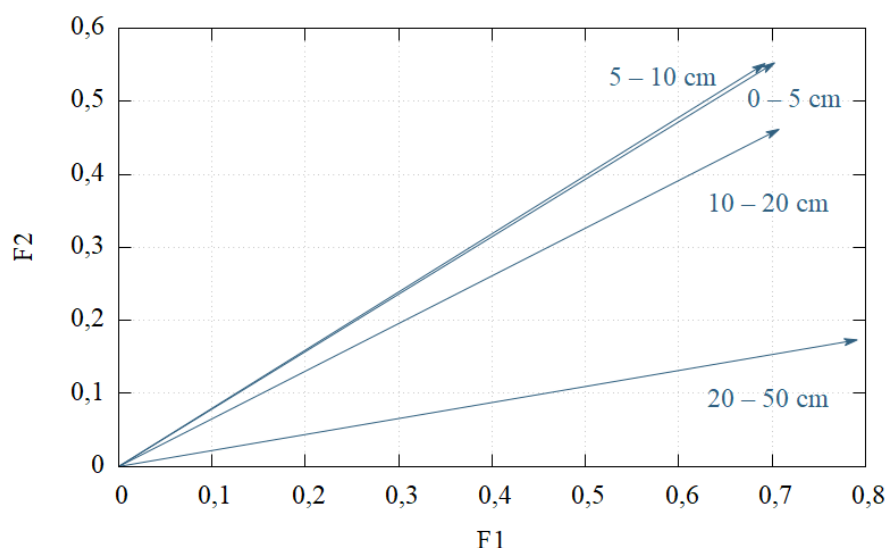
Model PARAFAC s dva faktora objašnjava 95,23 % varijance i konzistencija jezgre (2.1.38) iznosi 99,17 %, dok model s tri faktora ne objašnjava značajno više varijance podataka, a konzistencija jezgre poprima negativnu vrijednost. Prema tome, model s dva faktora je odgovarajuć za modelni skup podataka. Na slikama 19, 20 te 21 redom su prikazana faktorska opterećenja za modove aktivnosti, dubine te lokacije.



Slika 19. Faktorska opterećenja PARAFAC modela skupa tla za mod specifičnih aktivnosti.

Sa slike 19 vidljivo je da su doprinosi specifičnih aktivnosti faktoru 1, F1, slični doprinosima specifičnih aktivnosti prvoj glavnoj komponenti PCA modela. Međutim,

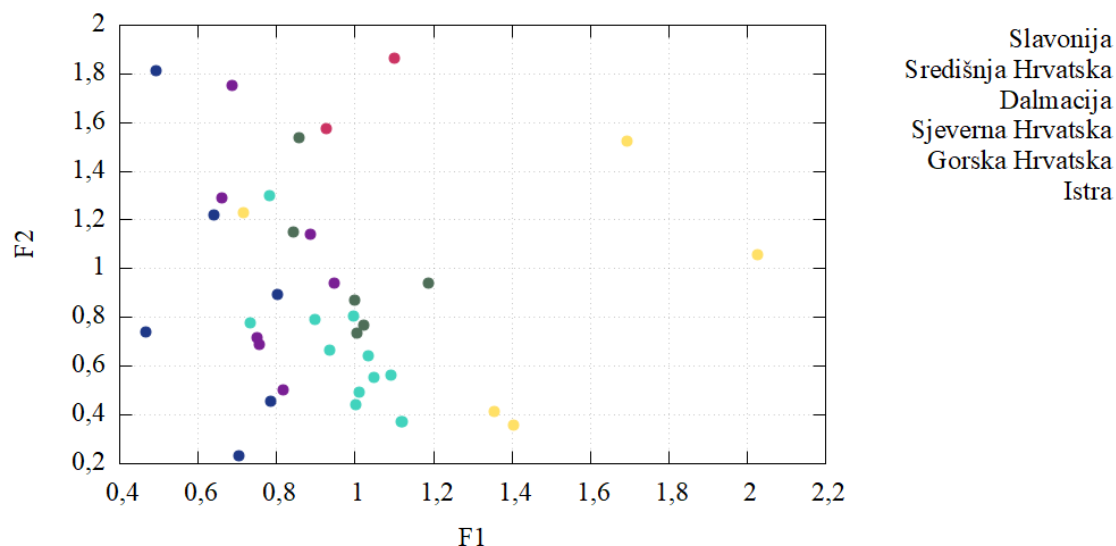
specifična aktivnost ^{40}K , koja u PCA modelu skoro u potpunosti sačinjava PC2, u PARAFAC modelu doprinosi F1. F1 ima otprilike podjednake doprinose svih specifičnih aktivnosti prirodnih radionuklida osim ^{210}Pb , čiji je doprinos nešto manji, zato što dio aktivnosti ^{210}Pb potječe iz atmosfere. Nuklid ^{137}Cs skoro uopće ne doprinosi F1, dok ima izražen doprinos faktoru 2, F2, koji također ima značajan doprinos aktivnosti ^{210}Pb te u manjoj mjeri ^{40}K , ^{226}Ra i ^{232}Th , slično kao PC3 u PCA modelu skupa. Opaženi rezultati upućuju na to da F1 predstavlja faktor varijabilnost tla zbog sastava tla, slično PC1 i PC2 komponentama PCA modela, dok F2 predstavlja faktor varijabilnosti zbog atmosferske depozicije nuklida, kao PC3 komponente PCA modela. F2 sadrži doprinos ^{137}Cs koji se isključivo nalazi u tlu zbog kontaminacije atmosferskom depozicijom te nešto smanjen doprinos ^{210}Pb koji se nalazi u tlima zbog samih tla (lokacije) i zbog atmosferske depozicije.



Slika 20. Faktorska opterećenja PARAFAC modela skupa tla za mod dubina.

Sa slike 20 vidljivo je da se vektori prve dvije dubine (0 – 5 i 5 – 10 cm) međusobno gotovo poklapaju te su grupirani s vektorom 3. dubine (10 – 20 cm). Prve tri dubine značajno doprinose F1 i F2. Vektor četvrte dubine najznačajnije doprinosi F1, dok je utjecaj tog vektora na F2 malen. Ta opažanja slažu se s interpretacijom F1 kao faktora koji opisuje varijabilnost ukupne specifične aktivnosti u tlima zbog sastava (lokacije) uzorkovanih tala, dok F2 opisuje varijabilnost specifičnih aktivnosti u tlima zbog atmosferske depozicije. Položaja vektora sa slike 20 upućuje na jednak doprinos atmosferske depozicije specifičnoj aktivnosti prvog i drugog sloja tla, što je najvjerojatnije posljedica homogenizacije tla prilikom mehaničke

obrade. Međutim već specifične aktivnosti trećeg sloja imaju manje doprinose atmosferske depozicije, (^{210}Pb i ^{137}Cs), dok su četvrtom sloju ti doprinosi značajno niži.



Slika 21. Faktorska opterećenja PARAFAC modela skupa tla za mod lokacija.

Graf faktorskih opterećenja moda lokacije PARAFAC modela sličan je grafu faktorskih bodova PC1 – PC3 prostora PCA modela prikazanog na slici 16. Međutim, graf faktorskih opterećenja PARAFAC modela zarotiran je suprotno od smjera kazaljke na satu. Razlog tome je značajan doprinos specifične aktivnosti ^{137}Cs PC1 komponenti, zbog kojega je u slučaju PCA modela cijeli skup približen PC1 osi, odnosno zarotiran je u smjeru kazaljke na satu. Uz to, PARAFAC ima 38 točaka za mod lokacija, dok PCA modela ima 152 točke zbog proširivanja toga moda sa modom lokacija. Manji broj točaka omogućava lakše iščitavanje i interpretaciju grafa F1 – F2 prostora PARAFAC modela nego odgovarajućeg grafa PC1 – PC3 prostora PCA modela. Ranije izvedeni opisni zaključci o modeliranom skupu, u slučaju PCA modela, potvrđeni su analizom podataka PARAFAC modela.

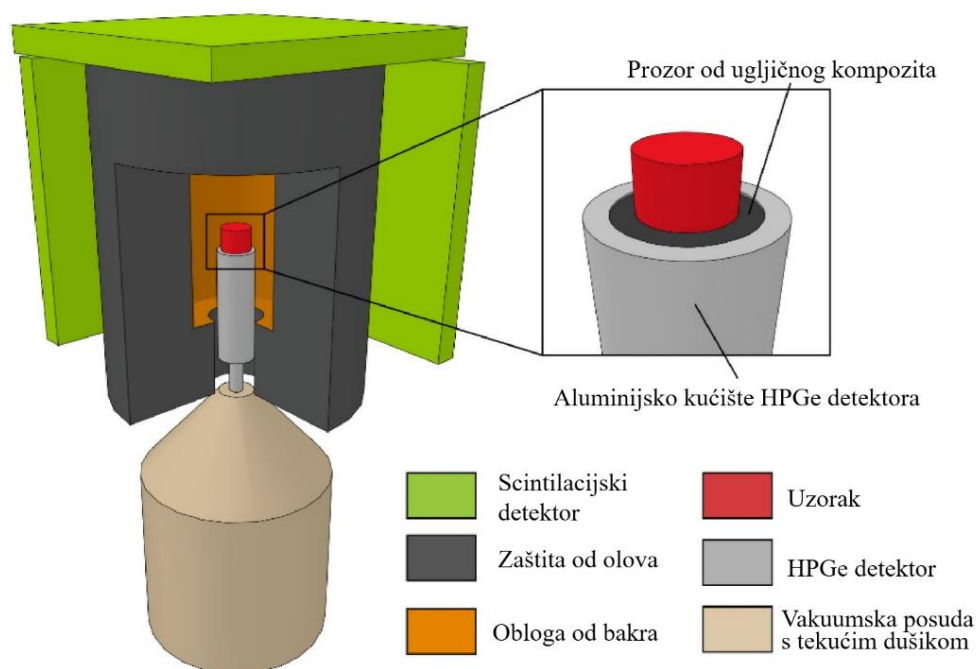
Skup trivarijatnih podataka, nakon spajanja dva moda, modeliran je s PCA, često korištenom metodom za redukciju dimenzionalnosti te eksploracijsku analizu bivarijatnih podataka u raznim granama znanosti. Rezultat je bivarijantni model smanjene dimenzionalnosti koji se fizički smisljeno interpretira. Međutim trivarijatni PARAFAC model sadrži faktor manje, bolje prijanja početnom skupu te jasnije upućuje na fizički smislenu interpretaciju. Dobiveni rezultati upućuju na korisnost PARAFAC modela. Modeliranjem skupa podataka tla

kontaminiranih iz više izvora, moguće je raščlaniti ukupnu kontaminaciju na doprinose pojedinih izvora, uz uvjet karakterističnih profila kontaminacije pojedinog izvora.

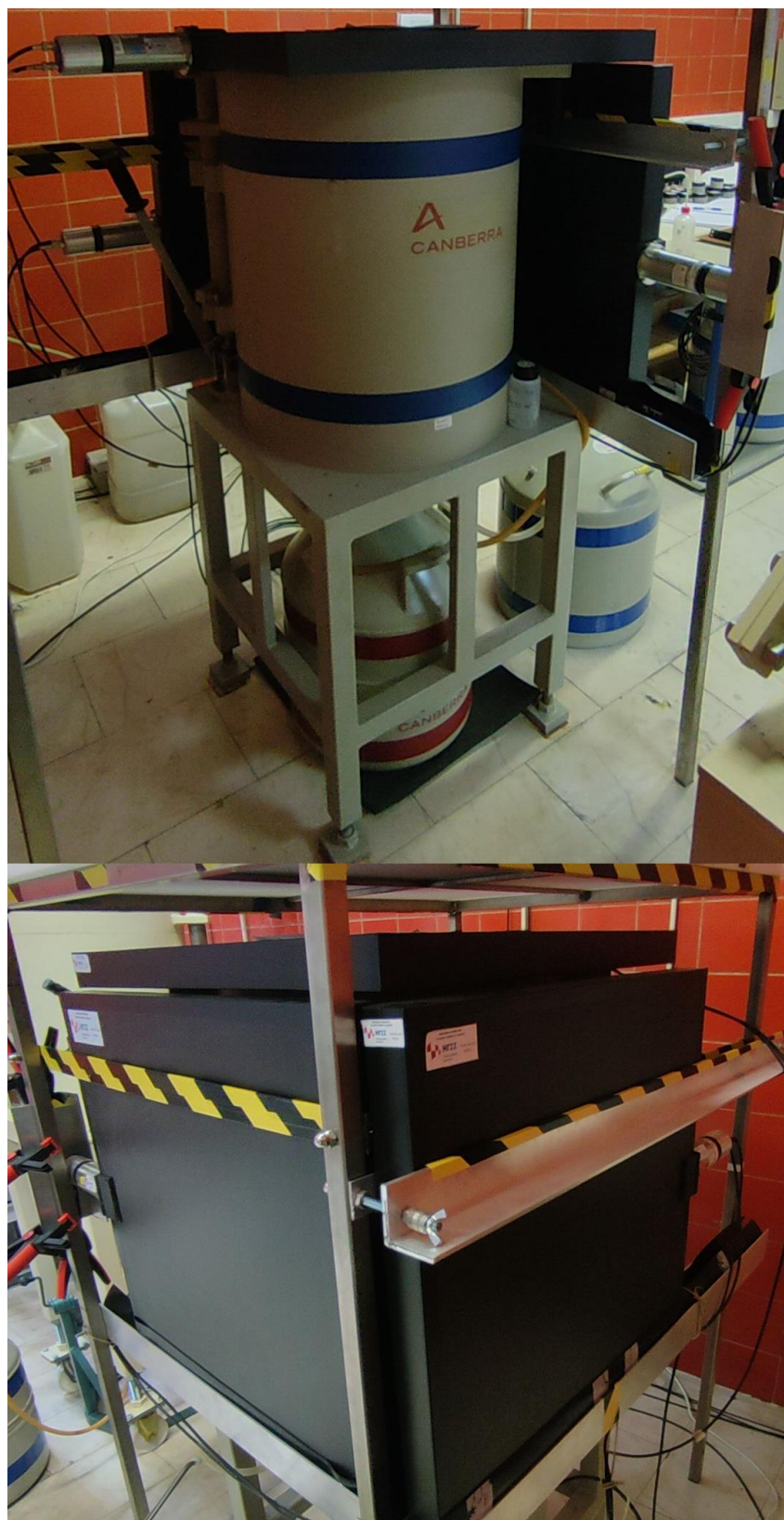
4.2. Unaprijeđenje gama-spektrometrijskog sustava

4.2.1. Optimalna geometrija mjernog postava

Mjerenja varijacije toka miona s obzirom na orijentaciju i zenitni kut pokazala su da nema značajnog utjecaja kosine na tok miona, to jest tok miona u laboratoriju je simetričan u odnosu na detektor.⁵⁰ Scintilatori su stoga postavljeni u optimalnu geometrijsku i tehnički izvedivu konfiguraciju. Za detekciju miona s najvećim upadnim kutem gdje je njihov tok najveći, optimalno je postavljanje scintilatora vodoravno nad detektor, što bliže samom HPGe detektoru. Prva scintilatorska ploča postavljena je stoga direktno na gornji dio (otvor) olovjevog štita. Preostala dva scintilatora postavljena su okomito, međusobno i naspram prvog, te se dodiruju. Postavljeni scintilatori zatvaraju najveći mogući prostorni kut koji možemo postići s 3 scintilatorske ploče, s najvećim tokom miona, te omogućuju neometano izmjenjivanje uzoraka. Shema unaprijeđenog sustava prikazana je na slici 22, dok su na slici 23 prikazane fotografije unaprijeđenog sustava.



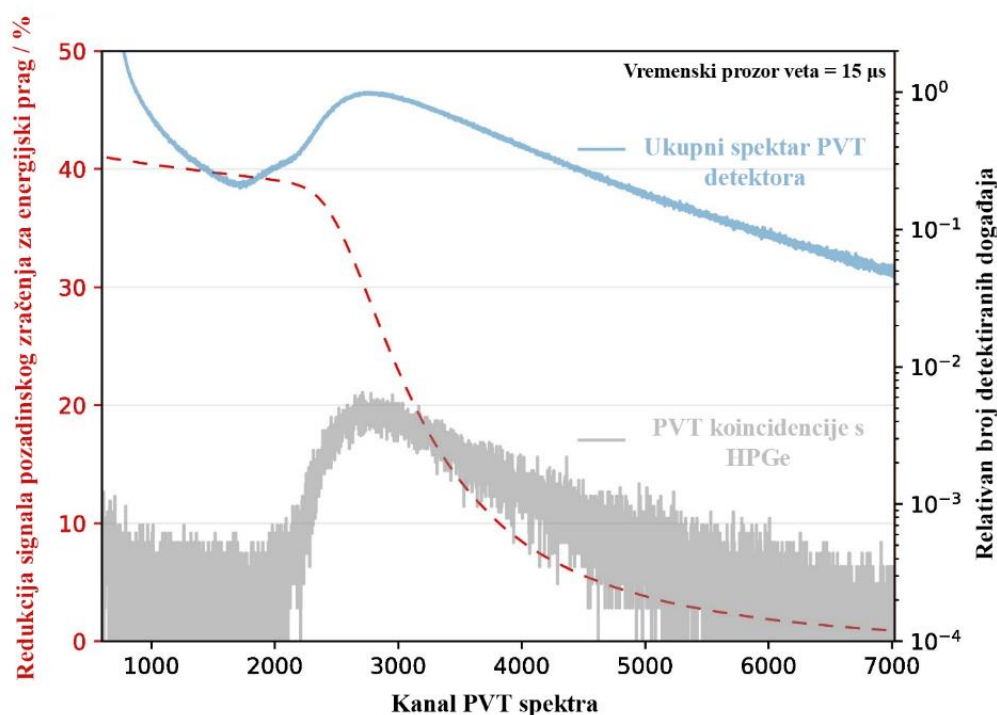
Slika 22. Shematski prikaz gama-spektrometrijskog sustava nadograđenog s tri scintilacijska detektora [uređeno prema ref. 50].



Slika 23. Gama-spektrometrijski sustav nadograđen sustavom za redukciju kozmičke pozadine antikoincidenzijskom spregom detektora.

4.2.2. Optimalni energijski prag

Energijski prag je minimalna energija detektirana PVT detektorom koja aktivira aktivni štit. Za njegovo određivanje analizirani su spektri pozadinskog zračenja detektirani gornjim scintilacijskim detektorom te koincidentni pozadinski spektar tog detektora i HPGe detektora. Slika 24 prikazuje navedene spektre.



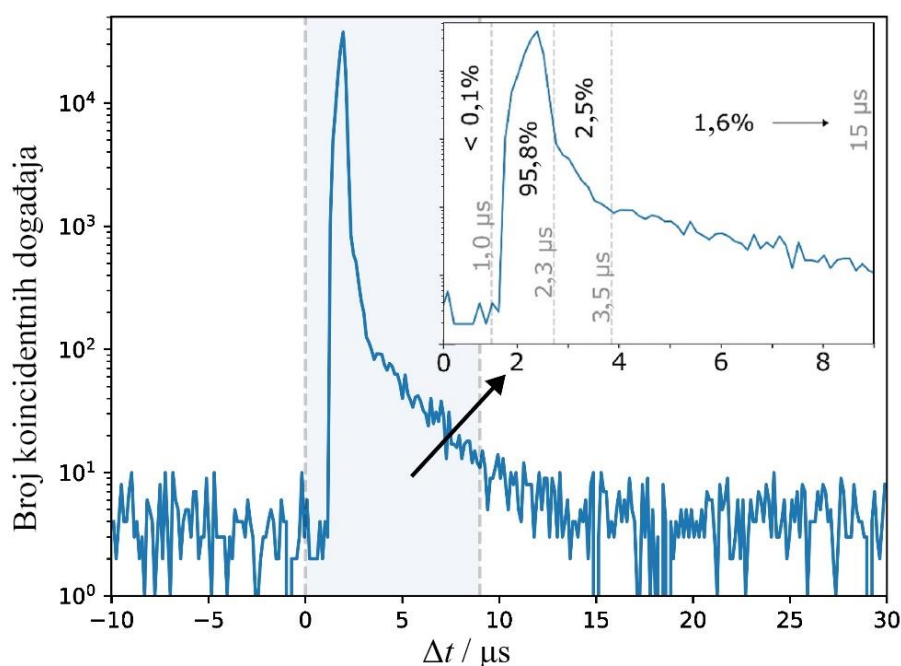
Slika 24. Spektar pozadinskog zračenja detektiran: 1. gornjim PVT detektorom, iscrtan plavom bojom; 2. koincidentno s PVT i HPGe detektorima, iscrtan sivom bojom. Crvena isprekidana linija prikazuje efikasnost redukcije pozadinskog spektra HPGe detektora postignutu aktivnim štitom kao funkciju energijskog praga [uređeno prema ref. 50].

U spektru PVT detektora vidljiv je široki vrh pri 2800. kanalu te nagli porast detektiranih događaja nalijevo od opaženog vrha. U koincidentnom spektru također je vidljiv odgovarajući vrh, no nema porasta koincidentnih događaja prema nižim kanalima (energijama). Niskoenergetski događaji detektirani PVT detektorom potječu od zračenja koje nema dovoljno energije i prodornosti doprijeti do HPGe detektora. Radi se o gama zračenju okolišnih radionuklida, poput ^{40}K u građevinskom materijalu same prostorije, i drugih, dok široki vrh potječe od miona. Stoga je energijski prag te vrijednosti postavljen ispred početka vrha miona. Dodatnim snižavanjem energijskog praga nema značajnog porasta redukcije događaja u pozadinskom spektru, no raste mrtvo vrijeme detektora. To je vrijeme prilikom kojega sustav

ne bilježi detektirane događaje. Razlog nastanka mrtvog vremena je intrinzičan, ako su događaji vremenski prebliski elektronika ih ne može valjano razlučiti te su odbačeni, ili vanjski, u slučaju signala prisutnog u INH ulazu multikanalnog analizatora. Mrtvo vrijeme ne ulazi u proračun aktivnosti.

4.2.3. Optimalni vremenski prozor aktivnog štita

Vremenski prozor aktivnog štita je vrijeme nakon detekcije miona s PVT detektorom tokom kojega se odbacuju događaji detektirani HPGe detektorom. Ako je premalen, smanjuje se efikasnost aktivnog štita (redukcija događaja u HPGe spektru), no ukoliko je prevelik, raste mrtvo vrijeme detektora i mogućnost odbacivanja slučajnih koincidencija. Na slici 25 vidljiva je raspodjela razlika vremenskih koordinata detektiranih događaja bilo kojim PVT detektorom i HPGe detektorom.



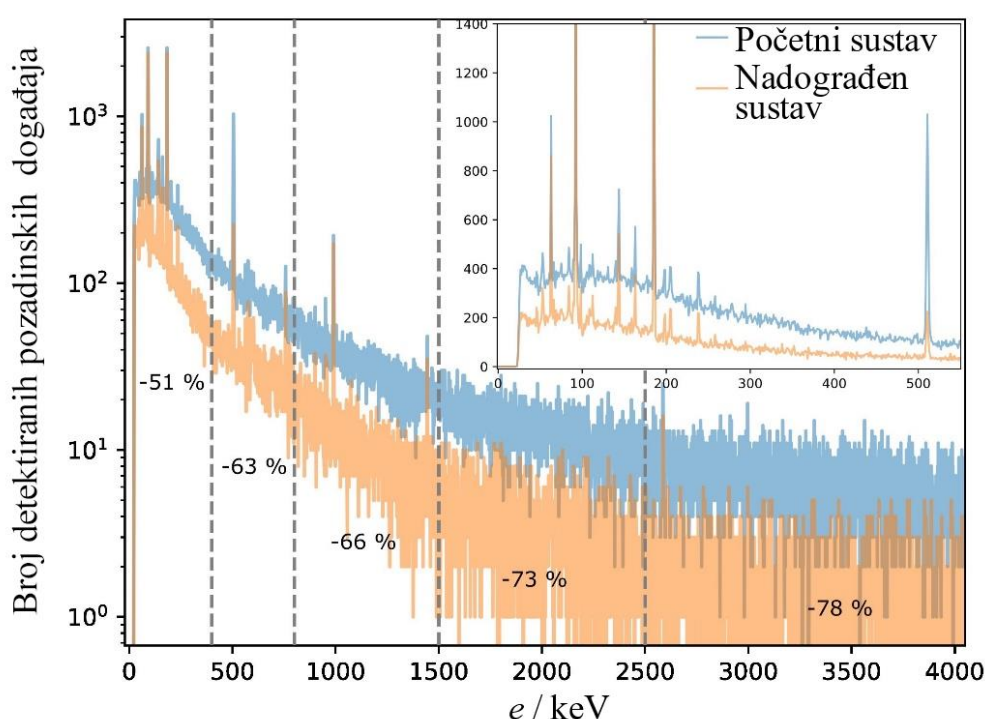
Slika 25. raspodjela razlika vremenskih koordinata detektiranih događaja bilo kojim PVT detektorom i HPGe detektorom [uređeno prema ref. 50].

Ukupni vremenski interval od 40 μs podjeljen je na 300 podintervala. Referentno vrijeme naspram kojega se računa razlika vremenskih koordinata je trenutak detekcije s PVT detektorom. U raspodjeli je vidljiv izražen vrh koji se naglo izdiže nakon 1 μs te postepeno pada narednih 14 μs . Događaji unutar tog prozora su pravi koincidentni događaji detektirani PVT i HPGe detektorom koji potječu od miona, dok za događaje van njega raste vjerojatnost

da se radi o nepovezanim, slučajno vremenski bliskim događajima detektiranim u približno vrijeme. Vremenski interval od 15 μ s odabran je kao optimalni vremenski prozor. Na slici 25 vremenski prozor podjeljen je na pod intervale te je označen postotak koincidentnih događaja u pod intervalu. Većina koincidentnih događaja, njih 95,8 % je detektirano (te odbačeno iz HPGe spektra) u intervalu od 1 – 2,3 μ s.

4.2.4. Redukcija pozadinskog doprinosa i granica detekcije

Nakon optimizacije energijskog praga i vremenskog prozora, na slici 26 uspoređeni su spektri pozadinskog zračenja HPGe detektora prije i nakon odbacivanja koincidentnih događaja.



Slika 26. Usporedba spektara pozadinskog zračenja HPGe detektora prije i nakon odbacivanja koincidentnih događaja. Skala na glavnom spektru je logaritamska, dok je uvećani pregled područja od 0 do 600 keV prikazan na linearnoj skali [uređeno prema ref. 50].

Aktivni štitič značajno je efikasniji u visokoenergijskom području, gdje uklanja 80 % događaja iz pozadinskog spektra, naspram niskoenergetskog područja gdje redukcija iznosi 50 %. Razlog tome je populiranost niskoenergetskog područja spektra zračenjem okolnih nuklida te je relativan doprinos kozmičkog zračenja manji u niskoenergetskom području. Sniženje anihilacijskog vrha pri 511 keV iznosi 79 %, što implicira da je većina anihilacijskih fotona detektiranih HPGe detektorom potjecala iz anihilacijskih događaja u PVT detektorima. Vrhovi

prirodnih gama emitera nalaze se u području od 40 keV do 2700 keV. U tome području uklonjeno je 57,5 % događaja. Brzina detekcije događaja pala je s 0,58 na 0,27 događaja po sekundi te je faktor redukcije iznosio 2,4, što je u skladu s objavljenom literaturom^{100,112–114} o sličnim sustavima u laboratorijima smještenim na površini. Utvrđeno je da gornji PVT detektor uklanja 39,9 % događaja, dok bočni uklanjaju 10,6 % i 11,2 %. Ukupan broj uklonjenih događaja ne podudara se sa zbrojem pojedinačnih doprinosa zbog detekcije istog miona u više od jednog PVT detektora u nekim slučajevima.

Okarakterizirani sustav prilagođen je Canberra DSA-LX multikanalnom analizatoru, koristeći optimirane parametre energijskog praga i vremenskog prozora, kako je opisano u potpoglavlju 3.4.4 *Prilagodba za rutinska mjerenja*, zbog jednostavnosti mjerenja. Nakon prilagodbe mjerenja se izvode identično kao prije nadogradnje. Nadograđenim sustavom ponovljena su mjerenja odabranih uzoraka, kako bi se utvrdilo koliko su novim sustavom snižene granice detekcije pojedinih radionuklida. U tablici 9 prikazane su granice detekcije odabranih radionuklida u uzorcima hrane prije i nakon nadogradnje sustava.

Tablica 9. Granice detekcije uzoraka hrane prije i nakon nadogradnje gama-spektrometrijskog sustava aktivnim štitom. Uz uzorak nevedena je masa i vrijeme mjerenja (G.D. – granice detekcije, Poč. – Početni, Akt. – Aktivni, % red. – postotak redukcije, ks = 1000 s).

<i>E</i> / keV	Mlijeko u prahu, 120 g 257 ks			Krumpir, 120 g 160 ks			Cvjetača, 70 g 200 ks			Kelj, 100 g 340 ks		
	G.D. / Bq kg ⁻¹			G.D. / Bq kg ⁻¹			G.D. / Bq kg ⁻¹			G.D. / Bq kg ⁻¹		
	Poč. sustav	Akt. štit	% red.	Poč.	Akt. štit	% red.	Poč.	Akt. štit	% red.	Poč.	Akt. štit	% red.
46,5 (²¹⁰ Pb)	5,06	3,87	24	5,87	5,28	10	8,76	5,09	42	5,24	3,03	42
609 (²¹⁴ Bi)	1,26	0,87	31	0,82	0,64	22	1,75	1,45	17	0,65	0,61	6
661 (¹³⁷ Cs)	0,56	0,2	64	0,55	0,28	49	0,88	0,41	53	0,32	0,29	9
911 (²²⁸ Ac)	2,25	1,56	31	2,31	1,94	16	3,74	3,3	12	1,5	1,16	23

Redukcije granica detekcije kreću se između nekoliko posto do 60 % i više. Izraženije redukcije postignute su za gama emitere visokih energija i za antropogene radionuklide poput ^{137}Cs , čijih signala nema u pozadinskom spektru.

4.3. Specifične aktivnosti radionuklida u uzorcima poljoprivrednih kultura i transfer radionuklida

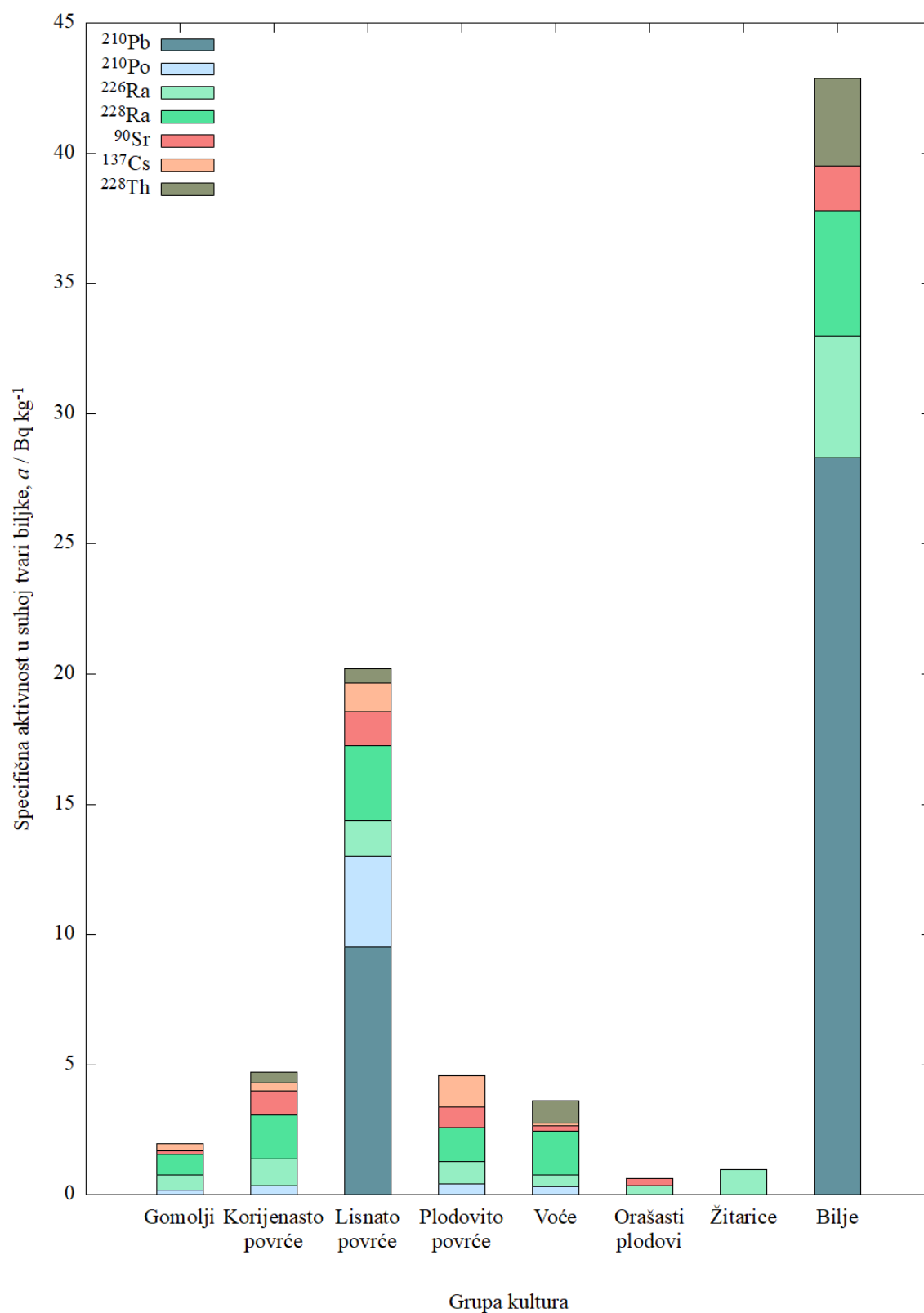
Obrađeni rezultati izmjerenih specifičnih aktivnosti i izračunatih faktora prijenosa, TF , za ^{40}K , ^{137}Cs , ^{210}Pb u ^{210}Po po grupama poljoprivrednih kultura prikazani su u tablici 10 dok su u tablici 11 rezultati za ^{90}Sr , ^{226}Ra te ^{228}Th . Na slici 27 prikazane su srednje vrijednosti specifičnih aktivnosti radionuklida ^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{90}Sr i ^{228}Th po grupama kultura, dok je na slici 28 prikazana srednja vrijednost specifične aktivnosti ^{40}K po grupama. Specifične aktivnosti pojedinih uzoraka poljoprivrednih kultura nalaze se u tablicama D4 – D11, dok se TF radionuklida pojedinih uzoraka nalaze u tablicama D12 – D19 dodatka.

Tablica 10. Rezultati izmjerenih specifičnih aktivnosti ^{40}K , ^{137}Cs , ^{210}Pb i ^{210}Po u poljoprivrednim kulturama. Uz minimalne i maksimalne vrijednosti dana je pogreška mjerenja, $k = 1$, dok je uz srednje vrijednosti i faktore prijenosa, TF , dana standardna devijacija. Kratice: N.D. – nije detektirano, N.M. – nije mjereno.

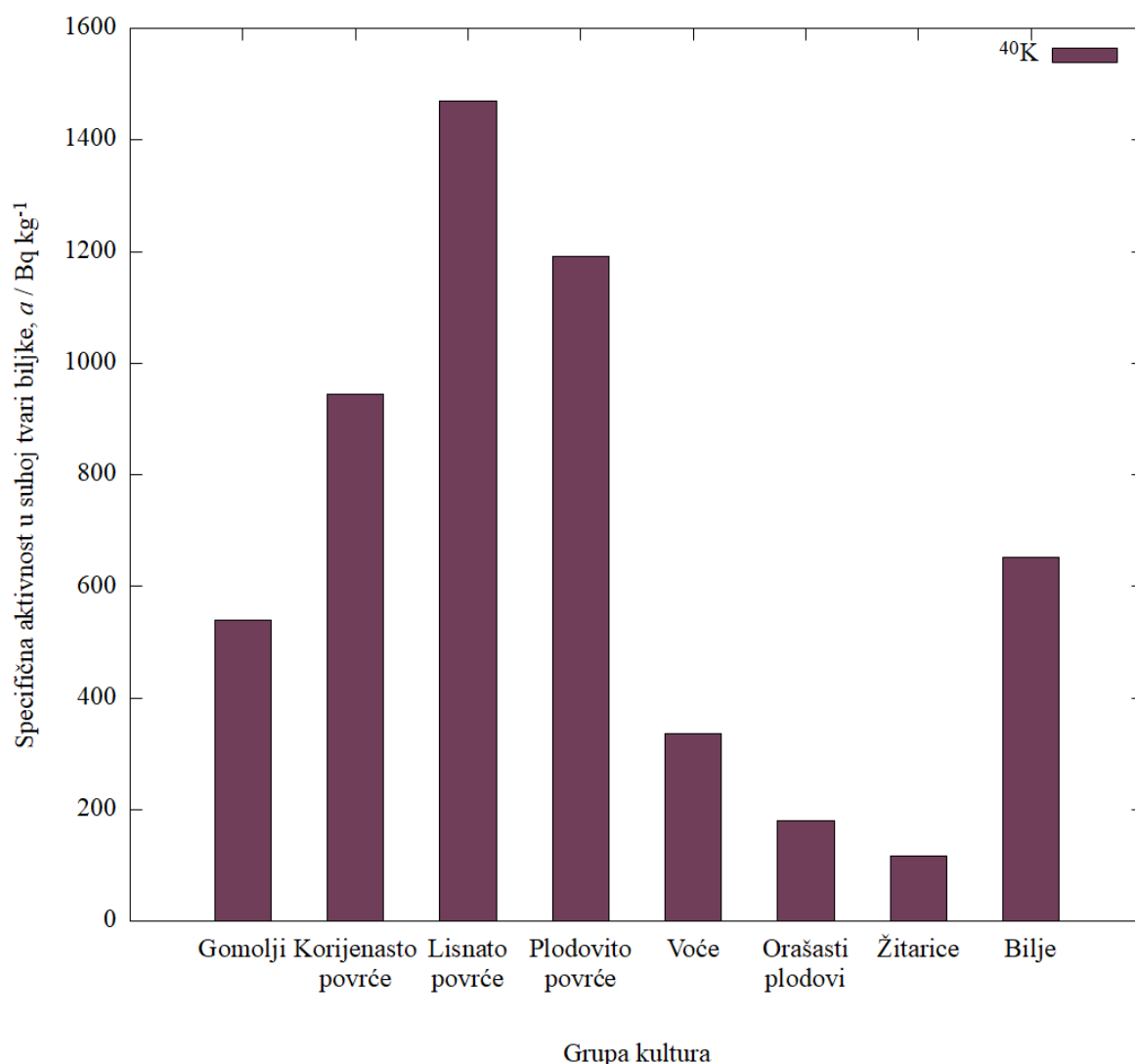
Grupa kultura (broj uzoraka)		Specifična aktivnost u suhoj tvari, a / Bq kg^{-1}			
		^{40}K	^{137}Cs	^{210}Pb	^{210}Po
Gomolji (14)	$a_{\min}$	255 ± 11	$0,17 \pm 0,04$		$0,05 \pm 0,01$
	$a_{\max}$	757 ± 32	$0,36 \pm 0,08$		$0,33 \pm 0,02$
	$\bar{a}$	539 ± 144	$0,24 \pm 0,06$		$0,17 \pm 0,12$
	N	14	8	N.D.	6
	$TF \times 100$	$135,3 \pm 108,5$	$2,2 \pm 0,6$		$0,5 \pm 0,3$
Korijenasto povrće (7)	$a_{\min}$	404 ± 17	$0,10 \pm 0,03$		$0,18 \pm 0,02$
	$a_{\max}$	1242 ± 52	$0,41 \pm 0,07$		$0,59 \pm 0,03$
	$\bar{a}$	944 ± 291	$0,30 \pm 0,14$		$0,34 \pm 0,22$
	N	7	4	N.D.	3
	$TF \times 100$	$208,8 \pm 77,0$	$3,0 \pm 1,1$		$0,8 \pm 0,5$
Lisnato povrće (9)	$a_{\min}$	887 ± 38	$0,15 \pm 0,05$	$2,03 \pm 0,68$	$1,37 \pm 0,07$
	$a_{\max}$	2979 ± 124	$2,65 \pm 0,19$	$29,40 \pm 4,87$	$8,54 \pm 0,46$
	$\bar{a}$	1469 ± 712	$1,08 \pm 1,19$	$9,51 \pm 10,20$	$3,48 \pm 3,39$
	N	9	4	6	4
	$TF \times 100$	$350,5 \pm 218,0$	$11,9 \pm 13,8$	$18,3 \pm 14,0$	$15,0 \pm 18,1$

Tablica 10. Nastavak.

Grupa kultura (broj uzoraka)		Specifična aktivnost u suhoj tvari, a / Bq kg ⁻¹			
		⁴⁰ K	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po
Plodovito povrće (19)	$a_{\min}$	699 ± 29	0,17 ± 0,05	1,96 ± 0,77	0,22 ± 0,02
	$a_{\max}$	2378 ± 99	3,97 ± 0,27		0,70 ± 0,07
	$\bar{a}$	1192 ± 417	1,22 ± 1,30		0,41 ± 0,17
	N	19	13	1	9
	$TF \times 100$	222,0 ± 69,1	15,2 ± 19,9	3,9	1,3 ± 0,4
Voće (11)	$a_{\min}$	208 ± 9	0,10 ± 0,04		0,13 ± 0,01
	$a_{\max}$	482 ± 21	0,11 ± 0,03		0,53 ± 0,03
	$\bar{a}$	336 ± 89	0,11 ± 0,004		0,33 ± 0,17
	N	11	3	N.D.	6
	$TF \times 100$	79,4 ± 43,7	1,5 ± 1,1		0,6 ± 0,6
Orašasti plodovi (2)	$a_{\min}$	132 ± 6			0,14 ± 0,01
	$a_{\max}$	230 ± 10			
	$\bar{a}$	181 ± 70			
	N	2	N.D.	N.D.	1
	$TF \times 100$	43 ± 2			
Žitarice (2)	$a_{\min}$	115 ± 5			
	$a_{\max}$	119 ± 6			
	$\bar{a}$	117 ± 3			
	N	2	N.D.	N.D.	N.M.
	$TF \times 100$	20,2 ± 1,9			
Bilje (5)	$a_{\min}$	391 ± 17	0,95 ± 0,17	17,22 ± 2,62	
	$a_{\max}$	937 ± 40		49,44 ± 6,78	
	$\bar{a}$	653 ± 260		28,31 ± 14,71	
	N		1	4	N.M.
	$TF \times 100$	125,5 ± 34,6	10,3	20,2 ± 15,0	



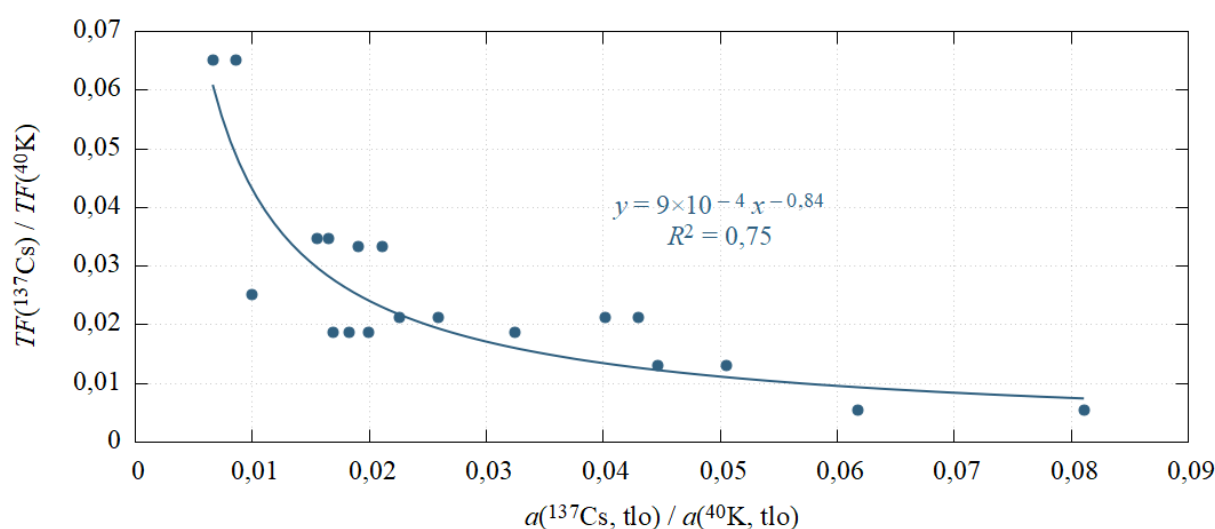
Slika 27. Srednje vrijednosti specifičnih aktivnosti radionuklida ^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{90}Sr i ^{228}Th po grupama poljoprivrednih kultura.



Slika 28. Srednja vrijednost specifične aktivnosti radionuklida ^{40}K po grupama poljoprivrednih kultura.

U svim uzorcima poljoprivrednih kultura detektiran je ^{40}K te je njegova aktivnost najviša kao i u slučaju tla. Najviša specifična aktivnost u suhoj tvari izmjerena je u lisnatom povrću, no korijenasto povrće i plodovito povrće također akumuliraju više ^{40}K nego ostatak kultura. Najniža aktivnost ^{40}K izmjerena je u žitaricama, slijede voće i orašasti plodovi. Budući da je kalij biogeni element te biljke imaju mehanizme za preciznu kontrolu metabolizma kalija, faktori prijenosa ^{40}K variraju značajno te ovise o koncentraciji kalija u tlu. Očekivana aktivnost ^{137}Cs , globalnog kontaminanta kemijski sličnog biogenom elementu K, potvrđena je u približno polovini uzoraka (32 / 69), nakon nadogradnje gama-spektrometrijskog sustava. Određeni faktori prijenosa slažu se s literaturim podacima IAEA.⁷¹ Zbog kemijske sličnosti očekivano je

da kulture bogate kalijem također akumuliraju više pristunog ^{137}Cs , što je potvrđeno u slučaju plodovitog i lisnatog povrća, no ne i u slučaju korijenastog povrća. Zbog metabolizma kalija faktori prijenosa ^{137}Cs i ^{40}K korelirani su s aktivnosti ^{40}K u tlu, što je jasno opaženo u uzorcima krumpira iz područja krša. Krumpir uzgajan na tlu koje sadrži niske razine kalija, akumulirao je više ^{137}Cs od krumpira s područja jednako kontaminiranog ^{137}Cs ali s visokim sadržajem kalija. Omjer faktora prijenosa ^{137}Cs i ^{40}K iz tla u biljku koreliran je s omjerom njihovih specifičnih aktivnosti što je u slaganju s literaturnim opažanjima.¹¹⁵ Na slici 29 prikazano je navedeno opažanje za slučaj prijenosa ^{137}Cs u gomolje.



Slika 29. Korelacija između omjera faktora prijenosa ^{137}Cs i ^{40}K iz tla u gomolje te omjera njihove aktivnosti u tlu

Radionuklid ^{222}Rn plemenit je plin koji nastaje u Zemljinoj kori unutar ^{238}U raspadnog niza. Može migrirati u atmosferu ili se zadržati u kori te raspasti do ^{210}Pb , radionuklida koji se dalje raspada u ^{210}Po i izrazito je toksičan radionuklid. Oba radionuklida dostupni su biljkama iz tla putem korijenja ili iz atmosfere putem lišća. Specifična aktivnost ^{210}Pb određena je gama – spektrometrijski. Iako su granice detekcije snižene nadogradnjom gama – spektrometrijskog sustava ^{210}Pb je rijetko detektirano, tek u približno 20 % uzoraka, većinom u lisnatom povrću te u aromatičnom bilju (kulture koje ga apsorbiraju značajno preko lišća). Međutim, ^{210}Pb je detektirano u korama povrća, koje su izložene tlu (gomolji, korijenasto povrće) ili atmosferi (plodovito povrće), gdje je najvjerojatnije početno adsorbirano na površinski sloj. ^{210}Po detektiran je u svih 29 uzoraka koji su analizirani. Najviše vrijednosti određene su u lisnatom povrću što je u skladu s literaturom.¹¹⁶ Specifične aktivnosti ^{210}Po u

ostalim kulturama niže su vrijednosti za red veličine. Faktori prijenosa također su najviši za lisnato povrće te su viši od rezultata koje reportira IAEA, koji su malobrojni za ^{210}Po .⁷¹ Zbog malog broja uzoraka u kojima su potvrđeni ^{210}Pb i ^{210}Po nije dobivena očekivana korelacija aktivnosti ^{210}Pb i ^{210}Po .

Tablica 11. Rezultati izmjerenih specifičnih aktivnosti ^{90}Sr , $^{226, 228}\text{Ra}$ i ^{228}Th u poljoprivrednim kulturama. Uz minimalne i maksimalne vrijednosti dana je pogreška mjerenja, $k = 1$, dok je uz srednje vrijednosti i faktore prijenosa, TF , dana standardna devijacija. (Kratice: N.D. – nije detektirano, N.M. – nije mjereno).

Grupa		Specifična aktivnost u suhoj tvari, a / Bq kg^{-1}			
kultura (broj uzoraka)		^{90}Sr	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th
Gomolji (14)	$a_{\min}$	$0,04 \pm 0,01$	$0,30 \pm 0,14$	$0,56 \pm 0,33$	$0,28 \pm 0,15$
	$a_{\max}$	$0,46 \pm 0,01$	$0,99 \pm 0,09$	$0,96 \pm 0,58$	
	$\bar{a}$	$0,17 \pm 0,13$	$0,58 \pm 0,21$	$0,79 \pm 0,19$	
	N	13	9	4	1
	$TF \times 100$	$24,1 \pm 19,4$	$1,1 \pm 0,6$	$1,7 \pm 0,4$	1,1
Korijenasto povrće (7)	$a_{\min}$	$0,40 \pm 0,03$	$0,55 \pm 0,08$	$1,22 \pm 0,08$	$0,09 \pm 0,10$
	$a_{\max}$	$1,96 \pm 0,08$	$1,60 \pm 0,13$	$3,13 \pm 0,13$	$0,77 \pm 0,13$
	$\bar{a}$	$0,94 \pm 0,58$	$1,03 \pm 0,36$	$1,70 \pm 0,80$	$0,41 \pm 0,34$
	N	6	7	5	3
	$TF \times 100$	$74,5 \pm 22,6$	$2,4 \pm 0,8$	$3,8 \pm 2,1$	$0,8 \pm 0,8$
Lisnato povrće (9)	$a_{\min}$	$0,39 \pm 0,08$	$0,54 \pm 0,13$	$1,62 \pm 0,18$	$0,15 \pm 0,17$
	$a_{\max}$	$2,54 \pm 0,05$	$3,36 \pm 0,17$	$4,18 \pm 0,27$	$1,45 \pm 0,24$
	$\bar{a}$	$1,31 \pm 0,79$	$1,38 \pm 1,02$	$2,89 \pm 1,28$	$0,57 \pm 0,59$
	N	9	6	3	4
	$TF \times 100$	$217,2 \pm 269,6$	$3,5 \pm 2,7$	$6,5 \pm 3,5$	$2,1 \pm 2,6$

Tablica 11. Nastavak.

Grupa kultura (broj uzoraka)		Specifična aktivnost u suhoj tvari, a / Bq kg ⁻¹			
		⁹⁰ Sr	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
Plodovito povrće (19)	$a_{\min}$	0,13 ± 0,04	0,48 ± 0,26	0,85 ± 0,50	0,46 ± 0,20
	$a_{\max}$	2,87 ± 0,15	1,62 ± 0,14	2,08 ± 0,32	
	$\bar{a}$	0,80 ± 0,91	0,88 ± 0,35	1,28 ± 0,49	
	N	13	8	5	1
	$TF \times 100$	75,8 ± 98,8	1,6 ± 1,0	2,5 ± 1,2	0,9 ± 0,0
Voće (11)	$a_{\min}$	0,05 ± 9,25	0,29 ± 0,09	0,97 ± 0,09	0,21 ± 0,09
	$a_{\max}$	0,38 ± 20,58	0,64 ± 0,09	2,35 ± 0,09	1,49 ± 0,63
	$\bar{a}$	0,20 ± 0,12	0,45 ± 0,14	1,66 ± 0,98	0,85 ± 0,91
	N	6	9	2	2
	$TF \times 100$	58,1 ± 42,1	0,8 ± 0,3	4,6 ± 3,9	1,7 ± 1,8
Orašasti plodovi (2)	$a_{\min}$	0,16 ± 0,01	0,32 ± 0,15		
	$a_{\max}$	0,39 ± 0,01	0,43 ± 0,06		
	$\bar{a}$	0,27 ± 0,16	0,37 ± 0,07		
	N	2	2	N.D.	N.D.
	$TF \times 100$	38,7	0,7		
Žitarice (2)	$a_{\min}$		0,50 ± 0,15	0,99 ± 0,28	
	$a_{\max}$		1,43 ± 0,10		
	$\bar{a}$		0,97 ± 0,66		
	N	N.M.	2	1	N.D.
	$TF \times 100$		2,0 ± 1,3	1,9	
Bilje (5)	$a_{\min}$	0,50 ± 0,02	2,31 ± 0,21	2,02 ± 0,52	0,97 ± 0,36
	$a_{\max}$	3,45 ± 0,06	7,09 ± 0,40	7,58 ± 0,66	5,76 ± 0,61
	$\bar{a}$	1,70 ± 1,32	4,68 ± 2,48	4,80 ± 3,93	3,37 ± 3,38
	N	5	4	2	2
	$TF \times 100$	123,7 ± 140,5	5,8 ± 5,1	7,8 ± 8,0	5,5 ± 6,6

Specifična aktivnost ⁹⁰Sr određena je u 84 % (54 / 64) uzoraka poljoprivrednih kultura podvrgnutih analizi te u svim uzorcima tala, osim jednog. Aktivnosti svih radionuklida u grupama kultura raspoređene su oko srednje vrijednosti uz pokoji ekstrem, no u slučaju ⁹⁰Sr izražena je varijabilnost aktivnosti. Prema tome, i faktori prijenosa ⁹⁰Sr variraju značajno. Uočeno je da faktor prijenosa ⁹⁰Sr ovisi o samoj aktivnosti ⁹⁰Sr u tlu. Faktor prijenosa opada porastom aktivnosti u tlu. Razlog tome je najvjerojatnije varijabilnosti omjera sadržaja Ca i Sr u tlu ili heterogena raspodjela ⁹⁰Sr u tlu.¹¹⁷ Najviša aktivnost ⁹⁰Sr i najveći faktori prijenosa

određeni su u aromatičnom bilju. Rezultati faktora prijenosa slažu se s rezultatima koje reportira IAEA, međutim ovdje prezentirane vrijednosti za lisnato povrće i voće više su nego očekivane vrijednosti IAEA ali i dalje u specificiranom rasponu.⁷¹

Izotopi radija, ^{226}Ra iz ^{238}U raspadnog niza i ^{228}Ra iz ^{232}Th raspadnog niza prisutni su u tlu te su shodno tome dostupni biljci. Zbog relativno kratkog vremena poluraspada ^{228}Ra od 5,75 godina,²⁹ očekivan je prirast njegova potomka ^{228}Th . U 70 % (48 / 69) uzoraka poljoprivrednih kultura detektiran je ^{226}Ra , dok je ^{228}Ra detektiran u 33 % (23 / 69), a ^{228}Th u samo 20 % (14 / 69). U poljoprivrednim tlima izmjerene su otprilike jednake specifične aktivnosti ^{226}Ra i ^{228}Ra . Budući da se izotopi ponašaju kemijski identično, očekuju se i jednaki faktori prijenosa za oba nuklida,¹⁹ no, ovdje određene aktivnosti i faktori prijenosa viši su u slučaju ^{228}Ra . Granice detekcije ^{228}Ra više su nego granice detekcije ^{226}Ra u poljoprivrednim kulturama te je ^{228}Ra rijetko detektiran. Niske aktivnosti ^{228}Ra u kulturama nisu detektirane, zbog čega su rezultati koji koriste samo kvantificirane vrijednosti, pristrani. Detektirane niske specifične aktivnosti ^{228}Th rezultat su prirasta iz raspada ^{228}Ra .

4.4. Specifične aktivnosti radionuklida u uzorcima dječje hrane

Sljedeće tablice prikazuju rezultate analiza specifičnih aktivnosti radionuklida ^{40}K , ^{137}Cs , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra te ^{228}Th , ^{230}Th i ^{232}Th u različitoj dječjoj hrani namijenjenoj za djecu do jedne godine starosti. Tablica 12 sadrži rezultate gama-spektrometrijskih analiza u mliječnim formulama i gotovim homogeniziranim obrocima. Tablica 13 sadrži rezultate alfa-spektrometrijskih analiza mliječnih formula i suhih pripravaka za žitne kaše, dok su rezultati alfa-spektrometrijskih analiza gotovih homogeniziranih obroka prikazani u tablici 14.

Tablica 12. Specifične aktivnosti s nesigurnošću ($k = 1$), gama emitera u početnoj mliječnoj formuli (PM1) te gotovim homogeniziranim obrocima, nakon nadogradnje gama-spektrometrijskog sustava. Kratice: N.D. – nije detektirano.

Vrsta uzorak	Dob	Sastav	Uzorak	Specifična aktivnost, a , suha tvar / Bq kg ⁻¹			
				⁴⁰ K	¹³⁷ Cs	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra
Mliječna formula	Do 6 mj.	Mlijeko	PM1-1	162 ± 7	0,16 ± 0,05	N.D.	N.D.
			PM1-2	180 ± 8	0,22 ± 0,05	0,89 ± 0,08	N.D.
			PM1-3	165 ± 8	N.D.	0,40 ± 0,09	N.D.
			PM1-4	151 ± 7	0,22 ± 0,06	1,29 ± 0,12	N.D.
			PM1-5	165 ± 8	N.D.	N.D.	N.D.
			PM1-6	171 ± 8	0,15 ± 0,06	N.D.	N.D.
Voćna kaša	Od 4 mj.	Banana, breskva, jabuka	F4-2	162 ± 7	N.D.	N.D.	N.D.
Povrtna kaša	Od 5 mj.	Tjestenina, rajčica	V5-1	455 ± 19	N.D.	0,28 ± 0,07	1,21 ± 0,25
		Krumpir, mrkva	V5-2	472 ± 20	N.D.	0,56 ± 0,06	0,82 ± 0,15
		Mrkva	V5-3	643 ± 27	N.D.	0,52 ± 0,06	0,74 ± 0,18
Povrtna kaša s mesom	Od 4 mj.	Brokula, riža, puretina	M4-1	225 ± 10	N.D.	0,45 ± 0,09	0,66 ± 0,04
	Od 5 mj.	Riža, piletina	M5-1	418 ± 18	N.D.	0,42 ± 0,08	1,02 ± 0,24
		Riža, piletina	M5-2	244 ± 11	0,15 ± 0,03	N.D.	N.D.
		Mrkva, krumpir, janjetina	M5-3	414 ± 18	0,38 ± 0,05	0,35 ± 0,07	0,58 ± 0,13
		Povrće, krumpir, teletina	M5-4	338 ± 15	N.D.	N.D.	N.D.
	Od 12 mj.	Povrće, tjestenina, piletina	M12-1	274 ± 12	N.D.	0,25 ± 0,09	N.D.

Nakon nadogradnje gama – spektrometrijskog sustava snižene su granice detekcije radionuklida u mliječnim formulama te su ¹³⁷Cs i ²²⁶Ra detektirani u tri odnosno četiri uzorka, dok su prije nadogradnje bili detektirani samo u jednom uzorku. ²²⁸Ra nije detektiran u uzorcima mliječnih formula, no detektirane su niske aktivnosti, u rasponu od 0,58 do 1,21 Bq kg⁻¹, u 6 / 10 uzoraka gotovih homogeniziranih obroka u kojima prije nadogradnje nisu detektirane aktivnosti ²²⁸Ra.¹¹⁸ Nove vrijednosti specifičnih aktivnosti korištene su za izračun digestijskih doza.

Tablica 13. Specifične aktivnosti ^{210}Po te $^{228,230,232}\text{Th}$ mjerenih alfa-spektrometrijski, s nesigurnošću ($k = 1$), ^{210}Po i $^{228,230}\text{Th}$ u mliječnim formulama (PM) i suhim pripravcima za žitne kaše. Kratice: N.M. – nije mjereno.

Vrsta uzorka	Dob	Sastav	Uzorak	Specifična aktivnost, a , suha tvar / mBq kg^{-1}		
				^{210}Po	^{228}Th	^{230}Th
Mliječna formula	Do 6 mj.	Mlijeko	PM1-1	130 ± 27	N.M.	N.M.
			PM1-2	65 ± 14	N.M.	N.M.
			PM1-3	200 ± 47	N.M.	N.M.
			PM1-4	52 ± 11	N.M.	N.M.
			PM1-5	46 ± 10	N.M.	N.M.
			PM1-6	502 ± 73	$5,6 \pm 1,1$	47 ± 4
	Od 6 mj.	Mlijeko	PM2-1	34 ± 9	$3,9 \pm 1,1$	17 ± 2
			PM2-3	20 ± 5	$7,8 \pm 1,5$	20 ± 3
			PM2-4	N.M.	$6,8 \pm 1,3$	22 ± 3
	Od 10 mj.	Mlijeko	PM3-2	62 ± 12	38 ± 5	10 ± 3
			PM3-3	71 ± 15	N.M.	N.M.
			PM3-4	40 ± 9	17 ± 3	37 ± 5
Žitne kašice	Od 4 mj.	Riža	C4-1	18 ± 5	52 ± 5	$5,9 \pm 1,6$
		Kukuruz	C4-2	68 ± 11	$8,3 \pm 1,6$	$6,6 \pm 1,5$
		Riža	C4-3	81 ± 13	N.M.	N.M.
	Od 5 mj.	Griz	C5-1	143 ± 17	31 ± 5	13 ± 3
		Zob	C5-2	160 ± 19	N.M.	N.M.
		Riža	C5-3	117 ± 14	N.M.	N.M.

Tablica 14. Specifične aktivnosti ^{210}Po te $^{228,230,232}\text{Th}$ mjerenih alfa-spektrometrijski, s nesigurnošću ($k = 1$), u gotovim homogeniziranim obrocima.

Dob	Sastav kašice	Uzorak	Specifična aktivnost u suhoj tvari, $a / \text{mBq kg}^{-1}$			
			^{210}Po	^{228}Th	^{230}Th	^{232}Th
4 mj.	Banana, breskva, jabuka	F4-2	366 ± 40	$36,6 \pm 3,6$	$22,3 \pm 2,9$	$7,2 \pm 1,4$
5 mj.	Tjestenina, rajčica	V5-1	163 ± 26	$42,0 \pm 8,4$	$43,1 \pm 8,4$	N.M.
	Krumpir, mrkva	V5-2	326 ± 37	N.M.	N.M.	N.M.
	Mrkva	V5-3	295 ± 35	393 ± 21	$36,5 \pm 5,6$	N.M.
4 mj.	Brokula, riža, puretina	M4-1	196 ± 29	$65,3 \pm 2,9$	$32,6 \pm 2,2$	$16,7 \pm 1,5$
5 mj.	Riža, pileтина	M5-1	330 ± 38	131 ± 21	$39,9 \pm 11,0$	$11,7 \pm 4,8$
	Riža, pileтина	M5-2	228 ± 29	$91,2 \pm 9,8$	$24,1 \pm 4,6$	N.M.
	Mrkva, krumpir, janjetina	M5-3	220 ± 30	$79,9 \pm 6,7$	$24,6 \pm 4,0$	$8,0 \pm 2,7$
	Povrće, krumpir, teletina	M5-4	128 ± 19	109 ± 10	$32,0 \pm 4,5$	$10,9 \pm 2,6$
12 mj.	Povrće, tjestenina, pileтина	M12-1	69 ± 13	56 ± 3	$11,3 \pm 1,3$	$5,0 \pm 1,3$

Radionuklid ^{210}Po je detektiran u svim uzorcima dječje hrane. Općenito, najviše aktivnosti izmjerene su u uzorcima gotovih homogeniziranih obroka, ali najviša aktivnost je izmjerena u jednom uzorku početne mliječne formule, u kojima aktivnosti dosežu 502 mBq kg^{-1} , dok raspon u mliječnim formulama za stariju dojenčad (od 4 mjeseca života pa nadalje) iznosi od 20 do 71 mBq kg^{-1} . Veliki raspon aktivnosti opažen je i u slučaju žitnih kašica. Iznosio je od 18 mBq kg^{-1} u uzorku koji je sadržavao rižu do 160 mBq kg^{-1} u uzorku koji je sadržavao zob. Specifična aktivnost ^{210}Pb nije detektirana zbog previsokih granica detekcije. Rezultati aktivnosti ^{210}Po ukazuju na prisutstvo ^{210}Pb , no različiti procesi proizvodnje hrane mogu narušiti sekularnu ravnotežu između ^{210}Pb i ^{210}Po pa se njihove aktivnosti ne mogu izjednačiti.

Specifične aktivnosti ^{228}Th određene su u svim analiziranim uzorcima dječje hrane te variraju od desetak mBq kg^{-1} u uzorcima mlijeka i suhih pripravaka za žitne kašice, do nekoliko desetaka mBq kg^{-1} u gotovim homogeniziranim obrocima. U uzorku homogeniziranog obroka baziranog na mrkvi određena je maksimalna aktivnost od $393,3 \text{ mBq kg}^{-1}$. ^{228}Ra također je

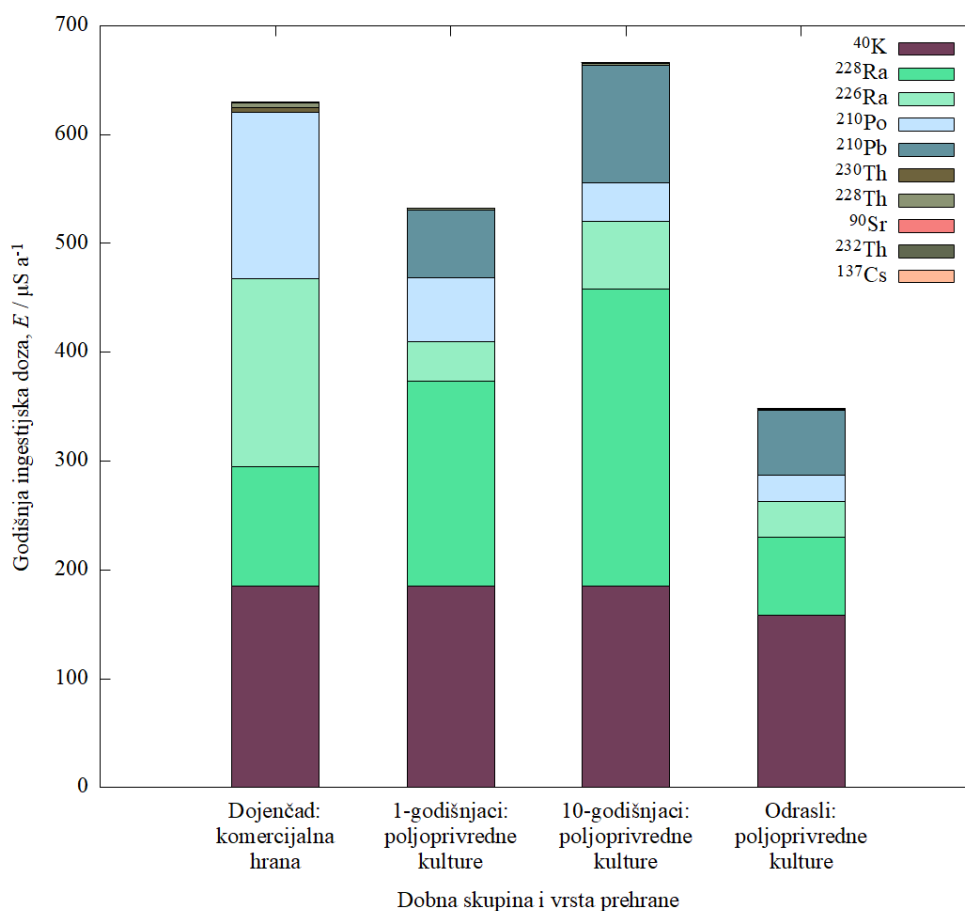
određen gama-spektrometrijski, međutim nesigurnost mjerenja je bila prevelika za pouzdanu kvantifikaciju. Aktivnosti ^{230}Th određene su u svim uzorcima te variraju od $3,9 \text{ Bq kg}^{-1}$ do maksimalnih opaženih $43,1 \text{ Bq kg}^{-1}$ u uzorku gotovog obroka s rajčicom i tjesteninom. Dugoživući ^{232}Th nije detektiran niti u jednom uzorku mliječne formule i suhog pripravka za kašu, dok su u homogeniziranim obrocima detektirane niske aktivnosti u nekoliko uzoraka.

4.5. Ingestijske doze populacija Hrvatske

Izračunate su godišnje ingestijske doze za dojenčad hranjenu komercijalnom hranom odnosno za jednogodišnjake, desetogodišnjake te odrasle kod prehrane poljoprivrednim kulturama redom iznose $630 \mu\text{Sv a}^{-1}$, $533 \mu\text{Sv a}^{-1}$, $666 \mu\text{Sv a}^{-1}$ te $348 \mu\text{Sv a}^{-1}$. Sve navedene vrijednosti ispod su preporučene maksimalne doze od $1000 \mu\text{Sv a}^{-1}$ [ref. 45]. Izračunate doze zajedno s doprinosom pojedinog radionuklida, prikazane su u tablici 15 te na slici 30 za četiri dobne skupine: dojenčad (0 – 1 godina) hranjenu komercijalnom hranom te jednogodišnjake, desetogodišnjake i odrasle kod prehrane poljoprivrednim kulturama. Zbog homeostaze kalija, doze ^{40}K ograničene su na maksimalno $165 \mu\text{S a}^{-1}$ za odrasle, odnosno $185 \mu\text{S a}^{-1}$ za djecu. Doprinosi pojedine vrste hrane, bez doprinosa ^{40}K (objašnjenje slijedi u nastavku) prikazani su u tablici 16, za dojenčad hranjenu komercijalnom dječjom hranom, u tablici 17 za sve tri dobne skupine kod prehrane poljoprivrednim kulturama te na slici 31 za dojenčad hranjenu komercijalnom hranom te jednogodišnjake, desetogodišnjake i odrasle kod prehrane poljoprivrednim kulturama.

Tablica 15. Godišnje ingestijske doze i doprinosi pojedinog radionuklida dozi, za četiri dobne skupine.

Dob	Godišnja ingestijska doza, $E / \mu\text{S a}^{-1}$									
	^{40}K	^{226}Ra	^{210}Po	^{228}Ra	^{210}Pb	^{230}Th	^{228}Th	^{90}Sr	^{232}Th	^{137}Cs
Dojenčad	185 (29 %)	173 (27 %)	153 (24 %)	109 (17 %)	N.D.	4,5 (0,7 %)	4,1 (0,7 %)	0,6 (0,1 %)	0,4 (0,1 %)	0,1 (0,0 %)
1-godišnjaci	185 (35 %)	36 (7 %)	59 (11 %)	189 (35 %)	62 (12 %)	N.M.	1,8 (0,3 %)	0,3 (0,1 %)	N.M.	0,1 (0,0 %)
10-godišnjaci	185 (28 %)	62 (9 %)	35 (5 %)	273 (41 %)	109 (16 %)	N.M.	1,7 (0,3 %)	0,6 (0,1 %)	N.M.	0,1 (0,0 %)
Odrasli	158 (45 %)	33 (9 %)	24 (7 %)	73 (21 %)	59 (17 %)	N.M.	1,3 (0,4 %)	0,4 (0,1 %)	N.M.	0,2 (0,1 %)



Slika 30. Godišnje ingestijske doze i doprinosi pojedinog radionuklida dozi.

Budući da je kalij jedan od najvažnijih biogenih elemenata, ljudski metabolizam strogo regulira količinu kalija u tijelu, pa tako i količinu ^{40}K . Zbog spomenute regulacije, procijenjena maksimalna ingestijska doza ^{40}K iznosi $185 \mu\text{S a}^{-1}$ za djecu (svih uzrasta) te $165 \mu\text{S a}^{-1}$ za odrasle.^{19,45,119} U slučajevima djece, doza od ^{40}K izračunata prema (2.5.2) prelazi homeostatsku vrijednost te je homeostatska vrijednost uzeta kao reprezentativna. U slučaju odraslih, izračunata doza nešto je niža od homeostatske te je za daljnje proračune uzeta izračunata doza. Prema tome, ^{40}K i nakon uzimanja umanjениh vrijednosti zbog homeostaze kalija i dalje najviše doprinosi dozi za dojenčad hranjenu komercijalnom hranom (29 %) te odrasle kod prehrane poljoprivrednim kulturama (45 %), dok je doprinos ^{40}K dozi jednogodišnjaka (35 %) i desetogodišnjaka (28 %) za prehranu poljoprivrednim kulturama drugi najviši doprinos, nakon doprinosa ^{228}Ra .

U slučaju komercijalne dječje hrane, nakon doprinosa ^{40}K , najviši doprinos je od ^{226}Ra (27 %) zatim slijede ^{210}Po (24 %), ^{228}Ra (17 %) te izotopi $^{228,230}\text{Th}$ (svaki 0,7 %). Doprinosi

^{232}Th , ^{90}Sr i ^{137}Cs su zanemarivi. Izračunata doza nešto je viša naspram globalne srednje doze navedene u izvještajima Znanstvenog odbora Ujedinjenih naroda za učinke atomskog zračenja (engl. *United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation*, UNSCEAR), od $290 \mu\text{S a}^{-1}$, no i dalje je unutar raspona vrijednosti od $200 \mu\text{S a}^{-1}$ do $800 \mu\text{S a}^{-1}$ [ref. 45] te je usporediva s rezultatima europskih i svjetskih zemalja.^{25,120,121} Potencijalni razlog rezultata viših od globalnog prosjeka jest i sveobuhvatnost ovdje provedene analize. Naime, kod mnogih drugih izvještenih rezultata istraživanja su provedena na manjem podskupu vrsta hrane ili na manjem skupu određivanih radionuklida, najčešće samo onih određivanih gama-spektrometrijski.

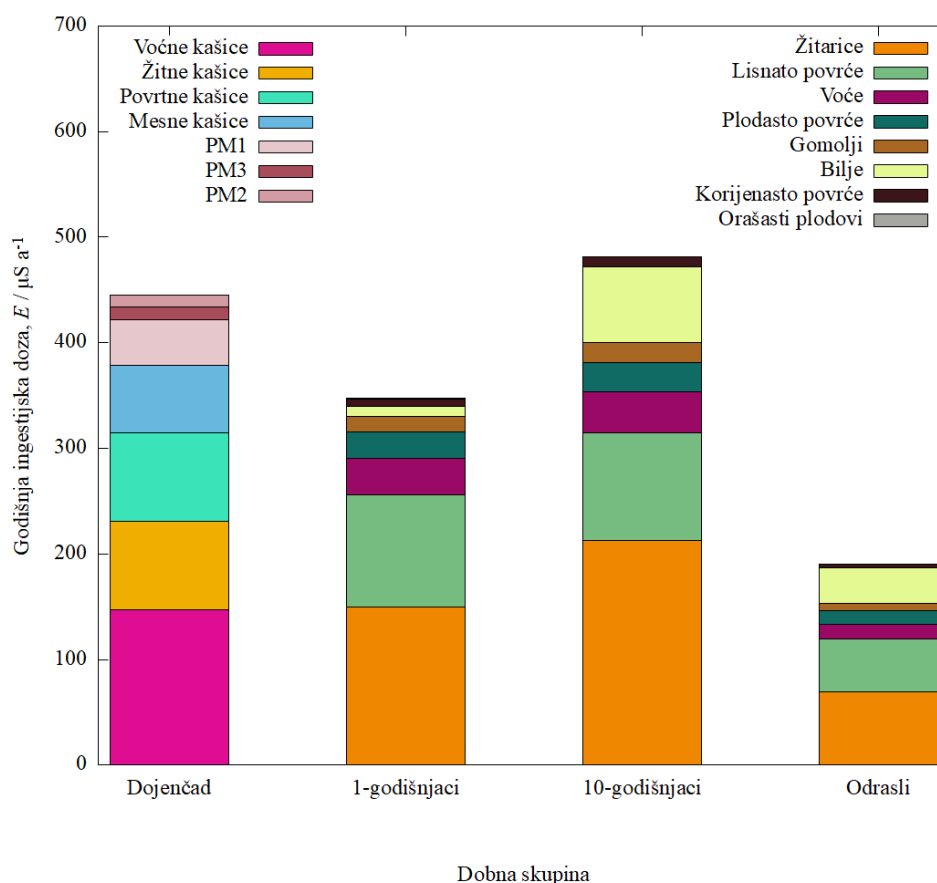
U slučaju poljoprivrednih kultura, dozi odraslih nakon doprinosa ^{40}K , redom slijede doprinosi ^{228}Ra (21 %), ^{210}Pb (17 %), ^{226}Ra (10 %) te ^{210}Po (7 %). Redoslijed doprinosa radionuklida godišnjoj ingestivskoj dozi jednogodišnjaka hranjenih poljoprivrednim kulturama je ^{228}Ra (35 %), ^{40}K (35 %), ^{210}Pb (12 %), ^{210}Po (11 %), ^{226}Ra (7 %) dok su doprinosi ^{228}Th , ^{90}Sr i ^{137}Cs zanemarivi. U slučaju desetogodišnjaka redoslijed je sličan, ^{228}Ra (41 %), ^{40}K (28 %), ^{210}Pb (16 %), ^{226}Ra (9 %), ^{210}Po (5 %) dok su doprinosi ^{228}Th , ^{90}Sr i ^{137}Cs zanemarivi. Jednogodišnjaci i desetogodišnjaci znatno su osjetljiviji na učinke ionizirajućeg zračenja nego odrasli, budući da obje skupine prime višu dozu iz manje konzumirane hrane. Desetogodišnjaci, dobna skupina u kojoj se naglo razvija koštano tkivo, izrazito je osjetljiva na izotope radija, koji se zbog kemijske sličnosti ugrađuju u koštano tkivo umjesto kalcija.

Tablica 16. Godišnje ingestivske doze i doprinos pojedine vrste komercijalne dječje hrane za dojenčad. Zbog homeostaze kalija doprinosi ^{40}K su izostavljeni.

	Voćne kašice	Žitne kašice	Povrtne kašice	Mesne kašice	PM1	PM3	PM2
E / $\mu\text{S a}^{-1}$	147	84	84	64	43	12	11
Udio	33 %	19 %	19 %	14 %	10 %	3 %	3 %

Tablica 17. Godišnje ingestijske doze i doprinos pojedine grupe poljoprivrednih kultura za jednogodišnjake, desetogodišnjake i odrasle. Zbog homeostaze kalija doprinosi ^{40}K su izostavljeni.

Dob	Godišnja ingestijska doza, $E / \mu\text{S a}^{-1}$ (udio)							
	Žitarice	Lisnato povrće	Voće	Plodovito povrće	Gomolji	Bilje	Korijenasto povrće	Orašasti plodovi
1-godišnjaci	149 (43 %)	107 (31 %)	34 (10 %)	25 (7 %)	15 (4 %)	9 (3 %)	7 (2 %)	0,6 (0,2 %)
10-godišnjaci	213 (44 %)	102 (21 %)	39 (8 %)	28 (6 %)	19 (4 %)	72 (15 %)	9 (2 %)	0,5 (0,1 %)
Odrasli	69 (36 %)	50 (26 %)	14 (7 %)	13 (7 %)	7 (3 %)	34 (18 %)	3 (2 %)	0,3 (0,2 %)



Slika 31. Godišnje ingestijske doze i doprinos pojedine vrste komercijalne dječje hrane odnosno poljoprivredne grupe ingestijskoj dozi za četiri dobne skupine.

Godišnjoj ingestijskoj dozi kod dojenčadi hranjenoj komercijalnom dječjom hranom najviše doprinose voćne kašice (33 %) dozi, zatim slijede doprinosi žitnih (19 %), povrtnih

(19 %) i mesnih (14 %) kašica te mliječnih pripravaka PM1 (10 %), PM3 (3 %) i PM2 (3 %). U slučaju prehrane poljoprivrednim kulturama, redoslijed doprinosa grupe kulture je sljedeći: žitarice (43 %), lisnato povrće (31 %), voće (10 %), plodovito povrće (7 %), gomolji (4 %), bilje (3 %), korijenasto povrće (2 %) te orašasti plodovi (0,2 %). Za preostale dvije skupine, redoslijed doprinosa nešto je drugačiji, doprinos bilja je pomaknut na treći najviši doprinos. Razlog tome je značajno veća konzumacija biljnih pripravaka među desetogodišnjacima i odraslima naspram jednogodišnjaka.

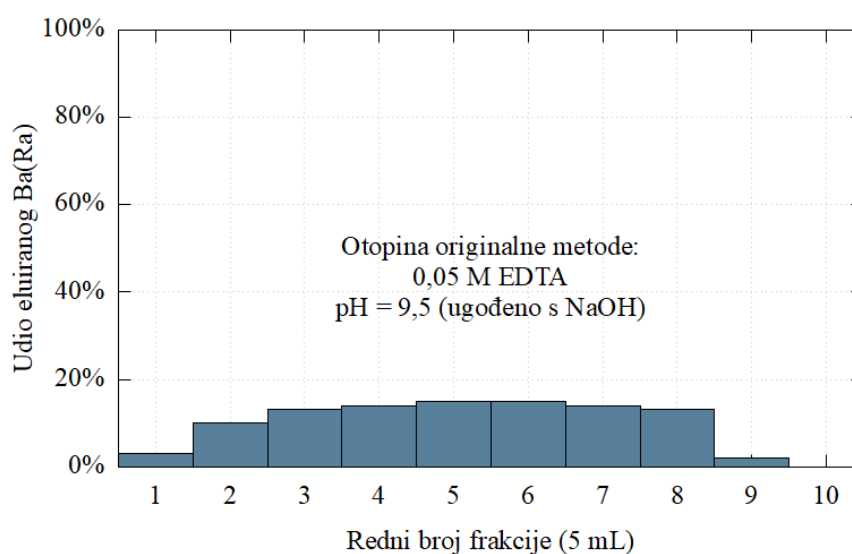
4.6. Sastavljanje uređaja za automatizirano odjeljivanje i razvitak metode odjeljivanja Pb, Sr, Ra, Ba

4.6.1. Preliminarna ručna odjeljivanja

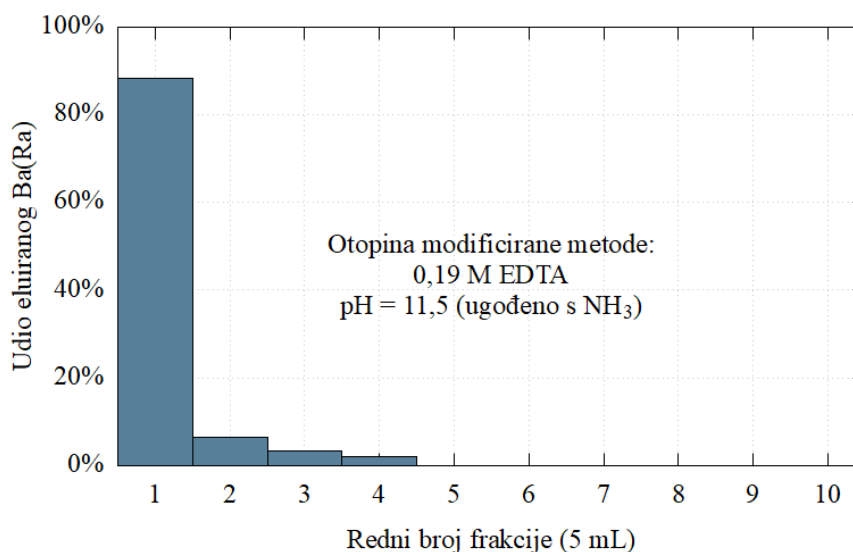
Prije nego je uređaj za automatizirano sekvencijalno odjeljivanje sastavljen, početna metoda za odjeljivanje ^{210}Pb , ^{90}Sr te ^{133}Ba je **modificirana**. Kationi Ra^{2+} i Ba^{2+} kemijski se slično ponašaju te je uobičajno aproksimirati jednako kemijsko ponašanje. Prvotna metoda⁸⁵ usredotočila se na brzo odjeljivanje radionuklida u slučaju incidentnih situacija. Budući da prilikom nesreća može doći do značajnog ispuštanja radioizotopa barija, odjeljivanje i detekcija radioizotopa Ba bili su jedni od primarnih fokusa metode. Razvijena metoda je uspješno odjeljivala barij (i radij) ali u relativno velikom volumenu (55 mL), što nije stvaralo problem za detekciju radioizotopa Ba gama-spektrometrijski. Međutim, za detekciju niskih aktivnosti ^{226}Ra potrebno je koristiti metodu alfa spektrometrije koja zahtjeva pripremu izvora ^{226}Ra mikrokoprecipitacijom. Izvori taloženi iz barijeve i radijeve frakcije odjeljene prema originalnoj metodi i dalje sadrže nečistoće koje uzrokuju šum u spektru te proširenje i preklapanje vrhova, što u slučaju niskih aktivnosti ima znatno veći utjecaj na pouzdanost analize spektra, zbog čega je potrebno modificirati odjeljivanja.

Više koncentracije EDTA te viša pH vrijednost otopine ispiru Ra i Ba efikasnije i u manjim volumenima. Zasićena otopina $\text{Na}_2\text{H}_2\text{EDTA}$ zalužena je otopinom NaOH ili NH_3 do pH vrijednosti 11,5, budući da lužnatije otopine ($\text{pH} > 11,5$) počinju razarati smolu. Iako su obje otopine ispirale sav Ba i Ra sa smole, alfa spektri taloženih uzoraka značajno su se razlikovali. Vrhovi u alfa spektrima uzoraka u kojima je Ra odjeljen pomoću otopine zalužene s NaOH imaju veću širinu, to jest rezolucija spektra je lošija. To je dovelo do preklapanja vrhova spektara ^{226}Ra i njegovih potomaka (koji nastaju u samom izvoru nakon odjeljivanja), što značajno komplicira analizu spektra i valjano određivanje ^{226}Ra . Prema tome, za novu metodu je odabrana otopina zalužena s NH_3 . Međutim, daljnja testiranja su pokazala da se

rezolucija spektara smanjuje stajanjem otopine. Stoga je potrebno neposredno prije svakog odjeljivanja pripremiti otopinu. Zasićena vodena otopina $\text{Na}_2\text{H}_2\text{EDTA}$ (0,25 M) pomiješa se s zasićenom otopinom NH_3 (30 %) u omjeru 10:3 te nastaje 0,19 M otopina EDTA pH vrijednosti 11,5. Za usporedbu, na slici 32 prikazan je elucijski profil Ba odnosno Ra u slučaju originalne otopine, 0,05 M EDTA pH vrijednosti otopine 9,5 ugođene s NaOH, dok slika 33 prikazuje elucijski profil ukoliko se koristi ovdje predložena 0,19 M EDTA, pH vrijednosti 11,5 ugođene s otopinom NH_3 neposredno prije samog odjeljivanja.



Slika 32. Elucijski profil Ba i Ra s 0,05 M EDTA, pH vrijednosti 9,5 ugođen korištenjem otopine NaOH [uređeno prema ref. 85].



Slika 33. Eluacijski profil Ba i Ra s 0,25 M EDTA, pH vrijednosti 11,5 ugođen korištenjem otopine NH_3 neposredno prije samog odjeljivanja.

Za skidanje i ispiranje svog barija originalnom metodom potrebno je koristiti barem 45 mL otopine. Promjenom otopine postiže se potpuno ispiranje Ba i Ra već s 20 mL otopine.

4.6.2. Odjeljivanja modelnih otopina

Odjeljivanjem elemenata iz modelnih otopina testiran je rad sastavljenog sustava opisanog u poglavlju 3.5 *Automatizirano sekvencijalno odjeljivanje radionuklida iz tekuće faze* te je ispitana efikasnost sustava za različite količine smole. Zbog visoke cijene AnaLig®Sr-01 smole bitno je koristiti najmanju moguću količinu smole, no potrebno je voditi računa o prihvatljivom iskorištenju odjeljivanja. Testiranja su pokazala da je sastavljeni sustav ispravno, prateći naredbe napisane skripte, prepumpavao zadane otopine kroz kolonu sa smolom u ispravne frakcije. Pogreška prepumpanog volumena iznosila je oko 2 %, što je prihvatljivo budući da su u svakoj frakciji bile zadovoljavajuće količine ciljanog elementa za naredne analize. Rezultati automatiziranih odjeljivanja prikazani su u tablici 18.

Tablica 18. Iskorištenja automatiziranog sekvencijalnog odjeljivanja ciljanih elemenata iz modelnih otopina korištenjem 0,2 ili 0,4 g AnaLig®Sr-01 smole.

Masa korištene smole / g	Iskorištenje odjeljivanja / %		
	Sr^{2+}	Pb^{2+}	Ba^{2+}
0,2	50 – 60	70 – 85	60 – 70
0,4	70 – 80	70 – 85	70 – 80

Korištenjem 0,4 g smole umjesto 0,2 g znatno je povećano iskorištenje odjeljivanja Sr^{2+} te u manjoj mjeri Ba^{2+} , odnosno Ra^{2+} . Iskorištenja kolone s 0,4 g smole podudaraju se s iskorištenjima eksperimenata odjeljivanja iz modelnih otopina korištenjem prijašnje metode s 0,8 g smole.⁸⁵ Za naredna mjerenja korišteno je 0,4 g smole.

4.6.3. Odjeljivanja elemenata iz referentnih materijala

Nakon potvrde ispravnosti rada sastavljenog sustava i metode s modelnim otopinama, provedeni su eksperimenti odjeljivanja iz referentnih materijala kako bi se ispitale performanse sustava s uzorcima realne matrice. Iz 1 g uzorka ribe, IAEA PT20-04 materijala korištenog u međulaboratorijskim usporedbama (*engl. Proficiency test*) uspješno su odijeljeni olovo i radij (uzorak nije sadržavao ^{90}Sr). Iskorištenje odjeljivanja olova iznosilo je 83,08 %, a određena specifična aktivnost ^{210}Pb iz te frakcije iznosila je 90,03 Bq kg⁻¹ što je odstupanje od -6,03 % od pridjeljene vrijednosti 95,80 Bq kg⁻¹. Iskorištenje odjeljivanja radija iznosilo je 80,29 %, a određena specifična aktivnost ^{226}Ra iz te frakcije iznosila je 13,21 Bq kg⁻¹, što je odstupanje od -2,15 % od pridjeljene vrijednosti 13,50 Bq kg⁻¹. Performanse sustava i metode za odjeljivanje stroncija ispitane su s 1 g uzorka vegetacije međulaboratorijske usporedbe Waters ERA MRAD29-V. Iskorištenje odjeljivanja iznosilo je samo 27,80 %, zbog čega je količina ^{90}Sr u frakciji bila nam samom rubu granica detekcije. Određena je vrijednost od 175,20 Bq kg⁻¹ što je odstupanje od -20,15 % od pridjeljene vrijednosti koja iznosi 219,41 Bq kg⁻¹.

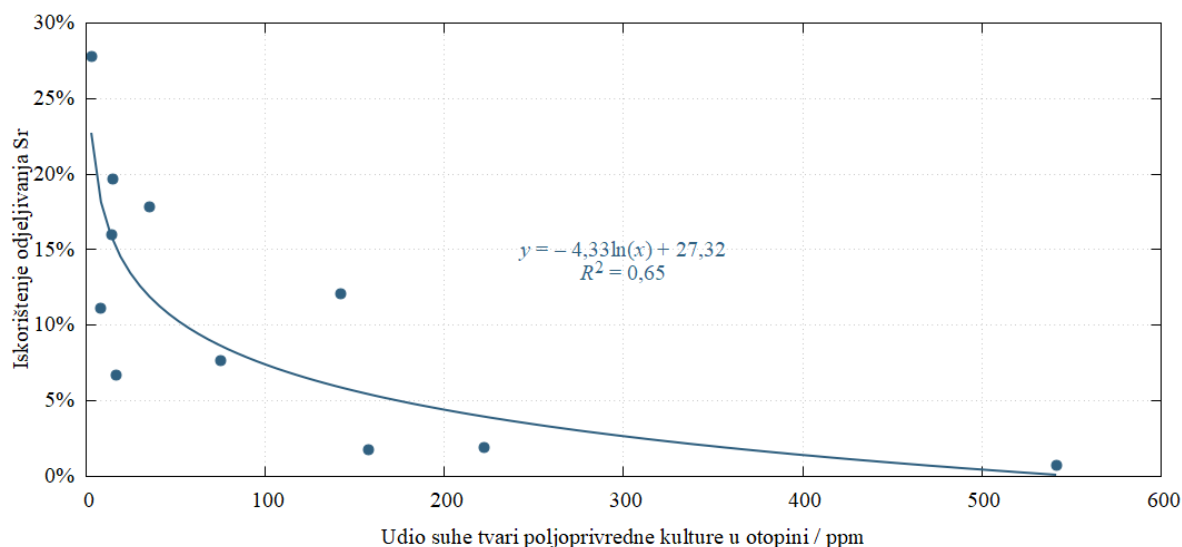
4.6.4. Odjeljivanja elemenata iz poljoprivrednih kultura

Prema rezultatima odjeljivanja iz referentnih materijala razvijena metoda je zadovoljavajuća za određivanje ^{210}Pb i ^{226}Ra iz uzoraka poljoprivrednih kultura, dok je iskorištenje odjeljivanja ^{90}Sr nisko. Međutim, u slučaju referentnih materijala radi se o dodanim aktivnostima u različite matrice koje su i po nekoliko redova veličine više nego specifične aktivnosti očekivane u okolišu. Prema tome, za analize realnih uzoraka potrebno je koristiti više polaznog biljnog materijala kako bi se odvojila dovoljna količina radionuklida za detekciju. Nakon razaranja, u otopinama realnih uzoraka pripremljenim za odjeljivanja udio suhe tvari biljke značajno je viši nego u slučaju referentnih materijala. Stoga je učinak matrice izraženiji te je ispitano odjeljivanje iz otopina poljoprivrednih kultura pripremljenih korištenjem različitih količina polazne suhe tvari biljke, to jest različitih koncentracija suhe tvari biljke. Iskorištenja tih odjeljivanja Pb, Sr te Ba i Ra prikazana su u tablici 19. Za odjeljivanja je korištena razvijena metoda implementirana na automatizirani sustav za sekvencijalno odjeljivanje.

Tablica 19. Iskorištenja odjeljivanja Sr, Pb te Ba i Ra iz otopina poljoprivrednih kultura različitih udjela suhe tvari.

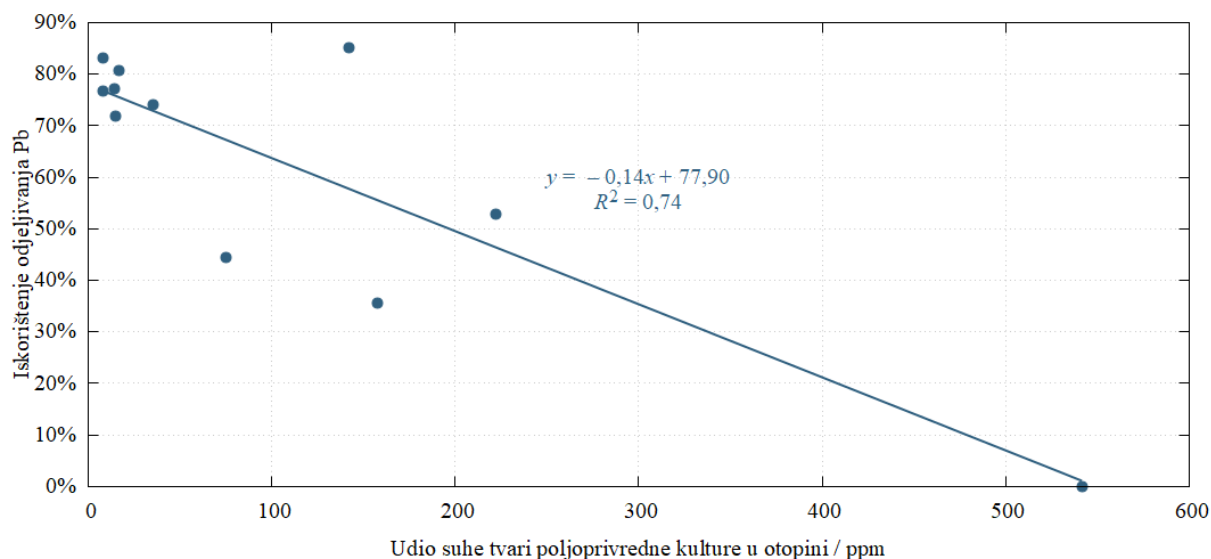
Uzorak	Vrsta matrice	Udio suhe tvari / ppm	Iskorištenje odjeljivanja / %		
			Sr ²⁺	Pb ²⁺	Ba ²⁺ i Ra ²⁺
MRAD29	vegetacija	2,89	27,80	-	-
PT20-04	riba	8,18	-	83,08	80,29
RF-BLI-RAZ-VS	blitva	8,41	11,15	76,76	65,83
RF-KAB-RAZ-SOL	tikva	14,47	16,02	77,16	52,83
RF-KAD-RAZ-PELJ	kadulja	14,95	19,65	71,79	67,33
RF-BLI-RAZ2-VS	blitva	16,83	6,73	80,80	62,87
RF-KAD-RAZ2-PELJ	kadulja	35,18	17,84	74,03	75,48
RF-BLI-VS	blitva	75,20	7,67	44,31	80,81
RF-KAD-PELJ	kadulja	142,01	12,07	85,24	74,74
RF-KAB-SOL	tikva	157,86	1,74	35,49	36,88
RF-KRM-POR	krumpir	221,88	1,90	52,87	38,15
RF-MRK-VS	mrkva	541,49	0,69	0,00	6,11

Uočen je pad iskorištenja odjeljivanja s porastom udjela suhe tvari poljoprivredne kulture u otopini, što je grafički prikazano za Sr, Pb te Ba i Ra na slikama 34, 35 te 36.



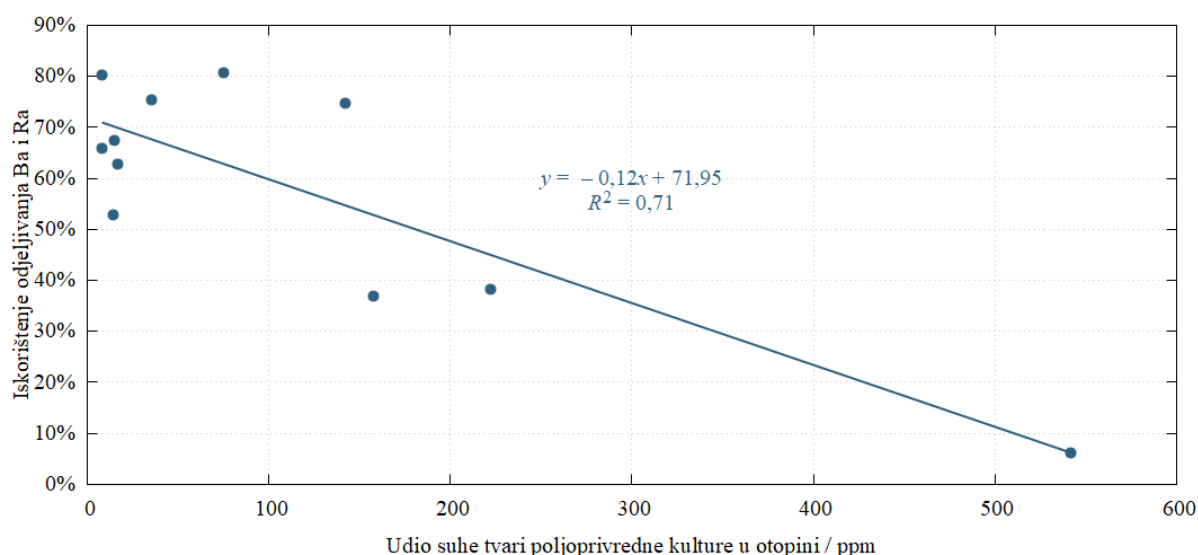
Slika 34. Pad iskorištenja odjeljivanja Sr s porastom udjela suhe poljoprivredne kulture u otopini. Za odjeljivanja je korišten sastavljeni automatizirani sustav s implementiranom razvijenom metodom.

Iskorištenje odjeljivanja Sr eksponencijalno pada s udjelom suhe tvari. Iskorištenja su nezadovoljavajuće niska i pri izrazito velikim razrjeđenjima otopina. Uočena je značajna varijabilnost iskorištenja.



Slika 35. Pad iskorištenja odijeljivanja Pb s porastom udjela suhe poljoprivredne kulture u otopini.

Iskorištenje odjeljivanja Pb linearno pada s udjelom suhe tvari. Vidljivo je grubo rasipanje eksperimentalnih podataka oko regresijskog pravca. Razlog tome je velika varijabilnost samih matrica budući da su korištene različite kulture. Međutim, iz prikazane korelacije proizlazi da je udio suhe tvari kulture u otopini jedan od glavnih čimbenika koji određuju iskorištenje odjeljivanja.



Slika 36. Pad iskorištenja odjeljivanja Ba i Ra s porastom udjela suhe poljoprivredne kulture u otopini.

Iskorištenje odjeljivanja Ba i Ra također kao iskorištenje odjeljivanja Pb linearno pada s udjelom suhe tvari te je vidljiva varijabilnost eksperimentalnih podataka kao u slučaju Pb. Različiti uzorci odstupaju drugačije u oba slučaja, što se može objasniti različitim utjecajem čimbenika matrice na iskorištenja odjeljivanja. Međutim, sličan regresijski pravac u oba slučaja potvrđuje da je udio suhe tvari kulture jedan od glavnih čimbenika koji utječu na iskorištenja odjeljivanja. Elementne frakcije uzoraka poljoprivrednih kultura, koje su prema prethodnim analizama sadržavale najviše aktivnosti ^{210}Pb , ^{90}Sr te ^{226}Ra za određeni uzorak, podvrgnute su radiometrijskim analizama.

Tekućinskim scintilacijskim brojenjem frakcija nakon automatiziranog sekvencijalnog odjeljivanja određena je specifična aktivnost ^{210}Pb u dva uzorka. Gama-spektrometrijskim mjerenjem sirovih, samo sušenih uzoraka određena specifična aktivnost od $(29,40 \pm 4,87) \text{ Bq kg}^{-1}$ za uzorak 1 i $(27,09 \pm 3,83) \text{ Bq kg}^{-1}$ za uzorak 2. U slučaju odjeljivanja i brojenja na LSC, vrijednost za uzorak 1, spaljen na 600°C , iznosi $23,22 \text{ Bq kg}^{-1}$, što je

odstupanja od vrijednosti određene gama spektrometrijom sirovog uzorka od -21,02 %. Međutim, vrijednost gama spektrometrije za spaljeni uzorak iznosi $(20,06 \pm 2,74) \text{ Bq kg}^{-1}$. Opaženo odstupanje rezultat je gubitka aktivnosti ^{210}Pb uslijed sublimacije olova prilikom paljenja uzorka što je potvrđeno rezultatom drugog uzorka. Drugi uzorak je spaljen na 450°C te njegova vrijednost $22,76 \text{ Bq kg}^{-1}$ odstupa manje (-5,99 %) od gama-spektrometrijske vrijednosti $(27,09 \pm 3,83) \text{ Bq kg}^{-1}$. Međutim, neki uzorci spaljeni pri 450°C bili su obojeni nakon otapanja pepela što je rezultiralo obojenim frakcijama te nemogućnošću određivanja ^{210}Pb zbog gašenja scintilacija bojom. Potrebno je dodatno ispitati sublimaciju olova prilikom spaljivanja poljoprivrednih kultura pri raznim temperaturama te po potrebi napraviti krivulje efikanosti za različite stupnjeve gašenja.

Zbog izrazito niskih iskorištenja, niti jedna Sr frakcija poljoprivrednih kultura nije sadržavala dovoljno ^{90}Sr iz kojeg bi priraslo dovoljno ^{90}Y , za određivanje aktivnosti ^{90}Sr tehnikom Čerenkovljevog brojenja.

Iz Ba i Ra frakcije poljoprivrednih kultura tehnikom mikrokoprecipitacije pripremljeni su izvori za alfa-spektrometrijska mjerenja aktivnosti. Rezultati mjerenja specifične aktivnosti ^{226}Ra u poljoprivrednim kulturama uspoređeni su s rezultatima gama-spektrometrijskih mjerenja te prikazani u tablici 20.

Tablica 20. Rezultati alfa-spektrometrijskih mjerenja specifične aktivnosti ^{226}Ra u poljoprivrednim kulturama odijeljenog pomoću sastavljenog automatiziranog sustava i usporedba s gama-spektrometrijskim vrijednostima.

Vrsta uzorka	Iskorištenje odjeljivanja Ba / %	$a(^{226}\text{Ra}) / \text{Bq kg}^{-1}$	Gama-spektrometrijska vrijednost / Bq kg^{-1}	Odstupanje / %
Blitva	80,81	0,38	1,15	-67,19
Kadulja	74,74	3,67	7,09	-48,25
Mrkva	6,11	0,25	1,60	-84,66
Krumpir	38,15	0,01	0,50	-97,77
Tikva	36,88	0,03	0,79	-96,32

Rezultati alfa spektrometrije specifične aktivnosti ^{226}Ra u poljoprivrednim kulturama, nakon odjeljivanja pomoću sastavljenog automatiziranog sustava, niži su za red veličine od rezultata gama spektrometrije. Razlog tome najvjerojatnije je nepouzdanost gama-spektrometrijskog sustava za određivanje niskih aktivnosti ^{226}Ra . Naime, i nakon snižavanja

granica detekcije pomoću sustava za redukciju kozmičke pozadine antikoincidenzijskom spregom detektora, one su i dalje previsoke za pouzdano određivanje niskih aktivnosti ^{226}Ra gama-spektrometrijski preko potomaka ^{214}Pb i ^{214}Bi . Njihove aktivnosti u pozadini variraju značajno te se zbog varijabilnosti pozadinskih impulsa u spektru uzorka niske aktivnosti mjerene aktivnosti mogu značajno precijeniti.

§ 5. ZAKLJUČCI

- ❖ **Nadograđen je gama-spektrometrijski sustav** aktivnim štitom za redukciju komponente kozmičkog zračenja u pozadinskom spektru. Načinjen je od plastičnih scintilatora, 3 poliviniltoluen ploče s fotomultiplikatorima. Uvođenjem aktivnog štita, u energijskom području spektra od 40 keV do 2700 keV, postignut je faktor redukcije od 2,4 što odgovara uklanjanju 58 % događaja iz navedenog raspona spektra te smanjenju detektiranih događaja u sekundi s 0,58 na 0,27. Pri višim energijama uklonjeno je i do 80 % događaja iz spektra pozadinskog zračenja. Nadograđen sustav prilagođen je za izvođenje rutinskih mjerenja. Granice detekcije radionuklida u poljoprivrednim kulturama snižene su u rasponu od 10 % za niskoenergijske prirodne gama emitere poput ^{210}Pb do 60 % za visokoenergijske antropogene emitere, poput ^{137}Cs , čiji signal nije prisutan u okolnom zračenju.
- ❖ **Konstruiran je modularni sustav za automatizirano odjeljivanje (radio)nuklida.** Sustav je temeljen na ekstrakciji na čvrstoj fazi. Sastavljen je od modula za ispuštanje, koji sadrže peristaltičke pumpe i elektronički kontrolirane ventile, skupljača frakcija s kolone te kontrolne jedinice. Za potrebe odjeljivanja moguće je spojiti više modula različitih konfiguracija pumpi i ventila u sustav. Skupljač frakcija sakuplja frakcije u zasebne bočice. Prilagodljiv je raznim bočicama jednostavnom zamjenom ploče držača, koja se proizvodi po potrebi procesom aditivne proizvodnje. Kontrolna jedinica, bazirana na Raspberry Pi računalu s Linux operacijski sustavom, usklađuje rad pumpi, ventila i skupljača frakcija. Kontrolnom jedinicom upravlja se programskim jezikom Python na dva načina: 1. zadavajući naredbe u realnom vremenu koristeći grafičko sučelje putem web preglednika ili 2. učitavajući pripremljene skripte za odjeljivanja. Sustav omogućava analizu većeg broja uzoraka uz manje utrošenog vremena za izvođenje eksperimenata odjeljivanja. Modularnost sustava omogućuje izvođenje kompleksnih eksperimenata odjeljivanja, korištenjem dviju kolona punjenih različitim ekstrakcijskim materijalima, čime se može odjeliti više radionuklida iz uzorka.

- ❖ **Razvijena je metoda za automatizirano sekvencijalno odjeljivanje (^{90}Sr), ^{210}Pb te ^{226}Ra iz uzoraka vegetacije.** Izmjenom sastava i pH otopine korištene za eluiranje Ba u već postojećoj metodi, postignute su karakteristike frakcije povoljne za pripremu radijevih izvora za alfa spektrometriju. Razvijena metoda je zadovoljavajuća za odjeljivanje mjerljivih količina ^{210}Pb i ^{226}Ra iz hrane niske aktivnosti. Iskorištenja odjeljivanja Pb i Ra iznose od 50 % do 85 %, ovisno o udjelu suhe tvari biljke u otopini. Zbog kompleksne matrice, iskorištenja odjeljivanja Sr iz uzoraka niskih aktivnosti nisu zadovoljavajuća, iznose svega nekoliko posto. No, u slučaju povišenih aktivnosti ^{90}Sr (red veličine oko 100 Bq kg^{-1} , poput onih u interkomparacijskim testovima) primjerice uslijed incidentnih situacija, kada je otopina vegetacije dovoljno razrjeđena, metodom je moguće odjeliti dovoljno ^{90}Sr za detekciju.
- ❖ **Određene su specifične aktivnosti antropogenih (^{90}Sr i ^{137}Cs) i prirodnih (^{40}K , ^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th , ^{230}Th i ^{232}Th) radionuklida u komercijalno dostupnoj dječjoj hrani te poljoprivrednim kulturama Hrvatske.** Gama spektrometrija je korištena za određivanje specifičnih aktivnosti ^{40}K , ^{137}Cs , ^{210}Pb , ^{226}Ra te ^{232}Th , dok je alfa spektrometrija korištena za određivanje specifične aktivnosti ^{210}Po , ^{228}Th , ^{230}Th i ^{232}Th . Tekućinsko scintilacijsko brojenje korišteno je za određivanje specifične aktivnosti ^{90}Sr . Oba podskupa podataka korištena su za **izračun godišnjih ingestijskih doza ionizirajućeg zračenja** za dojenčad hranjenu komercijalnom hranom te za jednogodišnjake, desetogodišnjake i odrasle kod prehrane poljoprivrednim kulturama. Navedene doze redom iznose: $630 \mu\text{Sv a}^{-1}$, $533 \mu\text{Sv a}^{-1}$, $666 \mu\text{Sv a}^{-1}$ i $348 \mu\text{Sv a}^{-1}$ te su manje od preporučene maksimalne godišnje ingestijske doze, koja iznosi 1 mSv a^{-1} . Za sve dobne skupine radionuklidi ^{40}K , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb i ^{210}Po najznačajnije doprinose dozi (ne nužno tim redom). Vrste poljoprivrednih kultura koje najznačajnije doprinose dozi (za sve skupine, ne nužno navedenim redom) su žitarice, lisnato povrće, voće te plodovito povrće.
- ❖ **Određene su specifične aktivnosti antropogenih (^{90}Sr i ^{137}Cs) i prirodnih (^{40}K , ^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra i ^{232}Th) radionuklida u tlima obiteljskih poljoprivrednih gospodarstva Hrvatske.** Specifične aktivnosti prirodnih radionuklida usporedive su sa globalnim prosjekom u litosferi. Medijan specifičnih aktivnosti ^{40}K , ^{226}Ra te ^{232}Th u **ovom radu** iznosi: (510, 49 i 52) Bq kg^{-1} dok globalni **prosjeck u litosferi** iznosi (650, 37 te 33) Bq kg^{-1} . Aktivnosti su u skladu s ranije objavljenim podacima

specifičnih aktivnosti u neobrađenim tlima Hrvatske te s analizama provedenim u susjednim državama. Opažene su **značajno više** razine aktivnosti **prirodnih** i **antropogenih** radionuklida u uzorcima tla s poluotoka **Pelješca**. U nekim od njih je detektiran ^{241}Am te je opaženo da članovi **raspadnog niza** ^{238}U **nisu u sekularnoj ravnoteži**. Analizirana je raspodjela radionuklida u poljoprivrednim tlima Hrvatske multivarijatnim metodama PCA i PARAFAC. Model **PCA** distribucije tla ima **3 glavne komponente** dok **PARAFAC** modelira skup podataka s **dva faktora** i bolje je prilagođen podacima te daje fizički smislenu interpretaciju. Faktor **F1** poopćuje varijabilnost zbog **lokacije** (odnosno indirektno zbog kemijskog sastava tla) a faktor **F2** sadrži doprinose **atmosferske depozicije**. Dobiveni rezultati upućuju na korisnost modela PARAFAC u proučavanju radiološki kontaminiranih tla. Ove analize **izrazito su rijetke** u literaturi, što čini **doprinos ovog rada posebno značajnim** za proučavanje takvih sustava modelom PARAFAC. Modeliranjem skupa podataka tla kontaminiranih iz više izvora, moguće je **raščlaniti** ukupnu **kontaminaciju** na doprinose **pojedinih izvora**, uz uvjet karakterističnih profila kontaminacije pojedinog izvora.

- ❖ Izračunati su faktori prijenosa radionuklida iz tla u biljku te **variraju** čak i **unutar grupe** kultura. Grupa **lisnato povrće** ima značajno **više faktore prijenosa** nego ostale grupe, posebice u slučajevima ^{210}Pb i ^{210}Po , što je u skladu literaturnim podacima. Opaženi rasponi faktora prijenosa slažu se s onima koje reportira IAEA, uz izuzetak **Po**. Vrijednosti **faktora prijenosa Po** određene u ovom radu **su više** od onih koje reportira **IAEA**. Međutim, rezultat kojeg reportira IAEA izračunat je kao prosjek **samo dva** globalno reportirana podatka, što čini doprinos ovdje izračunatih **faktora prijenosa Po** iz tla u biljke značajnim doprinosom.

§ 6. POPIS OZNAKÂ, KRATICÂ I SIMBOLÂ

Kratica	Značenje (engl.)	Značenje (hrv.)
% red.	<i>reduction percentage</i>	postotak redukcije
akt. (štit)	<i>active (shielding)</i>	aktivni (štit)
ALS (algoritam)	<i>alternating least squares (algorithm)</i>	(algoritam) izmjeničnih najmanjih kvadrata
BEGe (detektor)	<i>broad energy germanium (detector)</i>	germanijev (detektor) širokog energijskog odziva
CEC	<i>cation exchange capacity</i>	kapacitet izmjene kationa
CORCONDIA	<i>core consistency diagnostic</i>	dijagnostika postojanosti jezgre
cps	<i>counts per second</i>	impulsi u sekundi
DDEP	<i>Decay Data Evaluation Project</i>	Projekt za vrednovanje podataka o radioaktivnom raspadu
EDTA	<i>ethylenediaminetetraacetic acid</i>	etilendiamintetraoctena kiselina
FES	<i>frayed edge sites</i>	oštećena rubna mjesta
<i>Fn</i>	<i>factor n</i>	faktor <i>n</i>
FNNLS (algoritam)	<i>fast non-negative least squares (algorithm)</i>	brzi (algoritam) ne-negativnih najmanjih kvadrata
GPS	<i>Global Positioning System</i>	globalni položajni sustav
G.D.	<i>detection limit</i>	granica detekcije
HPGe (detektor)	<i>high purity germanium (detector)</i>	germanijev (detektor) visoke čistoće
HRZZ	<i>Croatian Science Foundation</i>	Hrvatska zaklada za znanost
IAEA	<i>International Atomic Energy Agency</i>	Međunarodna agencija za atomsku energiju
ICRP	<i>International Commission on Radiological Protection</i>	Međunarodna komisija za radiološku zaštitu
LRE	<i>Laboratory for Radioecology, Ruđer Bošković Institute</i>	Laboratoriju za radioekologiju, Institut Ruđer Bošković

Kratica	Značenje (engl.)	Značenje (hrv.)
LSC	<i>liquid scintillation counting</i>	Tekućinsko scintilacijsko brojenje
N.D.	<i>not detected</i>	nije detektirano
N.M.	<i>not measured</i>	nije mjereno
NNLS (algoritam)	<i>non-negative least squares (algorithm)</i>	(algoritam) pozitivnih najmanjih kvadrata
OPG	<i>Family-operated farm</i>	obiteljsko poljoprivredno gospodarstvo
PARAFAC	<i>parallel factor analysis</i>	analiza paralelnih faktora
PCA	<i>principal component analysis</i>	analiza glavnih komponenata
PCn	<i>nth principal component</i>	glavna komponenta n
PMT	<i>photomultiplier tube</i>	fotomultiplikacijska cijevi
Poč.	<i>original system</i>	početni sustav
PVT	<i>polyvinyltoluene</i>	poliviniltoluen
RiChFALL	<i>Radionuclides in children food and novel methods for low level activity determination</i>	Radionuklidi u dječjoj hrani i razvoj metoda za određivanje njihovih niskih aktivnosti
SIS	<i>spectral index sample</i>	spektralni indeks uzorka
SPE	<i>solid phase extraction</i>	ekstrakcija na čvrstoj fazi
SVD	<i>singular value decomposition</i>	Dekompozicija u matricu singularnih vrijednosti
TF	<i>transfer factor</i>	faktor prijenosa
tSIE	<i>transformed spectral index external standard</i>	transformirani spektralni indeks vanjskog standarda
UNSCEAR	<i>United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation</i>	Znanstveni odbor Ujedinjenih naroda za učinke atomskog zračenja

§ 7. LITERATURNI IZVORI

- (1) L'Annunziata, M. F. The Atomic Nucleus, Nuclear Radiation, and the Interaction of Radiation with Matter. In *Handbook of Radioactivity Analysis*; L'Annunziata, M. F., Ed.; Academic Press, 2020; pp 1–243. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-814397-1.00001-7>.
- (2) Povinec, P.; Hirose, K.; Aoyama, M. Introduction. In *Fukushima accident: radioactivity impact on the environment*; Elsevier: Amsterdam; Boston, 2013; pp 1–29.
- (3) Vandenhove, H.; Olyslaegers, G.; Sanzharova, N.; Shubina, O.; Reed, E.; Shang, Z.; Velasco, H. Proposal for New Best Estimates of the Soil-to-Plant Transfer Factor of U, Th, Ra, Pb and Po. *J. Environ. Radioact.* **2009**, *100* (9), 721–732. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2008.10.014>.
- (4) Steinhauser, G.; Brandl, A.; Johnson, T. E. Comparison of the Chernobyl and Fukushima Nuclear Accidents: A Review of the Environmental Impacts. *Sci. Total Environ.* **2014**, *470–471*, 800–817. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2013.10.029>.
- (5) Merz, S.; Shozugawa, K.; Steinhauser, G. Analysis of Japanese Radionuclide Monitoring Data of Food Before and After the Fukushima Nuclear Accident. *Environ. Sci. Technol.* **2015**, *49* (5), 2875–2885. <https://doi.org/10.1021/es5057648>.
- (6) Brandhoff, P. N.; van Bourgondiën, M. J.; Onstenk, C. G. M.; Vos van Avezathe, A.; Peters, R. J. B. Operation and Performance of a National Monitoring Network for Radioactivity in Food. *Food Control* **2016**, *64*, 87–97. <https://doi.org/10.1016/j.foodcont.2015.12.008>.
- (7) Bikit, I.; Slivka, J.; Čonkić, Lj.; Krmar, M.; Vesković, M.; Žikić-Todorović, N.; Varga, E.; Ćurčić, S.; Mrdja, D. Radioactivity of the Soil in Vojvodina (Northern Province of Serbia and Montenegro). *J. Environ. Radioact.* **2005**, *78* (1), 11–19. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2004.03.034>.

-
- (8) Jia, G.; Testa, C.; Desideri, D.; Guerra, F.; Meli, M. A.; Roselli, C.; Belli, M. E. Soil Concentration, Vertical Distribution and Inventory of Plutonium, ^{241}Am , ^{90}Sr and ^{137}Cs in the Marche Region of Central Italy. *Health Phys.* **1999**, 77 (1), 52.
- (9) Tucaković, I.; Barišić, D.; Grahek, Ž.; Kasap, A.; Širić, I. ^{137}Cs in Mushrooms from Croatia Sampled 15–30 Years after Chernobyl. *J. Environ. Radioact.* **2018**, 181, 147–151. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.11.004>.
- (10) Franić, Z.; Branica, G. Long-Term Investigations of ^{134}Cs and ^{137}Cs Activity Concentrations in Honey from Croatia. *Bull. Environ. Contam. Toxicol.* **2019**, 102 (4), 462–467. <https://doi.org/10.1007/s00128-019-02571-8>.
- (11) Franić, Z.; Petrincec, Branko; Marović, Gordana; and Franić, Z. Radiocaesium Activity Concentrations in Potatoes in Croatia after the Chernobyl Accident and Dose Assessment. *J. Environ. Sci. Health Part B* **2007**, 42 (2), 211–217. <https://doi.org/10.1080/03601230601125362>.
- (12) Franić, Z.; Marović, G.; Lokobauer, N. Radiocaesium Activity Concentrations in Wheat Grains in the Republic of Croatia for 1965–2003 and Dose Assessment. *Environ. Monit. Assess.* **2006**, 115 (1), 51–67. <https://doi.org/10.1007/s10661-006-5251-7>.
- (13) Šoštarić, M.; Petrincec, B.; Avdić, M.; Petroci, L.; Kovačić, M.; Zgorelec, Ž.; Skoko, B.; Bituh, T.; Senčar, J.; Branica, G.; Franić, Z.; Franulović, I.; Rašeta, D.; Bešlić, I.; Babić, D. Radioactivity of Soil in Croatia I: Naturally Occurring Decay Chains. *Arch. Ind. Hyg. Toxicol.* **2021**, 72 (1), 6–14. <https://doi.org/10.2478/aiht-2021-72-3439>.
- (14) Šoštarić, M.; Petrincec, B.; Avdić, M.; Petroci, L.; Kovačić, M.; Zgorelec, Ž.; Skoko, B.; Bituh, T.; Senčar, J.; Branica, G.; Franić, Z.; Franulović, I.; Rašeta, D.; Bešlić, I.; Babić, D. Radioactivity of Soil in Croatia II: ^{137}Cs , ^{40}K , and Absorbed Dose Rate. *Arch. Ind. Hyg. Toxicol.* **2021**, 72 (1), 15–22. <https://doi.org/10.2478/aiht-2021-72-3440>.
- (15) European Commission Directorate-general For Energy, Directorate D - Nuclear Energy, Safety and ITER D.3 - Radiation Protection and Nuclear Safety. Routine and Emergency Radioactivity Monitoring Arrangements, Monitoring of Radioactivity in

- Drinking Water and Foodstuffs. https://civilnazastita.gov.hr/UserDocsImages/dokumenti/Radioloska%20i%20nuklearna%20sigurnost/Nacionalna%20izvjesca/Article%2035%20Technical%20report_engl_%20no%2019-05HR.pdf (pristupljeno 18.11.2025.).
- (16) Renaud, P.; Roussel-Debet, S.; Pourcelot, L.; Thébault, H.; Loyen, J.; Gurriaran, R. ^{210}Pb and ^{210}Po Activities in French Foodstuffs. *Radioprotection* **2015**, *50* (2), 123–128. <https://doi.org/10.1051/radiopro/2014039>.
- (17) Renaud, P.; Roussel-Debet, S.; Pourcelot, L.; Gurriaran, R. ^{226}Ra and ^{228}Ra Activities in French Foodstuffs. *Radioprotection* **2015**, *50* (2), 111–115. <https://doi.org/10.1051/radiopro/2014035>.
- (18) Renaud, P.; Parache, V.; Roussel-Debet, S. Internal Doses of French Adult Population Linked to the Intake of Radionuclides from the Decay-Chains of Uranium and Thorium by Foodstuffs Ingestion. *Radioprotection* **2015**, *50* (2), 117–121. <https://doi.org/10.1051/radiopro/2014034>.
- (19) Desideri, D.; Meli, M. A.; Roselli, C.; Forini, N.; Rongoni, A.; Feduzi, L. Natural Radionuclides in Italian Diet and Their Annual Intake. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **2014**, *299* (3), 1461–1467. <https://doi.org/10.1007/s10967-013-2860-9>.
- (20) Bolca, M.; Saç, M. M.; Çokuysal, B.; Karalı, T.; Ekdal, E. Radioactivity in Soils and Various Foodstuffs from the Gediz River Basin of Turkey. *Radiat. Meas.* **2007**, *42* (2), 263–270. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2006.12.001>.
- (21) Ilievski, T.; Skoko, B.; Karanović, G.; Grahek, Ž.; Magdić Košiček, K.; Coha, I.; Pavičić-Hamer, D.; Tucaković, I. Radioactivity in Food Crops from the Family Farms in Croatia with Ingestion Dose Assessment. *Food Control* **2025**, *167*, 110805. <https://doi.org/10.1016/j.foodcont.2024.110805>.
- (22) Skoko, B.; Magdić Košiček, K.; Ilievski, T.; Karanović, G.; Grahek, Ž.; Coha, I.; Pavičić-Hamer, D.; Tucaković, I. Radionuclides Determination by Alpha (^{210}Po , $^{228,230,232}\text{Th}$) and Gamma ($^{226,228}\text{Ra}$, ^{137}Cs , ^{40}K) Spectrometry in Children's Food in

- Croatia with Assessment of Cumulative Ingestion Dose for Infants. *J. Food Compos. Anal.* **2024**, *136*, 106828. <https://doi.org/10.1016/j.jfca.2024.106828>.
- (23) ICRP. Compendium of Dose Coefficients Based on ICRP Publication 60. ICRP Publication 119. Ann. ICRP 41(Suppl.), 2012.
- (24) Committee on Environmental Health. Risk of Ionizing Radiation Exposure to Children: A Subject Review. *Pediatrics* **1998**, *101* (4), 717–719. <https://doi.org/10.1542/peds.101.4.717>.
- (25) Uwatse, O. B.; Olatunji, M. A.; Khandaker, M. U.; Amin, Y. M.; Bradley, D. A.; Alkhorayef, M.; Alzimami, K. Measurement of Natural and Artificial Radioactivity in Infant Powdered Milk and Estimation of the Corresponding Annual Effective Dose. *Environ. Eng. Sci.* **2015**, *32* (10), 838–846. <https://doi.org/10.1089/ees.2015.0114>.
- (26) Geiger, H.; Nuttall, J. M. LVII. The Ranges of the α Particles from Various Radioactive Substances and a Relation between Range and Period of Transformation. *Lond. Edinb. Dublin Philos. Mag. J. Sci.* **1911**, *22* (130), 613–621. <https://doi.org/10.1080/14786441008637156>.
- (27) Spinks, J. W. T.; Woods, R. J. Radiation Sources, the Interaction of Radiation with Matter. In *An introduction to radiation chemistry*; Wiley: New York, 1990; pp 14–70.
- (28) Gilmore, G.; Joss, D. Radioactive Decay and the Origin of Gamma and X-Radiation. In *Practical gamma-ray spectroscopy*; Wiley: Hoboken, NJ, 2024; pp 1–32.
- (29) Decay Data Evaluation Project. *Atomic and Nuclear data*. <http://www.lnhb.fr/home/nuclear-data/> (pristupljeno 26.6.2025.).
- (30) Loveland, W. D.; Morrissey, D. J.; Seaborg, G. T. Radioactive Decay Kinetics. In *Modern nuclear chemistry*; Wiley: Hoboken, NJ, USA, 2017; pp 57–92.
- (31) Choppin, G.; Liljenzin, J.-O.; Rydberg, J.; Ekberg, C. Production of Radionuclides. In *Radiochemistry and Nuclear Chemistry*; Choppin, G., Liljenzin, J.-O., Rydberg, J., Ekberg, C., Eds.; Academic Press: Oxford, 2013; pp 513–544. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-405897-2.00017-3>.

-
- (32) Bateman, H. Solution of a System of Differential Equations Occurring in the Theory of Radioactive Transformations. *Proc. Camb. Philos. Soc. Math. Phys. Sci.* **1910**, 15, 423–427.
- (33) Knoll, G. F. Radiation Spectroscopy with Scintillators. In *Radiation detection and measurement*; Wiley: Hoboken, NJ, 2010; pp 321–346.
- (34) Gilmore, G.; Joss, D. Interactions of Gamma Radiation with Matter. In *Practical gamma-ray spectroscopy*; Wiley: Hoboken, NJ, 2024; pp 33–51.
- (35) Smilde, A. K.; Geladi, P.; Bro, R. Three-Way Component and Regression Models. In *Multi-way analysis with applications in the chemical sciences*; J. Wiley: Chichester, West Sussex, England Hoboken, NJ, 2004; pp 57–86.
<https://doi.org/10.1002/0470012110>.
- (36) Principal Components and Factor Analysis. In *Chemometrics: a textbook*; Massart, D. L., Ed.; Data handling in science and technology; Elsevier: Amsterdam, 1988; pp 339–370.
- (37) Richard A. Harshman. Foundations of the PARAFAC Procedure: Model and Conditions for an ‘Explanatory’ Multi-Mode Factor Analysis. *UCLA Work. Pap. Phon.* **1970**, 1.
- (38) J.D. Carroll; I. Chang. Analysis of Individual Differences in Multidimensional Scaling via an N-Way Generalization of and Eckart-Young Decomposition. *Psychometrika* **1970**, 35 (283).
- (39) Bro, R. PARAFAC. Tutorial and Applications. *Chemom. Intell. Lab. Syst.* **1997**, 38 (2), 149–171. [https://doi.org/10.1016/S0169-7439\(97\)00032-4](https://doi.org/10.1016/S0169-7439(97)00032-4).
- (40) Martí, R. B.; Baldrich, J. F. Fundamentals of PARAFAC. In *Data Handling in Science and Technology*; de la Peña, A. M., Goicoechea, H. C., Escandar, G. M., Olivieri, A. C., Eds.; Fundamentals and Analytical Applications of Multiway Calibration; Elsevier, 2015; Vol. 29, pp 7–35. <https://doi.org/10.1016/B978-0-444-63527-3.00001-1>.

-
- (41) Ortiz, M. C.; Sarabia, L. A.; Sánchez, M. S.; Herrero, A.; Sanllorente, S.; Reguera, C. Usefulness of PARAFAC for the Quantification, Identification, and Description of Analytical Data. In *Data Handling in Science and Technology*; de la Peña, A. M., Goicoechea, H. C., Escandar, G. M., Olivieri, A. C., Eds.; Fundamentals and Analytical Applications of Multiway Calibration; Elsevier, 2015; Vol. 29, pp 37–81. <https://doi.org/10.1016/B978-0-444-63527-3.00002-3>.
- (42) Ješkovský, M.; Kaizer, J.; Kontul, I.; Lujanienė, G.; Müllerová, M.; Povinec, P. P. Analysis of Environmental Radionuclides. In *Handbook of Radioactivity Analysis: Volume 2*; L'Annunziata, M. F., Ed.; Academic Press, 2019; pp 137–261. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-814395-7.00003-9>.
- (43) Shahbazi-Gahrouei, D.; Gholami, M.; Setayandeh, S. A Review on Natural Background Radiation. *Adv. Biomed. Res.* **2013**, 2, 65. <https://doi.org/10.4103/2277-9175.115821>.
- (44) Anagnostakis, M. J. Environmental Radioactivity Measurements and Applications – Difficulties, Current Status and Future Trends. *Radiat. Phys. Chem.* **2015**, 116, 3–7. <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2015.04.021>.
- (45) UNSCEAR. Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR) Report to the General Assembly with Annexes, 2000.
- (46) Nuclear and Particle Physics. In *CRC handbook of chemistry and physics: a ready-reference book of chemical and physical data*; Haynes, W. M., Ed.; CRC Press: Boca Raton London New York, 2017; pp 1–186.
- (47) Frassetto, L. A.; Goas, A.; Gannon, R.; Lanham-New, S. A.; Lambert, H. Potassium. *Adv. Nutr.* **2023**, 14 (5), 1237–1240. <https://doi.org/10.1016/j.advnut.2023.06.004>.
- (48) Lehto, J.; Hou, X. Special Features of the Chemistry of Radionuclides and Their Separation. In *Chemistry and Analysis of Radionuclides*; Wiley, 2011; pp 25–32.

-
- (49) Lubin, J. H.; Boice, J. D.; Edling, C.; Hornung, R. W.; Howe, G. R.; Kunz, E.; Kusiak, R. A.; Morrison, H. I.; Radford, E. P.; Samet, J. M. Lung Cancer in Radon-Exposed Miners and Estimation of Risk from Indoor Exposure. *J. Natl. Cancer Inst.* **1995**, *87* (11), 817–827. <https://doi.org/10.1093/jnci/87.11.817>.
- (50) Bakrač, L.; Ilievski, T.; Marković, N.; Bosnar, D.; Tucaković, I. Implementation and Optimisation of Cosmic Veto System Using Digital Electronics in an Environmental Gamma-Spectrometry Laboratory. *Radiat. Meas.* **2024**, *178*, 107302. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2024.107302>.
- (51) Autran, J. L.; Munteanu, D.; Saad Saoud, T.; Moindjie, S. Characterization of Atmospheric Muons at Sea Level Using a Cosmic Ray Telescope. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. Accel. Spectrometers Detect. Assoc. Equip.* **2018**, *903*, 77–84. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2018.06.038>.
- (52) Currie, L. A. Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination. Application to Radiochemistry. *Anal. Chem.* **1968**, *40* (3), 586–593. <https://doi.org/10.1021/ac60259a007>.
- (53) Andreotti, E.; Hult, M.; Gonzalez de Orduña, R.; Marissens, G.; Mihailescu, M.; Watjen, U.; Van Marcke, P. Status of Underground Radioactivity Measurements in HADES, 2010. <https://publications.jrc.ec.europa.eu/repository/handle/JRC59179> (pristupljeno 2025-11-18).
- (54) Hult, M.; Marissens, G.; Stroh, H.; Lutter, G.; Tzika, F.; Marković, N. Characterisation of an Ultra Low-Background Point Contact HPGe Well-Detector for an Underground Laboratory. *Appl. Radiat. Isot.* **2018**, *134*, 446–449. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2017.08.002>.
- (55) Povinec, P. P.; Comanducci, J.-F.; Levy-Palomo, I. IAEA-MEL's Underground Counting Laboratory in Monaco—Background Characteristics of HPGe Detectors with Anti-Cosmic Shielding. *Appl. Radiat. Isot.* **2004**, *61* (2), 85–93. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2004.03.019>.

-
- (56) Gastrich, H.; Gößling, C.; Klingenberg, R.; Kröninger, K.; Neddermann, T.; Nitsch, C.; Quante, T.; Zuber, K. The Dortmund Low Background Facility — Low-Background Gamma Ray Spectrometry with an Artificial Overburden. *Appl. Radiat. Isot.* **2016**, *112*, 165–176. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2016.03.025>.
- (57) Heusser, G.; Weber, M.; Hakenmüller, J.; Laubenstein, M.; Lindner, M.; Maneschg, W.; Simgen, H.; Stolzenburg, D.; Strecker, H. GIOVE: A New Detector Setup for High Sensitivity Germanium Spectroscopy at Shallow Depth. *Eur. Phys. J. C* **2015**, *75* (11), 531. <https://doi.org/10.1140/epjc/s10052-015-3704-2>.
- (58) Vitaly Fedchenko; Ragnhild Ferm Hellgren. Nuclear Arms Control and Non-Proliferation (Appendix 12B. Nuclear Explosions, 1945–2006). <https://www.sipri.org/sites/default/files/YB07%20552%2012B.pdf> (pristupljeno 18.11.2025.).
- (59) M. De Cort; G. Dubois; Sh. D. Fridman; M. G. Germenchuk; Yu. A. Izrael; A. Janssens; A. Jones; A. R. Kelly; G. N. Kvasnikova; E. V. Matveenkov; I. I. Nazarov; I. M. Pokumeiko; Yu. M. Sitak; V. A. Stukin; E. D. Tabachnyi; L. Ya. Tsaturov; S. I. Avdyushin. Atlas of Caesium Deposition on Europe after the Chernobyl Accident. EUR Report 16733, 1998.
- (60) Právělie, R. Nuclear Weapons Tests and Environmental Consequences: A Global Perspective. *Ambio* **2014**, *43* (6), 729–744. <https://doi.org/10.1007/s13280-014-0491-1>.
- (61) Okumura, M.; Kerisit, S.; Bourg, I. C.; Lammers, L. N.; Ikeda, T.; Sassi, M.; Rosso, K. M.; Machida, M. Radiocesium Interaction with Clay Minerals: Theory and Simulation Advances Post-Fukushima. *J. Environ. Radioact.* **2018**, *189*, 135–145. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.03.011>.
- (62) Fuller, A. J.; Shaw, S.; Peacock, C. L.; Trivedi, D.; Small, J. S.; Abrahamsen, L. G.; Burke, I. T. Ionic Strength and pH Dependent Multi-Site Sorption of Cs onto a Micaceous Aquifer Sediment. *Appl. Geochem.* **2014**, *40*, 32–42. <https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2013.10.017>.

-
- (63) Kirikopoulos, I. L.; Ioannides, K. G.; Karamanis, D. T.; Stamoulis, K. C.; Kondoura, E. M.; Mantzios, A. S. Kinetics of Radiocesium Sorption in Lake Sediments. *Health Phys.* **1994**, *66* (1), 36–42. <https://doi.org/10.1097/00004032-199401000-00005>.
- (64) Berzero, A.; Borroni, P. A.; Meloni, S.; Martinotti, W.; Queirazza, G. Methodological Approach to the Evaluation of Diffusion Coefficients of Radionuclides in Marine Coastal Sediments. *Sci. Total Environ.* **1988**, *70*, 151–177. [https://doi.org/10.1016/0048-9697\(88\)90257-4](https://doi.org/10.1016/0048-9697(88)90257-4).
- (65) Ijuin, M.; Picat, P.; Saas, A.; Grauby, A. Determination of the Diffusion Coefficient of Radioelements in the Rhone Sediments. *Health Phys.* **1973**, *24* (6), 665–672. <https://doi.org/10.1097/00004032-197306000-00008>.
- (66) Comans, R. N. J.; Hockley, D. E. Kinetics of Cesium Sorption on Illite. *Geochim. Cosmochim. Acta* **1992**, *56* (3), 1157–1164. [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(92\)90053-L](https://doi.org/10.1016/0016-7037(92)90053-L).
- (67) A. V. Konoplev; A. Bulgakov; J. Hilton; R. Comans; V. Popov. Long-Term Kinetics of Radiocesium Fixation by Soils. In *Studies in Environmental Science*; Elsevier, 1997; Vol. 68, pp 173–182. [https://doi.org/10.1016/S0166-1116\(09\)70094-9](https://doi.org/10.1016/S0166-1116(09)70094-9).
- (68) Kurikami, H.; Malins, A.; Takeishi, M.; Saito, K.; Iijima, K. Coupling the Advection-Dispersion Equation with Fully Kinetic Reversible/Irreversible Sorption Terms to Model Radiocesium Soil Profiles in Fukushima Prefecture. *J. Environ. Radioact.* **2017**, *171*, 99–109. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.01.026>.
- (69) Bituh, T.; Petrinc, B.; Hasenay, D.; Stipičević, S. Assessment of ¹³⁷Cs and ⁴⁰K Transfer Factors in Croatian Agricultural Systems and Implications for Food Safety. *Environments* **2025**, *12* (8), 269. <https://doi.org/10.3390/environments12080269>.
- (70) IAEA. *Quantification of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments*; Text; International Atomic Energy Agency, 2009; pp 1–624.

-
- (71) IAEA. *Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. Technical Reports Series No. 472*; Technical Reports Series; 472; IAEA: Vienna, 2010.
- (72) Ivan Piljac. Teorijske osnove. In *Senzori fizikalnih veličina i elektroanalitičke metode*; Mediaprint – tiskara Hrastić d.o.o.: Zagreb, 2010; pp 1–21.
- (73) Gilmore, G.; Joss, D. Semiconductor Detectors for Gamma-Ray Spectrometry. In *Practical gamma-ray spectroscopy*; Wiley: Hoboken, NJ, 2024; pp 52–78.
- (74) Venkataraman, R. Semiconductor Detectors. In *Handbook of Radioactivity Analysis (Fourth Edition)*; L'Annunziata, M. F., Ed.; Academic Press, 2020; pp 409–491. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-814397-1.00004-2>.
- (75) Gilmore, G.; Joss, D. Electronics for Gamma-Ray Spectrometry. In *Practical gamma-ray spectroscopy*; Wiley: Hoboken, NJ, 2024; pp 79–127.
- (76) Vajda, N.; Pöllänen, R.; Martin, P.; Kim, C.-K. Chapter 5 - Alpha Spectrometry. In *Handbook of Radioactivity Analysis (Fourth Edition)*; L'Annunziata, M. F., Ed.; Academic Press, 2020; pp 493–573. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-814397-1.00005-4>.
- (77) Knoll, G. F. Scintillation Detector Principles. In *Radiation detection and measurement*; Wiley: Hoboken, NJ, 2010; pp 223–274.
- (78) Choppin, G.; Christian Ekberg; Jan-Olov Liljenzin; Jan Rydberg. Detection and Measurement Techniques. In *Radiochemistry and Nuclear Chemistry*; Academic Press, 2013; pp 239–295.
- (79) Michael F. L'Annunziata; Alex Tarancon; Hector Bagan; Jose F. Garcia. Liquid Scintillation Analysis: Principles and Practice. In *Handbook of Radioactivity Analysis Volume 1: Radiation Physics and Detectors*; pp 576–617.
- (80) Čerenkov, P. A. Visible Light from Clear Liquids under the Action of Gamma Radiation. *CR Dokl Akad Nauk SSSR* **1934**, 8.

-
- (81) Vajda, N.; Kim, C.-K. Determination of Radiostrontium Isotopes: A Review of Analytical Methodology. *Appl. Radiat. Isot.* **2010**, *68* (12), 2306–2326. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2010.05.013>.
- (82) Vajda, N.; Kim, C.-K. Determination of Transuranium Isotopes (Pu, Np, Am) by Radiometric Techniques: A Review of Analytical Methodology. *Anal. Chem.* **2011**, *83* (12), 4688–4719. <https://doi.org/10.1021/ac2008288>.
- (83) Alam, M. F.; Begum, Z. A.; Furusho, Y.; Hasegawa, H.; Rahman, I. M. M. Selective Separation of Radionuclides from Environmental Matrices Using Proprietary Solid-Phase Extraction Systems: A Review. *Microchem. J.* **2022**, *181*, 107637. <https://doi.org/10.1016/j.microc.2022.107637>.
- (84) Grate, J. W.; Egorov, O. B.; O'Hara, M. J.; DeVol, T. A. Radionuclide Sensors for Environmental Monitoring: From Flow Injection Solid-Phase Absorptiometry to Equilibration-Based Preconcentrating Minicolumn Sensors with Radiometric Detection. *Chem. Rev.* **2008**, *108* (2), 543–562. <https://doi.org/10.1021/cr068115u>.
- (85) Coňa, I.; Dulanská, S.; Tucaković, I.; Grahek, Ž. Synergy of Flow Injection System and Molecular Recognition Technology Products for Rapid Determination of ^{89,90}Sr and ²¹⁰Pb. *Talanta* **2021**, *225*, 121959. <https://doi.org/10.1016/j.talanta.2020.121959>.
- (86) Izatt, R. M.; Izatt, S. R.; Izatt, N. E.; Krakowiak, K. E.; Bruening, R. L.; Navarro, L. Industrial Applications of Molecular Recognition Technology to Separations of Platinum Group Metals and Selective Removal of Metal Impurities from Process Streams. *Green Chem.* **2015**, *17* (4), 2236–2245. <https://doi.org/10.1039/C4GC02188F>.
- (87) Pinto, I. S. S.; Sadeghi, S. M.; Izatt, N. E.; Soares, H. M. V. M. Recovery of Metals from an Acid Leachate of Spent Hydrodesulphurization Catalyst Using Molecular Recognition Technology. *Chem. Eng. Sci.* **2015**, *138*, 353–362. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2015.08.018>.
- (88) Rahman, I. M. M.; Ye, Y.; Alam, M. F.; Sawai, H.; Begum, Z. A.; Furusho, Y.; Ohta, A.; Hasegawa, H. Selective Separation of Radiocesium from Complex Aqueous

- Matrices Using Dual Solid-Phase Extraction Systems. *J. Chromatogr. A* **2021**, 1654, 462476. <https://doi.org/10.1016/j.chroma.2021.462476>.
- (89) Izatt, R. M.; Rytting, J. H.; Nelson, D. P.; Haymore, B. L.; Christensen, J. J. Binding of Alkali Metal Ions by Cyclic Polyethers: Significance in Ion Transport Processes. *Science* **1969**, 164 (3878), 443–444. <https://doi.org/10.1126/science.164.3878.443>.
- (90) Lehn, J. M.; Sauvage, J. P. Cryptates. XVI. [2]-Cryptates. Stability and Selectivity of Alkali and Alkaline-Earth Macrobicyclic Complexes. *J. Am. Chem. Soc.* **1975**, 97 (23), 6700–6707. <https://doi.org/10.1021/ja00856a018>.
- (91) Dulanská, S.; Coňa, I.; Silliková, V.; Goneková, Z.; Horváthová, B.; Nodilo, M.; Grahek, Ž. Sequential Determination of ^{90}Sr and ^{210}Pb in Bone Samples Using Molecular Recognition Technology Product AnaLig® Sr-01. *Microchem. J.* **2020**, 157, 105123. <https://doi.org/10.1016/j.microc.2020.105123>.
- (92) ICRP. The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 103. Ann. ICRP 37 (2-4), 2007.
- (93) Štrok, M.; Smodiš, B. Levels of ^{210}Po and ^{210}Pb in Fish and Molluscs in Slovenia and the Related Dose Assessment to the Population. *Chemosphere* **2011**, 82 (7), 970–976. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2010.10.075>.
- (94) Štrok, M.; Smodiš, B. Transfer of Natural Radionuclides from Hay and Silage to Cow's Milk in the Vicinity of a Former Uranium Mine. *J. Environ. Radioact.* **2012**, 110, 64–68. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2012.02.009>.
- (95) IAEA. A Procedure for the Rapid Determination of Pu Isotopes and Am-241 in Soil and Sediment Samples by Alpha Spectrometry, 2009.
- (96) Sill, C. W.; Williams, R. L. Preparation of Actinides for .Alpha. Spectrometry without Electrodeposition. *Anal. Chem.* **1981**, 53 (3), 412–415. <https://doi.org/10.1021/ac00226a008>.

-
- (97) Hindman, F. D. Neodymium Fluoride Mounting for .Alpha. Spectrometric Determination of Uranium, Plutonium, and Americium. *Anal. Chem.* **1983**, 55 (14), 2460–2461. <https://doi.org/10.1021/ac00264a068>.
- (98) Grahek, Ž.; Dulanská, S.; Karanović, G.; Coha, I.; Tucaković, I.; Nodilo, M.; Mátel, L. Comparison of Different Methodologies for the 90Sr Determination in Environmental Samples. *J. Environ. Radioact.* **2018**, 181, 18–31. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.10.012>.
- (99) Grahek, Ž.; Coha, I.; Tucaković, I. Radiostrontium Determination by Combination of Automated Sr Isolation and “on-Column” Cherenkov Detection Using Chromatographic Model. *J. Chromatogr. A* **2023**, 1706, 464276. <https://doi.org/10.1016/j.chroma.2023.464276>.
- (100) Gorzkiewicz, K.; Mietelski, J. W.; Kierepko, R.; Brudecki, K. Low-Background, Digital Gamma-Ray Spectrometer with BEGe Detector and Active Shield: Commissioning, Optimisation and Software Development. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **2019**, 322 (3), 1311–1321. <https://doi.org/10.1007/s10967-019-06853-7>.
- (101) Državni zavod za statistiku Republike Hrvatske. Rezultati Ankete o potrošnji kućanstava u 2019., 2021. https://web.dzs.hr/Hrv_Eng/publication/2020/SI-1676.pdf (pristupljeno 27.6.2025.).
- (102) Sigg, C. D.; Buhmann, J. M. Expectation-Maximization for Sparse and Non-Negative PCA. In *Proceedings of the 25th international conference on Machine learning; ICML '08*; Association for Computing Machinery: New York, NY, USA, 2008; pp 960–967. <https://doi.org/10.1145/1390156.1390277>.
- (103) Christian Sigg; R Core team. Non-Negative and Sparse PCA. <https://cran.r-project.org/web/packages/nsprcomp/index.html>.
- (104) R Core Team. R: A Language and Environment for Statistical Computing. <https://www.R-project.org/>.

-
- (105) Bro, R.; De Jong, S. A Fast Non-Negativity-Constrained Least Squares Algorithm. *J. Chemom.* **1997**, *11* (5), 393–401. [https://doi.org/10.1002/\(SICI\)1099-128X\(199709/10\)11:5<393::AID-CEM483>3.0.CO;2-L](https://doi.org/10.1002/(SICI)1099-128X(199709/10)11:5<393::AID-CEM483>3.0.CO;2-L).
- (106) Nathaniel Helwig. Multiway: Component Models for Multi-Way Data. R Package Version 1.0-6, 2019. <https://cran.r-project.org/web/packages/multiway/index.html>.
- (107) Anagnostakis, M. J.; Hiniš, E. P.; Simopoulos, S. E.; Angelopoulos, M. G. Natural Radioactivity Mapping of Greek Surface Soils. *Environ. Int.* **1996**, *22*, 3–8. [https://doi.org/10.1016/S0160-4120\(96\)00085-2](https://doi.org/10.1016/S0160-4120(96)00085-2).
- (108) Guidotti, L.; Carini, F.; Rossi, R.; Gatti, M.; Cenci, R. M.; Beone, G. M. Gamma-Spectrometric Measurement of Radioactivity in Agricultural Soils of the Lombardia Region, Northern Italy. *J. Environ. Radioact.* **2015**, *142*, 36–44. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.01.010>.
- (109) Asylbaev, I. G.; Khabirov, I. K.; Gabbasova, I. M.; Rafikov, B. V.; Lukmanov, N. A. Geochemistry of Thorium and Uranium in Soils of the Southern Urals. *Eurasian Soil Sci.* **2017**, *50* (12), 1406–1413. <https://doi.org/10.1134/S1064229317120031>.
- (110) *Geokemijski atlas Republike Hrvatske: = Geochemical atlas of the Republic of Croatia*; Halamić, J., Miko, S., Eds.; HGI Hrvatski geološki institut: Zagreb, 2009.
- (111) Charro, E.; Pardo, R.; Peña, V. Chemometric Interpretation of Vertical Profiles of Radionuclides in Soils near a Spanish Coal-Fired Power Plant. *Chemosphere* **2013**, *90* (2), 488–496. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2012.08.008>.
- (112) Thomas, K. J.; Norman, E. B.; Smith, A. R.; Chan, Y. D. Installation of a Muon Veto for Low Background Gamma Spectroscopy at the LBNL Low-Background Facility. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. Accel. Spectrometers Detect. Assoc. Equip.* **2013**, *724*, 47–53. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2013.05.034>.
- (113) Hurtado, S.; García-León, M.; García-Tenorio, R. Optimized Background Reduction in Low-Level Gamma-Ray Spectrometry at a Surface Laboratory. *Appl. Radiat. Isot.* **2006**, *64* (9), 1006–1012. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2006.01.008>.

-
- (114) Marković, N.; Roos, P.; Nielsen, S. P.; Cai, X. X. Background Reduction at DTU Nutech Surface Gamma Laboratory. *Appl. Radiat. Isot.* **2019**, *151*, 30–38. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2019.05.014>.
- (115) Matsunami, H.; Uchida, T.; Kobayashi, H.; Ota, T.; Shinano, T. Comparative Dynamics of Potassium and Radiocesium in Soybean with Different Potassium Application Levels. *J. Environ. Radioact.* **2021**, *233*, 106609. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2021.106609>.
- (116) Meli, M. A.; Desideri, D.; Roselli, C.; Feduzi, L. Assessment of ^{210}Po in Italian Diet. *Food Chem.* **2014**, *155*, 87–90. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2014.01.049>.
- (117) Lapointe, M.-C.; Stuart, M.; Bond, M. J.; Hickling, N.; Gosselin, I.; Chen, H. Q.; Festarini, A. Sr-90 Soil to Plant Transfer Factor Reduction Using Calcium and Polymer Soil Amendments. *J. Environ. Radioact.* **2020**, *218*, 106258. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106258>.
- (118) Tucaković, I.; Karanović, G.; Coha, I.; Pavičić-Hamer, D.; Grahek, Ž. Radionuclides in Commercial Children's Food Consumed in Croatia. *Food Control* **2023**, *145*, 109413. <https://doi.org/10.1016/j.foodcont.2022.109413>.
- (119) Pintilie-Nicolov, V.; Georgescu, P. L.; Iticescu, C.; Moraru, D. I.; Pintilie, A. G. The Assessment of the Annual Effective Dose Due to Ingestion of Radionuclides from Drinking Water Consumption: Calculation Methods. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **2021**, *327* (1), 49–58. <https://doi.org/10.1007/s10967-020-07438-5>.
- (120) Desideri, D.; Battisti, P.; Giardina, I.; Roselli, C.; Feduzi, L.; Gorietti, D.; Meli, M. A. Assessment of Radioactivity in Italian Baby Food. *Food Chem.* **2019**, *279*, 408–415. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2018.12.030>.
- (121) Ababneh, A. M.; Jaradat, B.; Samarah, Q. M.; Ababneh, Z. Q. Assessment of the Radioactivity of Gamma Emitters in Baby Formula for Different Age Groups and Baby Cereal Consumed in Jordan. *Radiat. Prot. Dosimetry* **2021**, *193* (1), 8–15. <https://doi.org/10.1093/rpd/ncab015>.

§ 8. DODATAK

8.1. Uzorci i uzorkovanje

8.1.1. Tablica D1 Legenda oznaka korištenih za označavanje uzoraka.

Poljoprivredna kultura	kratica	Poljoprivredna kultura	Kratica	Ostale oznake	kratica
Krumpir	KRM	Tikva	TIK / KAB / PRIN / BUT / HOK / TUR / GOL	Kore	KOR
Batat	BAT	Mrkva	MRK	Tlo	TLO
Tikvica	TIKV	Pšenica	PSE	Narančasti	NAR
Cvjetača	KAR	Blitva	BLI	Ljubičasti	LJUB
Kupus	KUP	Kamilica	KAM	Žuti	ZUT
Paprika	PAP	Mandarina	MAN	Zeleni	ZEL
Orah	ORAH	Kelj	KELJ		
Jabuka	JAB	Špinat	SPI		
Kruška	KRU	Patlidžan	PATL		
Kadulja	KAD	Pir	PIR		
Smilje	SMI	Kaki jabuka	KAKI		
Lješnjak	LJES	Brokula	BRO		
Ružmarin	RUZ	Krastavac	KRA		
Cikla	CIK				

Uzorci analiziranih kultura označeni su oznakom koja se sastoji od nekoliko dijelova odvojenih znakom "-", dok se znak "_" koristi unutar pojedinog dijela kako bi se dodatno označio neki uzorak. Npr. oznaka "RF-BAT_LJUB_KOR-ZAD" sastoji se od 3 dijela koji znače:

1. Ime projekta – RF od RiChFALL,
2. Kultura s dodatnim oznakama – BAT označava batat, LJUB označava ljubičastu vrstu dok KOR označava koru,
3. Oznake lokacije – ZAD je oznaka dodijeljena OPG (po Zadru).

Ukoliko se radi o uzorku tla, korištena je oznaka TLO te odgovarajuća dubina. Npr. oznaka "RF-KAD_TLO_10_20-PELJ" znači tlo na kojem je uzgajana kadulja, dubine 10 – 20 cm od OPG s lokacije PELJ (po Pelješcu). Većina oznaka lokacija dodijeljena je po mjestu u kojemu je OPG registriran ili obližnjem većem mjestu (gradu). Tablica D2 prikazuje sve oznake lokacija s GPS koordinatama mjesta u kojemu je OPG registriran.

8.1.2. Tablica D2. Kratice oznaka lokacija i GPS koordinate mjesta u kojem je OPG registriran.

Lokacija	Brojčana oznaka	Geografska širina	Geografska dužina	Uzorkovane kulture
DALJ	1	45,5267	19,0010	KRM, BAT, TIKV, KRA
VLA	2	45,4619	18,5722	KAR, KUP, PAP
PAT	3	45,3803	18,2775	ORAH
RUZ	4	45,2193	18,1533	JAB, KRU
PELJ	5	42,8241	17,7997	KAD, SMI
SED	6	45,3407	17,7689	LJES
PELJ	7	42,8470	17,7030	RUZ
ROS	8	45,3303	17,5971	CIK, JAB, KRM
BJE	9	43,0177	17,5642	BAT, TIK
VS	10	45,4282	17,5409	MRK, PSE, BLI, KAM
KOM	11	43,0419	17,5363	JAB, MAN
POD	12	43,1911	17,4216	KRM
ILI	13	43,1771	17,4121	JAB
PET	14	46,3308	16,6129	JAB
NED	15	45,8562	16,5551	KELJ, PAP, TIKV
SOL	16	43,5423	16,4921	TIK
SPL	17	43,5152	16,4432	CIK, MRK, SPI, KELJ, PATL
KRI	18	46,3777	16,3993	CIK, TIK
BZV	19	46,2442	16,2859	BAT, TIK, PIR
IGRC	20	45,9190	16,1324	KRM, MRK, BLI, PAP, TIK
NOV	21	45,8626	16,0401	KRM, PAP
ZAD	22	43,9495	15,7186	BAT
PLI	23	44,8806	15,6189	KRM, TIKV
OG	24	45,2660	15,2239	KRM
BUZ	25	45,3531	13,9478	KRU
PAZ	26	45,2233	13,9133	KAKI, TIK
POR	27	45,1822	13,6425	KRM, CIK, KAR, BRO

8.2. Specifične aktivnosti, faktori prijenosa te granice detekcije ciljanih radionuklida u pojedinim uzorcima

8.2.1. Tablica D3. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u tlima Hrvatske.

Oznaka uzorka	Lokacija	Uzgajana kultura	Dubina/cm	Specifična aktivnost, suha tvar / Bq kg ⁻¹							
				⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²³² Th	²³⁸ U
RF-KRM_TLO_0_5-DALJ	1	KRM	0-5	608 ± 26	1,12 ± 0,08	2,33 ± 0,20	52,67 ± 5,68		53,41 ± 1,40	56,37 ± 1,78	42,35 ± 4,54
RF-KRM_TLO_5_10-DALJ	1	KRM	5-10	609 ± 26	1,17 ± 0,08	5,05 ± 0,36	55,16 ± 5,98		56,30 ± 1,47	55,56 ± 1,74	44,30 ± 5,10
RF-KRM_TLO_10_20-DALJ	1	KRM	10-20	605 ± 26	1,20 ± 0,08	5,05 ± 0,36	49,23 ± 5,27		55,73 ± 1,46	57,58 ± 1,79	40,69 ± 4,64
RF-KRM_TLO_20_50-DALJ	1	KRM	20-50	612 ± 26	1,33 ± 0,09	5,08 ± 0,36	54,57 ± 5,81		55,18 ± 1,45	56,82 ± 1,78	45,64 ± 4,83
RF-BAT_TLO_0_5-DALJ	1	BAT	0-5	633 ± 27	1,39 ± 0,09	5,64 ± 0,40	58,99 ± 6,30		49,01 ± 1,34	53,80 ± 1,72	40,97 ± 4,52
RF-BAT_TLO_5_10-DALJ	1	BAT	5-10	597 ± 26	1,42 ± 0,09	5,89 ± 0,41	55,31 ± 5,89		49,57 ± 1,34	53,28 ± 1,69	38,20 ± 4,44
RF-BAT_TLO_10_20-DALJ	1	BAT	10-20	621 ± 27	1,39 ± 0,09	5,80 ± 0,41	59,31 ± 6,33		50,02 ± 1,36	52,06 ± 1,70	42,66 ± 4,63
RF-BAT_TLO_20_50-DALJ	1	BAT	20-50	613 ± 26	1,56 ± 0,08	6,07 ± 0,42	53,53 ± 5,77		48,00 ± 1,33	53,57 ± 1,76	39,74 ± 4,59
RF-TIKV_TLO_0_5-DALJ	1	TIKV, KRA	0-5	627 ± 27	1,40 ± 0,10	6,28 ± 0,44	61,00 ± 6,77		54,66 ± 1,58	54,91 ± 1,12	39,13 ± 5,16
RF-TIKV_TLO_5_10-DALJ	1	TIKV, KRA	5-10	614 ± 26	1,40 ± 0,10	6,13 ± 0,43	58,47 ± 6,21		53,68 ± 1,47	55,38 ± 1,78	37,74 ± 4,45
RF-TIKV_TLO_10_20-DALJ	1	TIKV, KRA	10-20	632 ± 27	1,40 ± 0,10	6,20 ± 0,43	60,25 ± 6,42		56,79 ± 1,52	52,43 ± 1,73	39,84 ± 4,63
RF-TIKV_TLO_20_50-DALJ	1	TIKV, KRA	20-50	624 ± 27	1,40 ± 0,10	3,49 ± 0,28	54,62 ± 5,90		53,94 ± 1,46	54,69 ± 1,76	40,15 ± 4,67
RF-KUP_TLO_0_5-VLA	2	KUP	0-5	350 ± 15	0,59 ± 0,09	6,88 ± 0,46	35,21 ± 4,13		40,47 ± 1,20	23,48 ± 0,98	24,95 ± 4,95
RF-KUP_TLO_5_10-VLA	2	KUP	5-10	356 ± 16	0,59 ± 0,09	6,56 ± 0,44	34,47 ± 3,80		38,86 ± 1,08	22,14 ± 0,83	27,21 ± 3,14
RF-KUP_TLO_10_20-VLA	2	KUP	10-20	341 ± 15	0,59 ± 0,09	6,32 ± 0,43	37,50 ± 4,15		38,16 ± 1,07	22,69 ± 0,85	23,41 ± 2,92
RF-KAR_TLO_0_5-VLA	2	KAR	0-5	583 ± 25	0,97 ± 0,10	6,40 ± 0,44	71,49 ± 7,98		54,15 ± 1,57	52,93 ± 1,88	52,14 ± 6,19
RF-KAR_TLO_5_10-VLA	2	KAR	5-10	568 ± 25	0,97 ± 0,10	6,05 ± 0,42	56,70 ± 6,08		51,46 ± 1,41	51,72 ± 1,68	45,30 ± 4,83
RF-KAR_TLO_10_20-VLA	2	KAR	10-20	571 ± 25	0,97 ± 0,10	6,14 ± 0,43	61,38 ± 6,55		51,67 ± 1,42	53,53 ± 1,73	51,16 ± 5,50

Tablica D3. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u tlima Hrvatske (nastavak).

Oznaka uzorka	Lokacija	Uzgajana kultura	Dub./cm	Specifična aktivnost, suha tvar / Bq kg ⁻¹							
				⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²³² Th	²³⁸ U
RF-PAP_TLO_5-VLA	2	PAP	0-5	548 ± 24	1,87 ± 0,08	7,66 ± 0,54	47,51 ± 5,49		48,33 ± 1,43	47,70 ± 1,75	43,83 ± 5,42
RF-PAP_TLO_10-VLA	2	PAP	5-10	520 ± 23	1,98 ± 0,08	7,62 ± 0,51	46,65 ± 5,07		46,53 ± 1,29	47,24 ± 1,54	45,41 ± 4,75
RF-PAP_TLO_20-VLA	2	PAP	10-20	533 ± 23	2,09 ± 0,09	7,32 ± 0,50	47,71 ± 5,20		46,47 ± 1,29	46,39 ± 1,53	44,30 ± 5,01
RF-JAB_TLO_0_5-RUZ	4	JAB	0-5	555 ± 24	1,09 ± 0,09	3,88 ± 0,30	67,56 ± 7,20		49,82 ± 1,37	58,06 ± 1,32	50,58 ± 5,21
RF-JAB_TLO_5_10-RUZ	4	JAB	5-10	578 ± 25	1,09 ± 0,09	3,74 ± 0,29	58,32 ± 6,49		47,25 ± 1,40	59,72 ± 1,44	50,36 ± 5,78
RF-JAB_TLO_10_20-RUZ	4	JAB	10-20	544 ± 24	1,13 ± 0,09	4,02 ± 0,31	63,73 ± 7,11		49,43 ± 1,47	58,64 ± 1,43	49,51 ± 5,90
RF-JAB_TLO_20_50-RUZ	4	JAB	20-50	576 ± 25	1,04 ± 0,09	3,14 ± 0,26	66,11 ± 7,44		51,78 ± 1,52	55,20 ± 1,14	54,88 ± 6,46
RF-KRU_TLO_0_5-RUZ	4	KRU	0-5	515 ± 22	0,92 ± 0,08	4,83 ± 0,35	58,46 ± 6,19		49,04 ± 1,34	54,24 ± 1,74	47,31 ± 4,91
RF-KRU_TLO_5_10-RUZ	4	KRU	5-10	488 ± 21	0,92 ± 0,08	4,61 ± 0,34	66,80 ± 7,12		50,17 ± 1,36	54,05 ± 1,72	40,28 ± 4,66
RF-KRU_TLO_10_20-RUZ	4	KRU	10-20	484 ± 21	0,92 ± 0,08	4,75 ± 0,35	50,90 ± 5,46		48,35 ± 1,32	51,91 ± 1,69	38,56 ± 4,49
RF-KRU_TLO_20_50-RUZ	4	KRU	20-50	474 ± 21	0,92 ± 0,08	3,21 ± 0,26	50,83 ± 5,52		49,94 ± 1,35	53,98 ± 1,72	44,24 ± 5,03
RF-SMI_TLO_0_5-PELJ	5	SMI	0-5	441 ± 19	5,01 ± 0,11	132,33 ± 7,98	491,36 ± 49,69	480,75 ± 14,57	346,22 ± 11,86	86,24 ± 2,81	
RF-SMI_TLO_5_10-PELJ	5	SMI	5-10	454 ± 21	5,01 ± 0,11	47,45 ± 2,92	250,36 ± 26,46	281,13 ± 11,27	346,07 ± 12,27	93,57 ± 3,25	
RF-SMI_TLO_10_20-PELJ	5	SMI	10-20	461 ± 21	5,01 ± 0,11	31,14 ± 1,94	294,29 ± 30,90	269,12 ± 8,23	463,33 ± 16,12	98,31 ± 1,38	
RF-SMI_TLO_20_50-PELJ	5	SMI	20-50	398 ± 18	5,01 ± 0,11	9,26 ± 0,63	148,83 ± 16,30	176,61 ± 5,47	264,19 ± 9,42	107,92 ± 3,58	
RF-KAD_TLO_0_5-PELJ	5	KAD	0-5	478 ± 21	3,45 ± 0,08	110,57 ± 6,71	500,57 ± 50,66	466,50 ± 16,33	161,89 ± 3,85	104,83 ± 3,24	57,36 ± 6,62
RF-KAD_TLO_5_10-PELJ	5	KAD	5-10	488 ± 22	3,45 ± 0,08	25,96 ± 1,63	167,34 ± 17,34	165,51 ± 7,45	184,61 ± 4,29	119,38 ± 3,54	60,19 ± 6,88
RF-KAD_TLO_10_20-PELJ	5	KAD	10-20	496 ± 22	3,45 ± 0,08	10,41 ± 0,71	144,78 ± 15,13	145,59 ± 3,67	207,45 ± 4,73	127,88 ± 3,76	82,20 ± 8,48
RF-KAD_TLO_20_50-PELJ	5	KAD	20-50	443 ± 20	3,45 ± 0,08	0,86 ± 0,15	83,33 ± 9,03	94,61 ± 2,81	137,95 ± 3,25	98,27 ± 2,90	68,43 ± 7,87
RF-JAB_TLO_0_5-SED	6	JAB	0-5	544 ± 23	1,41 ± 0,06	5,32 ± 0,38	61,54 ± 6,53	56,15 ± 2,19	50,39 ± 1,35	52,40 ± 1,24	45,21 ± 4,92
RF-JAB_TLO_5_10-SED	6	JAB	5-10	526 ± 23	1,41 ± 0,06	5,89 ± 0,41	53,74 ± 5,80	49,03 ± 2,11	53,14 ± 1,41	51,90 ± 1,24	51,43 ± 5,28
RF-JAB_TLO_10_20-SED	6	JAB	10-20	520 ± 22	1,41 ± 0,06	5,79 ± 0,40	50,40 ± 5,45	44,71 ± 2,01	50,53 ± 1,34	50,04 ± 1,21	47,89 ± 4,87
RF-JAB_TLO_20_50-SED	6	JAB	20-50	571 ± 25	1,41 ± 0,06	1,90 ± 0,18	48,10 ± 5,24	42,92 ± 2,02	50,20 ± 1,36	56,47 ± 1,33	42,75 ± 4,61
RF-LJES_TLO_0_5-SED	6	LJES	0-5	527 ± 23	1,00 ± 0,05	7,51 ± 0,50	58,36 ± 6,24	31,45 ± 1,31	47,67 ± 1,29	52,05 ± 1,23	41,50 ± 4,51

Tablica D3. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u tlima Hrvatske (nastavak).

Oznaka uzorka	Lokacija	Uzgajana kultura	Dubina/cm	Specifična aktivnost, suha tvar / Bq kg ⁻¹							
				⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²³² Th	²³⁸ U
RF-LJES_TLO_5_10-SED	6	LJES	5-10	536 ± 23	1,00 ± 0,05	8,68 ± 0,57	54,73 ± 5,93	25,23 ± 1,11	49,20 ± 0,10	51,20 ± 1,22	46,17 ± 5,17
RF-LJES_TLO_10_20-SED	6	LJES	10-20	531 ± 23	1,00 ± 0,05	7,23 ± 0,49	48,30 ± 5,25	19,18 ± 0,82	45,26 ± 1,25	50,28 ± 1,18	43,54 ± 4,58
RF-LJES_TLO_20_50-SED	6	LJES	20-50	548 ± 24	1,00 ± 0,05	0,84 ± 0,11	47,84 ± 5,21	10,60 ± 0,53	49,18 ± 1,32	50,74 ± 1,21	44,15 ± 4,98
RF-RUZ_TLO_0_5-PELJ	7	RUZ	0-5	470 ± 20	0,69 ± 0,05	11,96 ± 0,77	156,03 ± 15,99	140,38 ± 5,47	184,73 ± 4,15	65,45 ± 1,55	58,19 ± 6,53
RF-RUZ_TLO_5_10-PELJ	7	RUZ	5-10	437 ± 19	0,69 ± 0,05	10,51 ± 0,68	110,42 ± 11,49	148,38 ± 3,71	174,94 ± 3,92	69,13 ± 1,51	53,15 ± 5,72
RF-RUZ_TLO_10_20-PELJ	7	RUZ	10-20	427 ± 19	0,69 ± 0,05	10,78 ± 0,70	125,87 ± 12,92	145,36 ± 3,63	174,82 ± 3,90	65,96 ± 1,47	51,11 ± 5,27
RF-RUZ_TLO_20_50-PELJ	7	RUZ	20-50	435 ± 19	0,69 ± 0,05	10,90 ± 0,71	133,23 ± 13,69	134,92 ± 3,91	177,57 ± 3,98	65,34 ± 1,54	51,26 ± 5,52
RF-JAB_TLO_0_5-ROS	8	JAB	0-5	577 ± 25	1,86 ± 0,07	6,74 ± 0,46	65,08 ± 6,89	56,44 ± 1,81	48,79 ± 1,30	54,34 ± 1,71	42,62 ± 4,82
RF-JAB_TLO_5_10-ROS	8	JAB	5-10	590 ± 25	1,86 ± 0,07	7,44 ± 0,50	67,14 ± 7,16	31,01 ± 1,02	47,51 ± 1,29	55,81 ± 1,74	39,27 ± 4,20
RF-JAB_TLO_10_20-ROS	8	JAB	10-20	572 ± 25	1,86 ± 0,07	6,95 ± 0,47	50,45 ± 5,45	34,22 ± 1,51	50,66 ± 1,35	55,48 ± 1,75	44,86 ± 4,77
RF-JAB_TLO_20_50-ROS	8	JAB	20-50	608 ± 26	1,86 ± 0,07	4,44 ± 0,32	49,30 ± 5,35	30,77 ± 1,08	50,47 ± 1,35	58,50 ± 1,82	45,54 ± 5,16
RF-KRM_TLO_0_5-ROS	8	KRM, CIK	0-5	477 ± 21	1,69 ± 0,07	9,01 ± 0,60	44,76 ± 6,03	22,49 ± 1,57	39,29 ± 1,88	40,31 ± 1,50	
RF-KRM_TLO_5_10-ROS	8	KRM, CIK	5-10	479 ± 21	1,69 ± 0,07	8,99 ± 0,60	41,29 ± 7,56	22,99 ± 1,01	38,43 ± 1,83	40,05 ± 1,46	
RF-KRM_TLO_10_20-ROS	8	KRM, CIK	10-20	481 ± 20	1,69 ± 0,07	8,98 ± 0,56	43,29 ± 6,89	19,04 ± 0,84	40,09 ± 1,62	39,91 ± 1,27	
RF-KRM_TLO_20_50-ROS	8	KRM, CIK	20-50	465 ± 20	1,69 ± 0,07	3,17 ± 0,25	36,92 ± 5,92	14,46 ± 0,69	42,68 ± 2,16	42,87 ± 1,57	
RF-TIK_TLO_0_5-BJE	9	TIK	0-5	549 ± 24	<0,11	5,10 ± 0,38	41,01 ± 4,83	31,96 ± 1,56	37,29 ± 1,14	36,94 ± 1,31	38,29 ± 4,49
RF-TIK_TLO_5_10-BJE	9	TIK	5-10	513 ± 22	<0,11	4,91 ± 0,36	40,77 ± 4,78	32,27 ± 1,51	36,85 ± 1,13	36,90 ± 1,29	40,90 ± 4,94
RF-TIK_TLO_10_20-BJE	9	TIK	10-20	534 ± 23	<0,11	5,22 ± 0,39	33,73 ± 4,26	34,33 ± 1,79	35,17 ± 1,13	34,52 ± 1,26	42,41 ± 5,15
RF-TIK_TLO_20_50-BJE	9	TIK	20-50	551 ± 24	<0,11	3,02 ± 0,26	42,56 ± 5,25	22,36 ± 1,25	36,05 ± 1,13	38,30 ± 1,35	44,05 ± 5,29
RF-BAT_TLO_0_5-BJE	9	BAT	0-5	468 ± 21	0,14 ± 0,03	2,34 ± 0,21	34,82 ± 6,43	80,74 ± 5,01	34,24 ± 1,68	31,02 ± 1,24	
RF-BAT_TLO_5_10-BJE	9	BAT	5-10	461 ± 20	0,14 ± 0,03	2,44 ± 0,21	32,73 ± 6,72	60,80 ± 4,38	34,71 ± 1,13	30,20 ± 0,91	
RF-BAT_TLO_10_20-BJE	9	BAT	10-20	445 ± 20	0,14 ± 0,03	2,44 ± 0,28	32,49 ± 4,87	31,02 ± 1,64	30,83 ± 1,56	29,37 ± 1,19	
RF-BAT_TLO_20_50-BJE	9	BAT	20-50	430 ± 19	0,14 ± 0,03	2,30 ± 0,20	32,93 ± 4,55	27,80 ± 2,45	32,93 ± 4,55	32,21 ± 1,61	
RF-MRK_TLO_0_5-VS	10	MRK, PSE	0-5	539 ± 24	1,54 ± 0,06	9,00 ± 0,60	57,04 ± 6,99	27,37 ± 0,86	41,19 ± 2,00	49,13 ± 1,81	

Tablica D3. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u tlima Hrvatske (nastavak).

Oznaka uzorka	Lokacija	Uzgajana kultura	Dubina/cm	Specifična aktivnost, suha tvar / Bq kg ⁻¹							
				⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²³² Th	²³⁸ U
RF-MRK_TLO_5_10-VS	10	MRK, PSE	5-10	564 ± 25	1,54 ± 0,06	10,18 ± 0,67	57,96 ± 7,60	34,53 ± 1,35	46,00 ± 2,14	49,79 ± 1,82	
RF-MRK_TLO_10_20-VS	10	MRK, PSE	10-20	551 ± 24	1,54 ± 0,06	8,24 ± 0,60	49,17 ± 6,63	30,71 ± 1,03	46,54 ± 2,14	53,10 ± 1,91	
RF-MRK_TLO_20_50-VS	10	MRK, PSE	20-50	547 ± 24	1,54 ± 0,06	1,47 ± 0,17	36,58 ± 5,46	18,82 ± 0,85	46,15 ± 2,13	54,79 ± 1,94	
RF-KTM_0_5-VS	10	KAM	0-5	592 ± 26	1,49 ± 0,05	9,44 ± 0,63	65,71 ± 7,26	25,61 ± 0,94	49,73 ± 1,42	55,11 ± 1,80	42,75 ± 5,20
RF-KTM_5_10-VS	10	KAM	5-10	569 ± 25	1,49 ± 0,05	9,58 ± 0,64	64,80 ± 7,18	26,33 ± 1,00	49,77 ± 1,42	56,82 ± 1,84	43,20 ± 5,06
RF-KTM_10_20-VS	10	KAM	10-20	562 ± 24	1,49 ± 0,05	8,61 ± 0,58	57,45 ± 6,46	26,91 ± 1,07	49,75 ± 1,42	57,23 ± 1,85	47,49 ± 5,36
RF-KTM_20_50-VS	10	KAM	20-50	591 ± 26	1,49 ± 0,05	1,47 ± 0,18	40,57 ± 4,83	18,78 ± 0,85	48,44 ± 1,39	58,95 ± 1,91	44,66 ± 5,16
RF-BLI_TLO_0_5-VS	10	BLI	0-5	548 ± 24		13,98 ± 0,90	82,37 ± 9,64	34,82 ± 1,29	41,02 ± 1,98	43,76 ± 1,68	
RF-BLI_TLO_5_10-VS	10	BLI	5-10	544 ± 24		12,72 ± 0,85	73,28 ± 8,89	37,96 ± 1,40	39,93 ± 2,26	44,87 ± 1,74	
RF-BLI_TLO_10_20-VS	10	BLI	10-20	517 ± 23		13,86 ± 0,89	56,22 ± 9,50	43,18 ± 1,94	41,30 ± 1,99	43,03 ± 1,58	
RF-BLI_TLO_20_50-VS	10	BLI	20-50	529 ± 23		10,15 ± 0,67	53,24 ± 9,04	25,34 ± 1,52	40,95 ± 1,95	46,46 ± 1,65	
RF-MAN_TLO_0_5-KOM	11	MAN, JAB	0-5	435 ± 19	0,32 ± 0,04	24,07 ± 1,50	102,66 ± 11,52	85,00 ± 3,15	50,37 ± 2,20	32,32 ± 1,32	
RF-MAN_TLO_5_10-KOM	11	MAN, JAB	5-10	427 ± 19	0,32 ± 0,04	24,43 ± 1,52	93,59 ± 10,64	127,70 ± 6,00	37,18 ± 2,80	32,54 ± 1,33	
RF-MAN_TLO_10_20-KOM	11	MAN, JAB	10-20	428 ± 19	0,32 ± 0,04	8,93 ± 0,59	38,82 ± 6,78	46,67 ± 2,85	35,85 ± 1,73	30,78 ± 1,19	
RF-MAN_TLO_20_50-KOM	11	MAN, JAB	20-50	422 ± 19	0,32 ± 0,04	0,75 ± 0,12	23,15 ± 5,25	14,60 ± 1,50	28,84 ± 1,51	28,34 ± 1,15	
RF-KRM_TLO_0_5-POD	12	KRM	0-5	121 ± 6	0,19 ± 0,04	8,27 ± 0,55	41,91 ± 4,75	69,80 ± 2,86	59,32 ± 1,55	25,79 ± 0,96	15,87 ± 2,73
RF-KRM_TLO_5_10-POD	12	KRM	5-10	119 ± 6	0,19 ± 0,04	8,13 ± 0,54	45,76 ± 5,15	71,26 ± 4,06	61,02 ± 1,60	26,18 ± 0,98	19,36 ± 3,10
RF-KRM_TLO_10_20-POD	12	KRM	10-20	122 ± 6	0,19 ± 0,04	7,92 ± 0,53	44,97 ± 5,09	70,98 ± 2,91	60,29 ± 1,60	26,62 ± 1,01	19,99 ± 2,96
RF-KRM_TLO_20_50-POD	12	KRM	20-50	64 ± 4	0,19 ± 0,04	1,51 ± 0,16	18,41 ± 2,69	31,85 ± 1,78	33,25 ± 1,00	14,37 ± 0,64	13,77 ± 2,43
RF-JAB_TLO_0_5-ILI	13	JAB	0-5	203 ± 10	0,16 ± 0,04	13,09 ± 0,85	89,00 ± 10,02	122,84 ± 5,53	63,07 ± 2,69	34,14 ± 1,53	
RF-JAB_TLO_5_10-ILI	13	JAB	5-10	203 ± 10	0,16 ± 0,04	13,70 ± 8,84	73,60 ± 8,46	97,03 ± 4,27	66,11 ± 2,76	35,80 ± 1,59	
RF-JAB_TLO_10_20-ILI	13	JAB	10-20	188 ± 9	0,16 ± 0,04	11,84 ± 0,77	63,02 ± 10,21	57,12 ± 3,66	59,82 ± 2,56	37,27 ± 1,57	
RF-JAB_TLO_20_50-ILI	13	JAB	20-50	168 ± 9	0,16 ± 0,04	3,42 ± 0,28	41,76 ± 5,73	39,90 ± 2,00	50,97 ± 2,29	31,51 ± 1,44	
RF-JAB_TLO_0_5-PET	14	JAB	0-5	835 ± 36	0,87 ± 0,05	11,88 ± 0,78	61,13 ± 6,89	47,04 ± 1,79	61,58 ± 1,68	58,38 ± 1,92	41,08 ± 5,25

Tablica D3. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u tlima Hrvatske (nastavak).

Oznaka uzorka	Lokacija	Uzgajana kultura	Dubina/cm	Specifična aktivnost, suha tvar / Bq kg ⁻¹							
				⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²³² Th	²³⁸ U
RF-JAB_TLO_5_10-PET	14	JAB	5-10	820 ± 35	0,87 ± 0,05	11,51 ± 0,75	58,86 ± 6,72	40,33 ± 1,49	60,05 ± 1,66	59,27 ± 1,92	52,42 ± 6,25
RF-JAB_TLO_10_20-PET	14	JAB	10-20	838 ± 36	0,87 ± 0,05	10,77 ± 0,71	42,26 ± 5,07	46,32 ± 1,85	59,76 ± 1,65	59,37 ± 1,93	46,81 ± 5,42
RF-JAB_TLO_20_50-PET	14	JAB	20-50	858 ± 37	0,87 ± 0,05	1,61 ± 0,19	55,09 ± 6,31	40,00 ± 1,44	63,55 ± 1,74	64,14 ± 2,04	48,94 ± 5,89
RF-PMT_0_5-NED	15	PAP	0-5	574 ± 25	1,89 ± 0,08	11,32 ± 0,75	54,06 ± 6,28	20,96 ± 0,71	50,92 ± 1,46	55,68 ± 1,82	49,03 ± 5,63
RF-PMT_5_10-NED	15	PAP	5-10	576 ± 24	1,89 ± 0,08	11,64 ± 0,72	58,77 ± 6,21	22,04 ± 0,97	49,45 ± 1,19	54,41 ± 1,53	45,13 ± 4,55
RF-PMT_10_20-NED	15	PAP	10-20	586 ± 25	1,89 ± 0,08	10,19 ± 0,68	61,21 ± 7,02	17,66 ± 0,99	48,57 ± 1,40	54,07 ± 1,81	41,20 ± 5,17
RF-PMT_20_50-NED	15	PAP	20-50	603 ± 26	1,89 ± 0,08	1,22 ± 0,16	44,29 ± 5,25	12,29 ± 0,44	49,08 ± 1,42	55,90 ± 1,82	42,89 ± 5,04
RF-TKT_0_5-NED	15	TIKV, KELJ	0-5	568 ± 25	1,16 ± 0,06	13,37 ± 0,85	54,70 ± 5,87	19,70 ± 0,67	49,75 ± 1,37	55,49 ± 1,79	46,78 ± 4,96
RF-TKT_5_10-NED	15	TIKV, KELJ	5-10	532 ± 23	1,16 ± 0,06	13,52 ± 0,86	60,58 ± 6,45	18,29 ± 0,64	48,81 ± 1,53	52,91 ± 1,26	42,47 ± 4,60
RF-TKT_10_20-NED	15	TIKV, KELJ	10-20	545 ± 23	1,16 ± 0,06	13,38 ± 0,85	60,67 ± 6,52	18,55 ± 0,80	47,88 ± 1,50	54,05 ± 1,27	46,18 ± 5,18
RF-TKT_20_50-NED	15	TIKV, KELJ	20-50	599 ± 26	1,16 ± 0,06	2,07 ± 0,20	42,69 ± 4,67	20,84 ± 1,00	49,25 ± 1,34	55,20 ± 1,78	44,85 ± 4,77
RF-TIK_TLO_0_5-SOL	16	TIK	0-5	570 ± 25	1,48 ± 0,08	5,59 ± 0,39	52,95 ± 5,71		49,35 ± 1,34	49,08 ± 1,62	41,19 ± 4,71
RF-TIK_TLO_5_10-SOL	16	TIK	5-10	575 ± 25	1,25 ± 0,08	5,36 ± 0,38	48,38 ± 5,27		50,15 ± 1,37	52,37 ± 1,68	44,39 ± 4,83
RF-TIK_TLO_10_15-SOL	16	TIK	10-15	559 ± 24	1,39 ± 0,08	5,66 ± 0,40	51,82 ± 5,60		50,13 ± 1,37	50,27 ± 1,65	49,87 ± 5,23
RF-TIK_TLO_15_20-SOL	16	TIK	15-20	557 ± 24	1,42 ± 0,08	5,21 ± 0,37	48,55 ± 5,25		49,56 ± 1,35	50,28 ± 1,64	43,11 ± 4,89
RF-MRK_TLO_0_5-SPL	17	MRK	0-5	362 ± 16	0,75 ± 0,09	12,02 ± 0,77	35,72 ± 3,97		35,11 ± 1,00	25,60 ± 0,92	28,29 ± 3,36
RF-MRK_TLO_5_10-SPL	17	MRK	5-10	355 ± 16	0,75 ± 0,09	12,63 ± 0,80	35,32 ± 3,91		36,68 ± 1,02	24,69 ± 0,89	25,39 ± 2,96
RF-MRK_TLO_10_20-SPL	17	MRK	10-20	369 ± 16	0,75 ± 0,09	12,38 ± 0,79	31,60 ± 3,51		37,34 ± 1,05	24,41 ± 0,91	27,80 ± 3,19
RF-SPI_TLO_0_5-SPL	17	SPI, KELJ, PATL	0-5	336 ± 15	0,83 ± 0,08	6,27 ± 0,43	31,55 ± 3,49		30,84 ± 0,92	24,34 ± 0,90	19,49 ± 2,50
RF-SPI_TLO_5_10-SPL	17	SPI, KELJ, PATL	5-10	334 ± 15	1,06 ± 0,07	6,32 ± 0,44	27,67 ± 3,14		32,25 ± 0,96	24,19 ± 0,91	20,77 ± 2,65
RF-SPI_TLO_10_20-SPL	17	SPI, KELJ, PATL	10-20	334 ± 15	0,75 ± 0,07	5,77 ± 0,40	35,00 ± 3,97		28,75 ± 0,86	25,09 ± 0,92	23,14 ± 2,90
RF-CIK_TLO_0_5-KRI	18	CIK, TIK	0-5	626 ± 27	1,69 ± 0,07	14,76 ± 0,94	66,80 ± 7,34	48,33 ± 1,50	50,97 ± 1,46	48,99 ± 1,63	46,07 ± 5,53
RF-CIK_TLO_5_10-KRI	18	CIK, TIK	5-10	604 ± 26	1,69 ± 0,07	15,67 ± 1,00	62,34 ± 6,93	35,43 ± 1,09	51,68 ± 1,46	47,58 ± 1,63	47,42 ± 5,62
RF-CIK_TLO_10_20-KRI	18	CIK, TIK	10-20	583 ± 25	1,69 ± 0,07	18,57 ± 1,13	57,49 ± 6,03	48,20 ± 1,40	53,91 ± 1,30	52,16 ± 1,48	43,82 ± 4,58

Tablica D3. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u tlima Hrvatske (nastavak).

Oznaka uzorka	Lokacija	Uzgajana kultura	Dubina/cm	Specifična aktivnost, suha tvar / Bq kg ⁻¹							
				⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²³² Th	²³⁸ U
RF-CIK_TLO_20_50-KRI	18	CIK, TIK	20-50	565 ± 25	1,69 ± 0,07	19,18 ± 1,21	59,74 ± 6,68	40,88 ± 1,39	56,11 ± 1,56	55,00 ± 1,79	49,40 ± 5,86
RF-GOL_TLO_0_5-BZV	19	TIK	0-5	594 ± 26	0,72 ± 0,05	8,78 ± 0,59	57,58 ± 6,46	32,90 ± 1,30	48,34 ± 1,38	51,40 ± 1,70	48,16 ± 5,66
RF-GOL_TLO_5_10-BZV	19	TIK	5-10	614 ± 27	0,72 ± 0,05	9,29 ± 0,62	60,91 ± 6,76	36,81 ± 1,40	48,86 ± 1,38	52,03 ± 1,71	44,74 ± 5,06
RF-GOL_TLO_10_20-BZV	19	TIK	10-20	625 ± 27	0,72 ± 0,05	8,31 ± 0,56	48,29 ± 5,53	38,31 ± 1,65	49,44 ± 1,42	54,31 ± 1,78	48,23 ± 5,69
RF-GOL_TLO_20_50-BZV	19	TIK	20-50	649 ± 28	0,72 ± 0,05		50,50 ± 5,83	18,20 ± 0,75	52,90 ± 1,48	56,56 ± 1,86	47,07 ± 5,64
RF-PIR_TLO_0_5-BZV	19	PIR	0-5	611 ± 26		9,92 ± 0,66	60,63 ± 6,85	41,15 ± 2,18	48,72 ± 1,40	54,11 ± 1,77	45,02 ± 5,54
RF-PIR_TLO_5_10-BZV	19	PIR	5-10	622 ± 27		10,56 ± 0,70	67,12 ± 7,55	42,54 ± 1,74	48,90 ± 1,40	52,15 ± 1,73	50,50 ± 5,48
RF-PIR_TLO_10_20-BZV	19	PIR	10-20	599 ± 26		10,06 ± 0,67	55,80 ± 6,36	40,97 ± 1,80	48,86 ± 1,39	53,01 ± 1,78	46,47 ± 5,65
RF-PIR_TLO_20_50-BZV	19	PIR	20-50	699 ± 30		0,74 ± 0,13	51,27 ± 6,10	14,99 ± 0,76	49,22 ± 1,39	56,90 ± 1,83	42,10 ± 5,20
RF-BAT_TLO_0_5-BZV	19	BAT	0-5	614 ± 27	0,95 ± 0,06	9,86 ± 0,65	61,13 ± 10,18	35,70 ± 1,29	51,49 ± 2,33	57,26 ± 1,95	
RF-BAT_TLO_5_10-BZV	19	BAT	5-10	594 ± 26	0,95 ± 0,06	9,64 ± 0,64	60,85 ± 10,15	38,11 ± 1,60	49,49 ± 2,26	53,62 ± 1,87	
RF-BAT_TLO_10_20-BZV	19	BAT	10-20	586 ± 25	0,95 ± 0,06	7,59 ± 0,52	58,04 ± 7,64	27,70 ± 1,02	49,72 ± 2,24	53,83 ± 1,93	
RF-BAT_TLO_20_50-BZV	19	BAT	20-50	715 ± 31	0,95 ± 0,06		41,14 ± 7,85	25,23 ± 1,14	48,95 ± 2,23	60,32 ± 2,05	
RF-MRK_TLO_0_5-IGRC	20	MRK	0-5	466 ± 20	0,48 ± 0,04	5,96 ± 0,38	43,07 ± 4,68	41,01 ± 1,76	40,72 ± 1,00	42,97 ± 1,22	38,00 ± 3,87
RF-MRK_TLO_5_10-IGRC	20	MRK	5-10	476 ± 21	0,48 ± 0,04	5,48 ± 0,40	43,45 ± 5,24	41,85 ± 1,97	40,36 ± 1,20	41,26 ± 1,43	37,25 ± 4,50
RF-MRK_TLO_10_20-IGRC	20	MRK	10-20	475 ± 21	0,48 ± 0,04	5,66 ± 0,41	40,63 ± 4,84	36,39 ± 1,89	41,35 ± 1,23	44,18 ± 1,49	37,40 ± 4,51
RF-MRK_TLO_20_50-IGRC	20	MRK	20-50	508 ± 22	0,48 ± 0,04	4,17 ± 0,32	36,64 ± 4,64	32,95 ± 1,45	42,64 ± 1,26	45,13 ± 1,54	32,95 ± 4,19
RF-PBT_0_5-IGRC	20	PAP, BLI, KRM	0-5	473 ± 20	0,28 ± 0,05	7,87 ± 0,51	41,88 ± 4,50	23,46 ± 1,10	39,91 ± 1,07	40,93 ± 0,97	30,33 ± 3,48
RF-PBT_5_10-IGRC	20	PAP, BLI, KRM	5-10	465 ± 20	0,28 ± 0,05	8,20 ± 0,55	45,37 ± 4,95	19,06 ± 1,03	39,83 ± 1,13	41,33 ± 1,41	32,61 ± 3,86
RF-PBT_10_20-IGRC	20	PAP, BLI, KRM	10-20	472 ± 21	0,28 ± 0,05	8,80 ± 0,58	46,24 ± 5,03	18,34 ± 0,84	40,64 ± 1,15	42,63 ± 1,43	31,98 ± 3,78
RF-PBT_20_50-IGRC	20	PAP, BLI, KRM	20-50	428 ± 19	0,28 ± 0,05	2,86 ± 0,23	42,15 ± 4,68	11,20 ± 0,57	40,38 ± 1,12	41,97 ± 1,38	31,20 ± 3,68
RF-TIK_TLO_0_5-IGRC	20	TIK	0-5	462 ± 20	0,19 ± 0,05	6,99 ± 0,47	42,15 ± 4,64	21,90 ± 0,94	40,16 ± 1,15	43,34 ± 1,02	33,00 ± 3,91
RF-TIK_TLO_5_10-IGRC	20	TIK	5-10	461 ± 20	0,19 ± 0,05	7,00 ± 0,47	44,11 ± 4,85	21,87 ± 1,03	41,80 ± 1,16	42,12 ± 1,41	34,04 ± 3,96
RF-TIK_TLO_10_20-IGRC	20	TIK	10-20	456 ± 20	0,19 ± 0,05	9,73 ± 0,63	43,59 ± 4,76	26,87 ± 1,40	41,22 ± 1,15	40,10 ± 1,34	32,21 ± 3,63

Tablica D3. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u tlima Hrvatske (nastavak).

Oznaka uzorka	Lokacija	Uzgajana kultura	Dubina/cm	Specifična aktivnost, suha tvar / Bq kg ⁻¹							
				⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²³² Th	²³⁸ U
RF-TIK_TLO_20_50-IGRC	20	TIK	20-50	468 ± 20	0,19 ± 0,05	4,77 ± 0,34	37,56 ± 4,22	19,49 ± 0,86	39,74 ± 1,12	43,00 ± 1,42	32,68 ± 3,63
RF-PAP_TLO_0_5-NOV	21	PAP	0-5	504 ± 22	2,04 ± 0,07	15,80 ± 0,99	40,06 ± 5,69	23,57 ± 1,32	39,35 ± 1,37	41,29 ± 1,02	38,63 ± 4,96
RF-PAP_TLO_5_10-NOV	21	PAP	5-10	500 ± 22	2,04 ± 0,07	15,03 ± 0,95	47,45 ± 5,16	20,14 ± 0,95	39,16 ± 1,24	40,21 ± 0,99	40,53 ± 4,35
RF-PAP_TLO_10_20-NOV	21	PAP	10-20	505 ± 22	2,04 ± 0,07	12,98 ± 0,83	42,45 ± 4,71	16,36 ± 0,82	38,79 ± 1,25	42,25 ± 1,04	39,10 ± 4,24
RF-PAP_TLO_20_50-NOV	21	PAP	20-50	568 ± 24	2,04 ± 0,07	8,79 ± 0,58	42,12 ± 4,65	14,13 ± 0,73	40,45 ± 1,30	43,92 ± 1,47	42,23 ± 4,77
RF-KRM_TLO_0_5-NOV	21	KRM	0-5	522 ± 23	2,42 ± 0,07	20,88 ± 1,31	59,40 ± 7,85	26,90 ± 1,35	45,75 ± 2,17	45,89 ± 1,74	
RF-KRM_TLO_5_10-NOV	21	KRM	5-10	527 ± 23	2,42 ± 0,07	21,05 ± 1,32	61,77 ± 8,06	27,75 ± 1,22	47,81 ± 2,20	45,40 ± 1,70	
RF-KRM_TLO_10_20-NOV	21	KRM	10-20	501 ± 22	2,42 ± 0,07	16,66 ± 1,06	59,87 ± 8,15	27,54 ± 1,32	47,18 ± 2,20	44,12 ± 1,65	
RF-KRM_TLO_20_50-NOV	21	KRM	20-50	536 ± 23	2,42 ± 0,07	9,64 ± 0,64	53,15 ± 7,30	21,41 ± 1,03	48,56 ± 2,23	46,44 ± 1,75	
RF-TLO_0_5-ZAD	22	BAT	0-5	443 ± 20	1,53 ± 0,07	9,62 ± 0,64	67,82 ± 7,61	55,02 ± 2,31	71,77 ± 1,88	42,03 ± 1,44	22,90 ± 3,52
RF-TLO_5_10-ZAD	22	BAT	5-10	445 ± 20	1,53 ± 0,07	9,23 ± 0,62	72,17 ± 8,05	54,53 ± 2,24	71,20 ± 1,88	42,04 ± 1,46	27,93 ± 4,06
RF-TLO_10_20-ZAD	22	BAT	10-20	426 ± 19	1,53 ± 0,07	9,09 ± 0,61	53,64 ± 6,06	69,08 ± 3,18	69,65 ± 1,85	41,49 ± 1,46	22,54 ± 3,48
RF-TLO_20_50-ZAD	22	BAT	20-50	267 ± 12	1,53 ± 0,07	2,14 ± 0,20	24,81 ± 3,39	27,28 ± 2,07	38,67 ± 1,14	26,87 ± 1,00	18,74 ± 3,11
RF-KRM_TLO_0_5-PLI	23	KRM, TIKV	0-5	592 ± 26	1,61 ± 0,07	21,12 ± 1,33	84,04 ± 9,08	44,34 ± 1,46	71,10 ± 1,91	69,38 ± 2,19	69,96 ± 7,46
RF-KRM_TLO_5_10-PLI	23	KRM, TIKV	5-10	608 ± 26	1,61 ± 0,07	21,86 ± 1,37	93,65 ± 10,08	31,11 ± 1,03	74,16 ± 1,96	69,77 ± 2,21	65,52 ± 7,56
RF-KRM_TLO_10_20-PLI	23	KRM, TIKV	10-20	612 ± 27	1,61 ± 0,07	21,23 ± 1,34	84,64 ± 9,16	32,69 ± 1,08	73,63 ± 1,95	67,77 ± 2,17	75,18 ± 7,78
RF-KRM_TLO_20_50-PLI	23	KRM, TIKV	20-50	638 ± 28	1,61 ± 0,07	5,83 ± 0,43	70,52 ± 7,86	23,38 ± 0,98	72,59 ± 1,93	73,55 ± 2,31	79,89 ± 8,15
RF-KRM_TLO_0_5-OG	24	KRM	0-5	522 ± 23	2,62 ± 0,08	21,81 ± 1,37	106,88 ± 11,30	46,86 ± 2,24	79,98 ± 2,10	60,73 ± 2,00	81,64 ± 7,94
RF-KRM_TLO_5_10-OG	24	KRM	5-10	451 ± 20	2,62 ± 0,08	19,41 ± 1,22	90,04 ± 9,58	68,08 ± 3,08	68,59 ± 1,80	54,40 ± 1,78	76,82 ± 7,22
RF-KRM_TLO_10_20-OG	24	KRM	10-20	404 ± 18	2,62 ± 0,08	10,19 ± 0,67	66,51 ± 7,41	56,89 ± 2,54	66,35 ± 1,77	51,04 ± 1,70	62,92 ± 6,41
RF-KRM_TLO_20_50-OG	24	KRM	20-50	407 ± 18	2,62 ± 0,08	1,74 ± 0,18	54,71 ± 6,14	45,33 ± 1,87	59,69 ± 1,60	53,35 ± 1,73	59,01 ± 5,97
RF-KRU_TLO_0_5-BUZ	25	KRU	0-5	405 ± 18	1,14 ± 0,06	12,87 ± 0,82	50,26 ± 5,38	28,50 ± 1,28	44,22 ± 1,19	49,57 ± 1,59	41,60 ± 4,40
RF-KRU_TLO_5_10-BUZ	25	KRU	5-10	415 ± 18	1,14 ± 0,06	12,96 ± 0,82	46,81 ± 5,08	30,81 ± 1,39	45,49 ± 1,24	51,90 ± 1,64	45,11 ± 4,67
RF-KRU_TLO_10_20-BUZ	25	KRU	10-20	406 ± 18	1,14 ± 0,06	15,30 ± 0,96	56,93 ± 6,12	18,10 ± 0,82	44,27 ± 1,20	50,12 ± 1,59	41,18 ± 4,17

Tablica D3. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u tlima Hrvatske (nastavak).

Oznaka uzorka	Lokacija	Uzgajana kultura	Dubina/cm	Specifična aktivnost, suha tvar / Bq kg ⁻¹							
				⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²³² Th	²³⁸ U
RF-KRU_TLO_20_50-BUZ	25	KRU	20-50	397 ± 17	1,14 ± 0,06	12,13 ± 0,77	42,23 ± 4,61	18,22 ± 0,85	44,01 ± 1,18	51,95 ± 1,61	40,88 ± 4,34
RF-KAKI_TLO-0_5-PAZ	26	KAKI	0-5	479 ± 21	2,02 ± 0,07	18,33 ± 1,16	134,27 ± 13,99	102,34 ± 3,89	145,06 ± 3,38	94,66 ± 2,82	86,49 ± 9,57
RF-KAKI_TLO-5_10-PAZ	26	KAKI	5-10	442 ± 19	2,02 ± 0,07	19,15 ± 1,21	104,53 ± 11,08	80,71 ± 3,22	140,60 ± 3,27	92,81 ± 2,83	70,46 ± 7,32
RF-KAKI_TLO-10_20-PAZ	26	KAKI	10-20	451 ± 20	2,02 ± 0,07	16,57 ± 1,05	102,69 ± 10,92	69,60 ± 3,13	146,64 ± 3,41	99,63 ± 2,96	83,27 ± 7,92
RF-KAKI_TLO-20_50-PAZ	26	KAKI	20-50	449 ± 20	2,02 ± 0,07	2,79 ± 0,25	79,77 ± 8,66	73,71 ± 2,95	129,74 ± 3,06	104,96 ± 3,09	73,77 ± 7,39
RF-BUT_TLO-0_5-PAZ	26	TIK	0-5	444 ± 19	1,12 ± 0,06	14,17 ± 0,90	113,40 ± 11,71	114,03 ± 6,13	162,65 ± 3,67	91,72 ± 2,71	74,75 ± 8,11
RF-BUT_TLO-5_10-PAZ	26	TIK	5-10	453 ± 20	1,12 ± 0,06	14,15 ± 0,90	113,58 ± 11,74	93,09 ± 5,26	165,73 ± 3,73	90,31 ± 2,72	68,14 ± 6,77
RF-BUT_TLO-10_20-PAZ	26	TIK	10-20	467 ± 20	1,12 ± 0,06	10,70 ± 0,70	117,15 ± 12,10	80,16 ± 4,42	174,19 ± 3,91	96,09 ± 2,84	67,19 ± 7,36
RF-BUT_TLO-20_50-PAZ	26	TIK	20-50	445 ± 19	1,12 ± 0,06	3,07 ± 0,25	127,96 ± 13,18	118,95 ± 6,33	213,67 ± 4,73	95,87 ± 2,86	65,84 ± 7,28
RF-KBC_TLO_0_5-POR	27	KAR, BRO, CIK	0-5	412 ± 18	1,21 ± 0,06	6,78 ± 0,48	62,48 ± 6,96	39,74 ± 1,49	63,34 ± 1,72	100,59 ± 2,96	55,24 ± 6,50
RF-KBC_TLO_5_10-POR	27	KAR, BRO, CIK	5-10	430 ± 19	1,21 ± 0,06	6,13 ± 0,44	67,43 ± 7,44	41,05 ± 1,49	61,54 ± 1,67	98,80 ± 2,91	59,31 ± 6,41
RF-KBC_TLO_10_20-POR	27	KAR, BRO, CIK	10-20	434 ± 19	1,21 ± 0,06	5,02 ± 0,37	55,72 ± 6,34	33,58 ± 1,45	63,72 ± 1,71	101,31 ± 2,99	53,74 ± 5,81
RF-KBC_TLO_20_50-POR	27	KAR, BRO, CIK	20-50	438 ± 19	1,21 ± 0,06	2,13 ± 0,22	63,85 ± 7,10	30,19 ± 1,35	64,47 ± 1,73	97,69 ± 2,91	63,12 ± 6,81
RF-KRM_TLO_0_5-POR	27	KRM	0-5	432 ± 19	0,91 ± 0,06	6,42 ± 0,44	71,96 ± 7,58	36,34 ± 1,52	72,12 ± 1,80	95,01 ± 2,79	63,69 ± 6,25
RF-KRM_TLO_5_10-POR	27	KRM	5-10	415 ± 18	0,91 ± 0,06	6,68 ± 0,45	71,51 ± 7,54	37,66 ± 1,68	69,36 ± 1,74	96,92 ± 2,79	71,63 ± 6,67
RF-KRM_TLO_10_20-POR	27	KRM	10-20	427 ± 19	0,91 ± 0,06	2,11 ± 0,19	61,86 ± 6,59	32,99 ± 1,33	70,58 ± 1,76	96,97 ± 2,80	59,58 ± 5,96
RF-KRM_TLO_20_50-POR	27	KRM	20-50	429 ± 19	0,91 ± 0,06	0,86 ± 0,12	61,65 ± 6,57	33,21 ± 1,32	70,49 ± 1,77	99,37 ± 2,87	68,41 ± 6,48

8.2.2. Tablica D4. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u gomoljima.

Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	Specifična aktivnost Bq kg ⁻¹ – Gomolji: jestivi dio, svježa tvar							
			⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-KRM-DALJ	1	KRM	148,00 ± 6,30	0,019 ± 0,006						
RF-KRM-ROS	8	KRM	138,27 ± 5,96	<0,017	0,04 ± 0,02			0,14 ± 0,05		
RF-KRM-POD	12	KRM	120,09 ± 5,09	0,016 ± 0,004	0,05 ± 0,02			0,10 ± 0,03		0,06 ± 0,03
RF-KRM-IGRC	20	KRM	99,05 ± 4,20	0,009 ± 0,002	0,04 ± 0,01		0,023 ± 0,001		0,19 ± 0,07	
RF-KRM-NOV	21	KRM	119,05 ± 5,01	0,021 ± 0,004	0,08 ± 0,02		0,025 ± 0,004			
RF-KRM-PLI	23	KRM	133,66 ± 5,69	0,064 ± 0,005	0,08 ± 0,01		0,021 ± 0,004	0,26 ± 0,02		
RF-KRM-OG	24	KRM	162,27 ± 6,83	0,016 ± 0,002			0,064 ± 0,007	0,06 ± 0,03	0,15 ± 0,05	
RF-KRM-POR	27	KRM	163,88 ± 6,93	0,013 ± 0,002			0,014 ± 0,003	0,14 ± 0,03		
RF-BAT-DALJ	1	BAT	135,19 ± 5,70	0,056 ± 0,004				0,10 ± 0,04	0,20 ± 0,12	
RF-BAT_LJUB-BJE	9	BAT 1	154,16 ± 6,55	0,024 ± 0,003						
RF-BAT_NAR-BJE	9	BAT 2	149,59 ± 6,32	0,021 ± 0,004				0,19 ± 0,08		
RF-BAT-BZV	19	BAT	56,84 ± 2,49	0,102 ± 0,003	0,04 ± 0,01		0,074 ± 0,004	0,09 ± 0,02		
RF-BAT_LJUB-ZAD	22	BAT 1	66,97 ± 2,95	0,057 ± 0,003	0,06 ± 0,02			0,13 ± 0,03		
RF-BAT_ZUT-ZAD	22	BAT 2	109,66 ± 4,62	0,086 ± 0,006	0,06 ± 0,02				0,15 ± 0,09	

8.2.3. Tablica D5. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u korama gomolja.

Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	Specifična aktivnost Bq kg ⁻¹ – Gomolji: kore, svježa tvar							
			⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-KRM_KOR-DALJ	1	KRM	160,45 ± 6,71	0,079 ± 0,010				0,22 ± 0,02	0,26 ± 0,04	0,17 ± 0,03
RF-KRM_KOR-ROS	8	KRM	180,49 ± 7,58	0,133 ± 0,011	0,11 ± 0,02			0,20 ± 0,02	0,26 ± 0,09	0,10 ± 0,06
RF-KRM_KOR-POD	12	KRM	165,69 ± 6,97	<0,035	0,09 ± 0,02	0,57 ± 0,25		0,34 ± 0,03	0,29 ± 0,10	0,10 ± 0,06
RF-KRM_KOR-IGRC	20	KRM	152,87 ± 6,44	0,023 ± 0,003	0,05 ± 0,01		0,055 ± 0,003	0,10 ± 0,03		0,05 ± 0,02
RF-KRM_KOR-NOV	21	KRM	151,89 ± 6,37	0,078 ± 0,004	0,11 ± 0,01		0,050 ± 0,003	0,10 ± 0,02		
RF-KRM_KOR-PLI	23	KRM	190,75 ± 8,02	0,096 ± 0,003	0,10 ± 0,02		0,138 ± 0,014	0,16 ± 0,02		0,06 ± 0,02
RF-KRM_KOR-OG	24	KRM	170,63 ± 7,17	0,037 ± 0,004	0,04 ± 0,01		0,249 ± 0,020	0,10 ± 0,02		0,07 ± 0,02
RF-KRM_KOR-POR	27	KRM	196,06 ± 8,23	0,022 ± 0,002			0,052 ± 0,008	0,13 ± 0,02		
RF-BAT_KOR-DALJ	1	BAT	251,09 ± 10,51	0,225 ± 0,010				0,27 ± 0,02	0,27 ± 0,06	0,20 ± 0,05
RF-BAT_LJUB_KOR-BJE	9	BAT 1	224,16 ± 9,46	0,068 ± 0,008	0,08 ± 0,03			0,43 ± 0,05	0,51 ± 0,11	0,21 ± 0,07
RF-BAT_NAR_KOR-BJE	9	BAT 2	234,75 ± 9,87	0,071 ± 0,005	0,10 ± 0,03	1,33 ± 0,37		0,97 ± 0,06	1,25 ± 0,13	0,64 ± 0,11
RF-BAT_NAR_KOR-BZV	19	BAT	148,70 ± 6,27	0,481 ± 0,010	0,09 ± 0,01		0,228 ± 0,017	0,19 ± 0,02	0,26 ± 0,06	
RF-BAT_LJUB_KOR-ZAD	22	BAT 1	32,91 ± 7,44		0,16 ± 0,02	1,26 ± 0,23		0,77 ± 0,04	0,63 ± 0,08	0,12 ± 0,11
RF-BAT_ZUT_KOR-ZAD	22	BAT 2	216,32 ± 9,07		0,10 ± 0,02			0,68 ± 0,05	0,38 ± 0,09	0,34 ± 0,05

8.2.4. Tablica D6. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u korijenastom povrću.

Specifična aktivnost Bq kg ⁻¹ – Korijenasto povrće: jestivi dio, svježa tvar										
Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-CIK-ROS	8	CIK	145 ± 6	0,082 ± 0,006	0,04 ± 0,02			0,13 ± 0,02		
RF-CIK-SPL	17	CIK	98 ± 4					0,09 ± 0,02		
RF-CIK-KRI	18	CIK	109 ± 5	0,192 ± 0,008	0,04 ± 0,01		0,058 ± 0,003	0,13 ± 0,01	0,13 ± 0,02	
RF-CIK-POR	27	CIK	107 ± 4	0,108 ± 0,004			0,022 ± 0,003	0,07 ± 0,01	0,15 ± 0,02	
RF-MRK-VS	10	MRK	116 ± 5	0,140 ± 0,005	0,04 ± 0,01			0,18 ± 0,01	0,35 ± 0,03	0,09 ± 0,02
RF-MRK-SPL	17	MRK	130 ± 5	0,051 ± 0,004				0,10 ± 0,02	0,15 ± 0,05	0,04 ± 0,02
RF-MRK_KOM-IGRC	20	MRK	55 ± 2	0,054 ± 0,004	0,01 ± 0,00		0,032 ± 0,003	0,14 ± 0,01	0,20 ± 0,04	
Specifična aktivnost Bq kg ⁻¹ – Korijenasto povrće: kore, svježa tvar										
Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-CIK_KOR-ROS	8	CIK	170 ± 7	0,250 ± 0,010	0,21 ± 0,03	1,77 ± 0,35		1,12 ± 0,06	1,13 ± 0,08	0,82 ± 0,09
RF-CIK_KOR-KRI	18	CIK	149 ± 6		0,09 ± 0,01	0,43 ± 0,11	0,344 ± 0,014	0,24 ± 0,02	0,25 ± 0,03	0,11 ± 0,02
RF-CIK_KOR-POR	27	CIK	200 ± 8			0,49 ± 0,12	1,168 ± 0,050	0,17 ± 0,01	0,36 ± 0,03	0,13 ± 0,02

8.2.5. Tablica D7. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u lisnatom povrću.

Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	Specifična aktivnost Bq kg ⁻¹ – Lisnato povrće: jestivi dio, svježa tvar							
			⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-BRO-POR	27	BRO	130 ± 5	0,058 ± 0,003	0,02 ± 0,01	0,51 ± 0,11	0,222 ± 0,011	0,06 ± 0,01		
RF-KUP-VLA	2	KUP	62 ± 3	0,046 ± 0,004						0,03 ± 0,01
RF-KAR-VLA	2	KAR	85 ± 4	0,025 ± 0,005						
RF-KAR-POR	27	KAR	91 ± 4	0,058 ± 0,003	0,013 ± 0,004		0,140 ± 0,008			
RF-BLI-VS	10	BLI	173 ± 7	0,112 ± 0,005		2,17 ± 0,36		0,09 ± 0,03	0,21 ± 0,07	
RF-BLI-IGRC	20	BLI	96 ± 4	0,235 ± 0,005	0,26 ± 0,02	1,05 ± 0,17	0,835 ± 0,045	0,33 ± 0,02	0,41 ± 0,03	
RF-KELJ-SPL	17	KELJ	144 ± 6	0,161 ± 0,007		0,41 ± 0,20		0,08 ± 0,03		
RF-KELJ-NED	15	KELJ	177 ± 7	0,465 ± 0,009	0,25 ± 0,02	0,37 ± 0,12	0,251 ± 0,013	0,20 ± 0,02	0,30 ± 0,03	0,06 ± 0,02
RF-SPI-SPL	17	SPI	193 ± 8	0,101 ± 0,005		0,45 ± 0,09		0,09 ± 0,01		0,09 ± 0,02
Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	Specifična aktivnost Bq kg ⁻¹ – Lisnato povrće: nejestivi dio, svježa tvar							
			⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-KAR_ZEL-VLA	2	KAR	79 ± 3		0,01 ± 0,00	0,16 ± 0,06	0 ± 0	0,04 ± 0,01	0,25 ± 0,08	

8.2.6. Tablica D8. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u plodovitom povrću.

Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	Specifična aktivnost Bq kg ⁻¹ – Plodovito povrće: jestivi dio, svježa tvar							
			⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-KRA-DALJ	1	KRA	46 ± 2	0,028 ± 0,004	0,02 ± 0,00			0,03 ± 0,01		
RF-PATL-SPL	17	PATL	71 ± 3	0,021 ± 0,006	0,03 ± 0,01				0,06 ± 0,04	
RF-PAP-VLA	2	PAP	64 ± 3	<0,015	0,01 ± 0,00			0,03 ± 0,01		
RF-PAP-NED	15	PAP	60 ± 3	0,010 ± 0,003	0,03 ± 0,01		0,023 ± 0,001			
RF-PAP-IGRC	20	PAP	46 ± 2	<0,009	0,01 ± 0,00		0,014 ± 0,002			
RF-PAP-NOV	21	PAP	55 ± 2	0,011 ± 0,002	0,04 ± 0,01		0,017 ± 0,001			
RF-BUT-BJE	9	TIK 1	147 ± 6	0,017 ± 0,005						
RF-KAB-BJE	9	TIK 2	191 ± 8	<0,014				0,18 ± 0,02		
RF-PRIN-BJE	9	TIK 3	120 ± 5	<0,013						
RF-BUT-SOL	16	TIK 1	80 ± 3	0,036 ± 0,004	0,08 ± 0,01					
RF-HOK-SOL	16	TIK 2	123 ± 5	0,060 ± 0,005	0,44 ± 0,03			0,09 ± 0,03		
RF-KAB-SOL	16	TIK 3	131 ± 6	0,039 ± 0,005	0,37 ± 0,03	0,32 ± 0,13				
RF-TUR-KRI	18	TIK	49 ± 2	0,079 ± 0,004	0,02 ± 0,00		0,019 ± 0,002	0,02 ± 0,00		
RF-GOL-BZV	19	TIK	113 ± 5	0,128 ± 0,004			0,021 ± 0,001	0,08 ± 0,01	0,10 ± 0,02	0,02 ± 0,01
RF-TIK-IGRC	20	TIK	47 ± 2				0,009 ± 0,001			
RF-BUT-PAZ	26	TIK	61 ± 3	0,046 ± 0,003	0,03 ± 0,00		0,039 ± 0,002	0,05 ± 0,01	0,09 ± 0,03	
RF-TIKV-DALJ	1	TIKV	48 ± 2	0,027 ± 0,005						
RF-TIKV-NED	15	TIKV	54 ± 2	0,039 ± 0,003	0,20 ± 0,01		0,017 ± 0,002		0,05 ± 0,02	
RF-TIKV-PLI	23	TIKV	59 ± 2		0,08 ± 0,01		0,026 ± 0,003	0,04 ± 0,01	0,06 ± 0,02	

8.2.7. Tablica D9. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u korama plodovitog povrća.

Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	Specifična aktivnost Bq kg ⁻¹ – Plodovito povrće: kore, svježa tvar							
			⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-KRA_KOR-DALJ	1	KRA	91 ± 4		0,03 ± 0,01					
RF-PATL_KOR-SPL	17	PATL	124 ± 5	0,028 ± 0,008						0,08 ± 0,04
RF-PRIN_KOR-BJE	9	TIK	136 ± 6		0,03 ± 0,01	0,42 ± 0,13		0,12 ± 0,02	0,18 ± 0,06	
RF-TUR_KOR-KRI	18	TIK	38 ± 2	0,058 ± 0,003	0,05 ± 0,01	0,22 ± 0,05	0,119 ± 0,007	0,05 ± 0,01	0,14 ± 0,03	
RF-GOL_KOR-BZV	19	TIK	187 ± 8	0,237 ± 0,008			0,170 ± 0,012	0,20 ± 0,02	0,37 ± 0,06	
RF-TIK_KOR-IGRC	20	TIK	80 ± 3		0,03 ± 0,01		0,039 ± 0,008	0,08 ± 0,01		
RF-BUT_KOR-PAZ	26	TIK	113 ± 5	0,194 ± 0,006	0,05 ± 0,01	0,43 ± 0,10	1,005 ± 0,046	0,16 ± 0,01		
RF-KAB_KOR-BJE	9	TIK 1	125 ± 5	0,047 ± 0,010		0,45 ± 0,18		0,10 ± 0,03		0,15 ± 0,04
RF-BUT_KOR-SOL	16	TIK 1	146 ± 6		0,24 ± 0,02	0,52 ± 0,15				
RF-BUT_KOR-BJE	9	TIK 2	231 ± 10			0,51 ± 0,24			0,28 ± 0,08	
RF-HOK_KOR-SOL	16	TIK 2	90 ± 4	0,134 ± 0,013	0,43 ± 0,04			0,13 ± 0,05		
RF-KAB_KOR-SOL	16	TIK 3	93 ± 4	0,081 ± 0,008	0,30 ± 0,03			0,14 ± 0,05		
RF-TIKV_KOR-DALJ	1	TIKV	117 ± 5							
RF-TIKV_KOR-NED	15	TIKV	101 ± 4	0,098 ± 0,008	0,40 ± 0,03		0,025 ± 0,005			0,02 ± 0,01
RF-TIKV_KOR-PLI	23	TIKV	72 ± 3		0,15 ± 0,01	0,52 ± 0,12	0,041 ± 0,003	0,13 ± 0,02	0,20 ± 0,05	

8.2.8. Tablica D10. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u voću.

			Specifična aktivnost Bq kg ⁻¹ – Voće: jestivi dio, svježa tvar							
Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-JAB-RUZ	4	JAB	43 ± 2	<0,007	0,02 ± 0,01		0,080 ± 0,004	0,08 ± 0,02		
RF-JAB-SED	6	JAB	62 ± 3	<0,016						
RF-JAB-ROS	8	JAB	53 ± 2	0,028 ± 0,009						
RF-JAB-KOM	11	JAB	45 ± 2	0,021 ± 0,004				0,07 ± 0,03		
RF-JAB-ILI	13	JAB	50 ± 2	0,017 ± 0,005				0,04 ± 0,01		
RF-JAB-PET	14	JAB	33 ± 1	<0,011	0,02 ± 0,01		0,025 ± 0,001	0,09 ± 0,01		
RF-KAKI-PAZ	26	KAKI	61 ± 3	0,010 ± 0,002			0,052 ± 0,003	0,13 ± 0,02		
RF-MAN-KOM	11	MAN	50 ± 2	0,040 ± 0,005				0,03 ± 0,02	0,24 ± 0,07	
RF-MAN2-KOM	11	MAN	53 ± 2	0,035 ± 0,004			0,015 ± 0,001	0,03 ± 0,01		
RF-KRU-RUZ	4	KRU	40 ± 2	<0,010			0,071 ± 0,004	0,05 ± 0,02		0,03 ± 0,01
RF-KRU-BUZ	25	KRU	35 ± 2	<0,005	0,02 ± 0,01		0,065 ± 0,007	0,08 ± 0,01	0,16 ± 0,06	0,25 ± 0,11
			Specifična aktivnost Bq kg ⁻¹ – Voće: kore, svježa tvar							
Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-JAB_KOR-RUZ	4	JAB	37 ± 2	<0,036			0,212 ± 0,011			
RF-JAB_KOR-SED	6	JAB	69 ± 3	0,029 ± 0,009						
RF-JAB_KOR-ROS	8	JAB	50 ± 2	0,029 ± 0,007	0,07 ± 0,02	0,79 ± 0,23		0,10 ± 0,04		
RF-JAB_KOR-KOM	11	JAB	58 ± 2		0,05 ± 0,01	0,71 ± 0,15				
RF-JAB_KOR-ILI	13	JAB	77 ± 3			0,32 ± 0,19		0,14 ± 0,03		
RF-JAB_KOR-PET	14	JAB	37 ± 2	<0,007		0,69 ± 0,15	0,278 ± 0,016			
RF-KAKI_KOR-PAZ	26	KAKI	67 ± 3	0,025 ± 0,002		0,33 ± 0,14	0,427 ± 0,027	0,32 ± 0,03		0,07 ± 0,02
RF-MAN_KOR-KOM	11	MAN	140 ± 6	0,218 ± 0,005	0,14 ± 0,04	1,13 ± 0,54		0,39 ± 0,14	0,74 ± 0,26	
RF-MAN2_KOR-KOM	11	MAN	100 ± 4	0,328 ± 0,006		0,89 ± 0,22	0,117 ± 0,006	0,20 ± 0,02		0,10 ± 0,03
RF-KRU_KOR-RUZ	4	KRU	56 ± 2	0,027 ± 0,004			0,351 ± 0,018	0,08 ± 0,02		
RF-KRU_KOR-BUZ	25	KRU	43 ± 2	<0,006		1,09 ± 0,20	3,686 ± 0,162	0,10 ± 0,02	0,40 ± 0,13	0,31 ± 0,14

8.2.9. Tablica D11. Specifične aktivnosti i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida u orašastim plodovima, žitaricama i bilju.

Specifična aktivnost Bq kg ⁻¹ – Orašasti plodovi, svježa tvar										
Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-LJES-SED	6	LJES	213 ± 9	0,360 ± 0,007				0,30 ± 0,14		
RF-ORAH-PAT	3	ORAH	128 ± 6	0,152 ± 0,007			0,138 ± 0,007	0,41 ± 0,06		
Specifična aktivnost Bq kg ⁻¹ - Žitarice, svježa tvar										
Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-PIR-BZV	19	PIR	115 ± 5					1,43 ± 0,10	0,99 ± 0,28	
RF-PSE-VS	10	PSE	119 ± 6					0,50 ± 0,15		
Specifična aktivnost Bq kg ⁻¹ - Bilje, svježa tvar										
Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-KAM-VS	10	KAM	926 ± 40	1,077 ± 0,045	0,95 ± 0,17	17,22 ± 2,62		6,54 ± 0,37	7,58 ± 0,66	5,76 ± 0,61
RF-KAM2-VS	10	KAM	937 ± 40	0,498 ± 0,021				2,31 ± 0,21		
RF-SMI-PELJ	5	SMI	468 ± 21	0,720 ± 0,046		19,50 ± 2,90			2,02 ± 0,52	
RF-RUZ-PELJ	7	RUZ	391 ± 17	2,752 ± 0,058		49,44 ± 6,78		2,79 ± 0,21		
RF-KAD-PELJ	5	KAD	545 ± 24	3,452 ± 0,063		27,09 ± 3,83		7,09 ± 0,40		0,97 ± 0,36

8.3. Faktori prijenosa pojedinih uzoraka poljoprivrednih kultura

8.3.1. Tablica D12. Faktori prijenosa i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida iz tla u gomolje.

Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	(Faktor prijenosa)×10 ² – Gomolji: jestivi dio							
			⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-KRM-DALJ	1	KRM	116 ± 6	7,6 ± 2,3						
RF-KRM-ROS	8	KRM	129 ± 6		2,2 ± 0,8			1,6 ± 0,6		
RF-KRM-POD	12	KRM	497 ± 26	41,7 ± 14,8	3,2 ± 1,1			0,8 ± 0,3		1,1 ± 0,6
RF-KRM-IGRC	20	KRM	106 ± 5	15,9 ± 4,6	2,2 ± 0,6		0,57 ± 0,03		2,2 ± 0,8	
RF-KRM-NOV	21	KRM	111 ± 5	4,3 ± 0,8	1,9 ± 0,4		0,45 ± 0,07			
RF-KRM-PLI	23	KRM	83 ± 4	15,0 ± 1,1	1,3 ± 0,3		0,22 ± 0,04	1,4 ± 0,1		
RF-KRM-OG	24	KRM	165 ± 8	2,8 ± 0,2			0,52 ± 0,06	0,4 ± 0,2	1,3 ± 0,4	
RF-KRM-POR	27	KRM	142 ± 7	5,4 ± 0,8			0,14 ± 0,03	0,7 ± 0,2		
RF-BAT-DALJ	1	BAT	105 ± 5	19,4 ± 1,5				1,0 ± 0,4	1,8 ± 1,1	
RF-BAT_LJUB-BJE	9	BAT 1	96 ± 5	49,2 ± 12,7						
RF-BAT_NAR-BJE	9	BAT 2	136 ± 7	65,1 ± 18,3				2,4 ± 1,0		
RF-BAT-BZV	19	BAT	43 ± 2	48,3 ± 3,5	1,9 ± 0,4		0,99 ± 0,05	0,8 ± 0,2		
RF-BAT_LJUB-ZAD	22	BAT 1	69 ± 4	16,9 ± 1,1	2,8 ± 1,0			0,8 ± 0,2		
RF-BAT_ZUT-ZAD	22	BAT 2	97 ± 5	21,6 ± 1,8	2,5 ± 0,8				1,3 ± 0,8	

8.3.2. Tablica D13. Faktori prijenosa i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida iz tla u kore gomolja.

Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	(Faktor prijenosa)×10 ² – Gomolji: kore							
			⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-KRM_KOR-DALJ	1	KRM	149 ± 7	37,3 ± 5,0				2,3 ± 0,2	2,6 ± 0,4	1,7 ± 0,3
RF-KRM_KOR-ROS	8	KRM	225 ± 11	47,3 ± 4,3	7,3 ± 1,1			3,1 ± 0,3	3,9 ± 1,3	1,5 ± 0,8
RF-KRM_KOR-POD	12	KRM	853 ± 44		7,1 ± 1,7	8,0 ± 3,5		3,5 ± 0,3	6,9 ± 2,4	2,4 ± 1,5
RF-KRM_KOR-IGRC	20	KRM	196 ± 10	49,3 ± 10,9	3,8 ± 0,8		1,63 ± 0,10	1,5 ± 0,4		0,8 ± 0,3
RF-KRM_KOR-NOV	21	KRM	149 ± 7	16,2 ± 0,9	2,8 ± 0,4		0,92 ± 0,05	1,1 ± 0,2		
RF-KRM_KOR-PLI	23	KRM	155 ± 8	29,2 ± 1,2	2,4 ± 0,4		1,89 ± 0,20	1,1 ± 0,1		0,5 ± 0,1
RF-KRM_KOR-OG	24	KRM	188 ± 9	7,1 ± 0,4	1,3 ± 0,3		2,20 ± 0,18	0,7 ± 0,1		0,6 ± 0,2
RF-KRM_KOR-POR	27	KRM	204 ± 10	11,0 ± 1,1			0,64 ± 0,10	0,8 ± 0,1		
RF-BAT_KOR-DALJ	1	BAT	222 ± 11	88,5 ± 5,0				3,0 ± 0,3	2,8 ± 0,6	2,1 ± 0,5
RF-BAT_LJUB_KOR-BJE	9	BAT 1	184 ± 9	187,7 ± 46,5	11,8 ± 5,2			4,9 ± 0,6	6,3 ± 1,4	2,7 ± 0,9
RF-BAT_NAR_KOR-BJE	9	BAT 2	199 ± 10	201,0 ± 45,4	16,8 ± 5,5	15,5 ± 4,6		11,3 ± 0,8	16,1 ± 1,7	8,2 ± 1,4
RF-BAT_NAR_KOR-BZV	19	BAT	123 ± 6	250,8 ± 17,0	4,7 ± 0,8		3,34 ± 0,26	1,9 ± 0,2	2,4 ± 0,5	
RF-BAT_LJUB_KOR-ZAD	22	BAT 1	178 ± 9		7,7 ± 1,0	8,6 ± 1,7		4,8 ± 0,2	6,7 ± 0,9	
RF-BAT_ZUT_KOR-ZAD	22	BAT 2	237 ± 12		5,4 ± 1,3			4,6 ± 0,3	4,3 ± 1,1	3,9 ± 0,6

8.3.3. Tablica D14. Faktori prijenosa i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida iz tla u korijenasto povrće.

			(Faktor prijenosa)×10 ² – Korijenasto povrće: jestivi dio							
Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-CIK-ROS	8	CIK	245 ± 12	39,6 ± 2,1	3,7 ± 1,4			2,6 ± 0,5		
RF-CIK-SPL	17	CIK	207 ± 10					1,8 ± 0,5		
RF-CIK-KRI	18	CIK	184 ± 9	115,8 ± 5,6	2,5 ± 0,5		1,34 ± 0,07	2,5 ± 0,2	2,7 ± 0,5	
RF-CIK-POR	27	CIK	210 ± 10	74,6 ± 3,3			0,47 ± 0,07	0,9 ± 0,1	1,2 ± 0,2	
RF-MRK-VS	10	MRK	188 ± 9	80,8 ± 4,2	4,0 ± 0,8			3,6 ± 0,3	6,2 ± 0,5	1,5 ± 0,3
RF-MRK-SPL	17	MRK	343 ± 17	65,2 ± 9,6				2,7 ± 0,5	5,6 ± 1,9	1,5 ± 0,8
RF-MRK_KOM-IGRC	20	MRK	86 ± 4	82,9 ± 9,0	1,7 ± 0,5		0,60 ± 0,05	2,6 ± 0,2	3,4 ± 0,7	
			(Faktor prijenosa)×10 ² - Korijenasto povrće: kore							
Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-CIK_KOR-ROS	8	CIK	208 ± 10	87,5 ± 3,9	13,5 ± 2,0	24,1 ± 5,3		16,8 ± 1,0	16,6 ± 1,2	12,0 ± 1,3
RF-CIK_KOR-KRI	18	CIK	222 ± 11		4,8 ± 0,6	6,2 ± 1,7	7,03 ± 0,32	4,2 ± 0,3	4,5 ± 0,6	2,1 ± 0,3
RF-CIK_KOR-POR	27	CIK	339 ± 17			5,7 ± 1,5	22,14 ± 1,07	2,0 ± 0,2	2,6 ± 0,2	0,9 ± 0,1

Tablica D15. Faktori prijenosa i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida iz tla u lisnato povrće.

Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	(Faktor prijenosa) $\times 10^2$ – Lisnato povrće: jestivi dio							
			^{40}K	^{90}Sr	^{137}Cs	^{210}Pb	^{210}Po	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th
RF-BRO-POR	27	BRO	275 ± 13	$43,2 \pm 2,3$	$2,5 \pm 0,8$	$7,3 \pm 1,6$	$5,22 \pm 0,29$	$0,9 \pm 0,2$		
RF-KUP-VLA	2	KUP	254 ± 13	$111,7 \pm 19,6$						$1,6 \pm 0,8$
RF-KAR-VLA	2	KAR	230 ± 11	$39,9 \pm 9,5$						
RF-KAR-POR	27	KAR	310 ± 15	$69,0 \pm 3,7$	$3,1 \pm 0,9$		$5,32 \pm 0,32$			
RF-BLI-VS	10	BLI	437 ± 21			$41,6 \pm 7,6$		$2,8 \pm 0,9$	$6,5 \pm 2,3$	
RF-BLI-IGRC	20	BLI	208 ± 10	$859,8 \pm 154,5$	$32,0 \pm 2,6$	$24,0 \pm 4,2$	$42,09 \pm 2,57$	$8,4 \pm 0,4$	$10,0 \pm 0,7$	
RF-KELJ-NED	15	KELJ	176 ± 9	$218,3 \pm 11,3$	$10,0 \pm 0,9$	$3,5 \pm 1,2$	$7,27 \pm 0,42$	$2,3 \pm 0,2$	$3,0 \pm 0,3$	$0,6 \pm 0,2$
RF-KELJ-SPL	17	KELJ	374 ± 18	$188,0 \pm 11,3$		$11,3 \pm 5,5$		$2,3 \pm 0,9$		
RF-SPI-SPL	17	SPI	889 ± 43	$208,0 \pm 15,9$		$21,9 \pm 4,8$		$4,6 \pm 0,4$		$5,9 \pm 1,0$
Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	(Faktor prijenosa) $\times 10^2$ – Lisnato povrće: nejestivi dio							
			^{40}K	^{90}Sr	^{137}Cs	^{210}Pb	^{210}Po	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th
RF-KAR_ZEL-VLA	2	KAR	248 ± 12		$3,4 \pm 1,3$	$4,7 \pm 1,8$		$1,4 \pm 0,3$	$8,5 \pm 2,8$	

8.3.4. Tablica D16. Faktori prijenosa i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida iz tla u plodovito povrće.

Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	(Faktor prijenosa)×10 ² – Plodasto povrće: jestivi dio							
			⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-KRA-DALJ	1	KRA	202 ± 10	55,5 ± 5,9	10,0 ± 1,4			1,5 ± 0,3		
RF-PATL-SPL	17	PATL	294 ± 14	39,4 ± 5,7	6,5 ± 2,3				3,5 ± 2,1	
RF-PAP-VLA	2	PAP	214 ± 10		2,2 ± 0,7			1,0 ± 0,5		
RF-PAP-NED	15	PAP	130 ± 6	7,0 ± 2,0	3,0 ± 0,9		1,43 ± 0,09			
RF-PAP-IGRC	20	PAP	172 ± 8		2,8 ± 0,6		1,24 ± 0,17			
RF-PAP-NOV	21	PAP	194 ± 9	9,7 ± 1,7	5,4 ± 0,7		1,50 ± 0,09			
RF-BUT-BJE	9	TIK 1	298 ± 15							
RF-KAB-BJE	9	TIK 2	225 ± 11					3,0 ± 0,3		
RF-PRIN-BJE	9	TIK 3	317 ± 15							
RF-BUT-SOL	16	TIK 1	124 ± 6	22,4 ± 2,8	13,1 ± 1,6					
RF-HOK-SOL	16	TIK 2	186 ± 9	36,0 ± 2,9	68,4 ± 5,2			1,6 ± 0,6		
RF-KAB-SOL	16	TIK 3	141 ± 7	16,8 ± 2,0	41,6 ± 3,4	3,9 ± 1,6				
RF-TUR-KRI	18	TIK	298 ± 14	169,6 ± 9,6	4,6 ± 0,6		1,59 ± 0,16	1,1 ± 0,2		
RF-GOL-BZV	19	TIK	389 ± 19	373,7 ± 20,3			1,20 ± 0,07	3,3 ± 0,3	4,0 ± 0,6	0,9 ± 0,4
RF-TIK-IGRC	20	TIK	242 ± 12				0,92 ± 0,10			
RF-BUT-PAZ	26	TIK	203 ± 10	62,9 ± 2,8	3,1 ± 0,5		0,62 ± 0,04	0,5 ± 0,1	1,4 ± 0,5	
RF-TIKV-DALJ	1	TIKV	201 ± 10	50,2 ± 10,4						
RF-TIKV-NED	15	TIKV	196 ± 10	66,7 ± 5,4	29,6 ± 2,3		1,81 ± 0,21		1,7 ± 0,7	
RF-TIKV-PLI	23	TIKV	192 ± 9		7,2 ± 0,7		1,44 ± 0,15	1,1 ± 0,2	1,8 ± 0,6	

8.3.5. Tablica D17. Faktori prijenosa i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida iz tla u kore plodovitog povrća.

			(Faktor prijenosa)×10 ² – Plodasto povrće: kore							
Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-KRA_KOR-DALJ	1	KRA	194 ± 9		6,9 ± 1,4					
RF-PATL_KOR-SPL	17	PATL	334 ± 17	33,3 ± 5,3						2,9 ± 1,6
RF-KAB_KOR-BJE	9	TIK 1	85 ± 4			4,3 ± 1,7		1,0 ± 0,3		1,6 ± 0,4
RF-BUT_KOR-BJE	9	TIK 2	275 ± 13			8,4 ± 4,0			4,9 ± 1,5	
RF-PRIN_KOR-BJE	9	TIK 3	189 ± 9		4,8 ± 1,4	8,1 ± 2,5		2,5 ± 0,4	3,7 ± 1,3	
RF-BUT_KOR-SOL	16	TIK 1	177 ± 8		29,5 ± 2,8	7,0 ± 2,0				
RF-HOK_KOR-SOL	16	TIK 2	101 ± 5	59,8 ± 6,1	49,7 ± 4,9			1,7 ± 0,7		
RF-KAB_KOR-SOL	16	TIK 3	64 ± 3	22,1 ± 2,2	21,6 ± 2,3			1,1 ± 0,4		
RF-TUR_KOR-KRI	18	TIK	107 ± 5		4,7 ± 0,6	5,9 ± 1,5	4,55 ± 0,26	1,6 ± 0,2	4,8 ± 1,0	
RF-GOL_KOR-BZV	19	TIK	271 ± 13	291,0 ± 15,5			4,17 ± 0,30	3,6 ± 0,4	6,2 ± 1,0	
RF-TIK_KOR-IGRC	20	TIK	297 ± 15		6,6 ± 1,5		2,86 ± 0,59	3,2 ± 0,5		
RF-BUT_KOR-PAZ	26	TIK	225 ± 11	158,1 ± 5,5	3,4 ± 0,6	3,4 ± 0,8	9,56 ± 0,53	0,9 ± 0,1		
RF-TIKV_KOR-DALJ	1	TIKV	274 ± 13							
RF-TIKV_KOR-NED	15	TIKV	277 ± 13	127,3 ± 11,7	45,3 ± 3,4		2,02 ± 0,41			0,7 ± 0,3
RF-TIKV_KOR-PLI	23	TIKV	131 ± 6		7,7 ± 0,7	6,6 ± 1,5	1,25 ± 0,09	1,9 ± 0,2	3,2 ± 0,9	

8.3.6. Tablica D18. Faktori prijenosa i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida iz tla u voće.

			(Faktor prijenosa)×10 ² – Voće: jestivi dio							
Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-JAB-RUZ	4	JAB	51 ± 3		2,8 ± 1,0			1,0 ± 0,3		
RF-JAB-SED	6	JAB	80 ± 4							
RF-JAB-ROS	8	JAB	58 ± 3	9,6 ± 3,0						
RF-JAB-KOM	11	JAB	81 ± 4	50,0 ± 8,3				1,3 ± 0,5		
RF-JAB-ILI	13	JAB	188 ± 10	77,1 ± 29,1				0,5 ± 0,1		
RF-JAB-PET	14	JAB	26 ± 1		0,9 ± 0,3		0,37 ± 0,02	1,0 ± 0,1		
RF-KAKI-PAZ	26	KAKI	66 ± 3	2,4 ± 0,3			0,30 ± 0,02	0,4 ± 0,1		
RF-MAN-KOM	11	MAN	112 ± 6	118,4 ± 21,8				0,8 ± 0,5	7,4 ± 2,2	
RF-MAN2-KOM	11	MAN	104 ± 5	91,4 ± 15,0			0,15 ± 0,01	0,7 ± 0,2		
RF-KRU-RUZ	4	KRU	56 ± 3					0,7 ± 0,2		0,4 ± 0,2
RF-KRU-BUZ	25	KRU	51 ± 3		0,8 ± 0,2		1,47 ± 0,16	1,0 ± 0,2	1,9 ± 0,6	2,9 ± 1,2
			(Faktor prijenosa)×10 ² – Voće: kore							
Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-JAB_KOR-RUZ	4	JAB	35 ± 2							
RF-JAB_KOR-SED	6	JAB	69 ± 3	10,9 ± 3,3						
RF-JAB_KOR-ROS	8	JAB	40 ± 2	7,3 ± 1,8	4,6 ± 1,2	6,0 ± 1,8		1,0 ± 0,3		
RF-JAB_KOR-KOM	11	JAB	87 ± 4		1,7 ± 0,3	5,8 ± 1,3				
RF-JAB_KOR-ILI	13	JAB	234 ± 12			2,6 ± 1,5		1,3 ± 0,3		
RF-JAB_KOR-PET	14	JAB	23 ± 1			6,6 ± 1,5	3,21 ± 0,19			
RF-KAKI_KOR-PAZ	26	KAKI	60 ± 3	5,2 ± 0,3		1,2 ± 0,5	2,08 ± 0,14	0,9 ± 0,1		0,3 ± 0,1
RF-MAN_KOR-KOM	11	MAN	97 ± 5	200,7 ± 26,1	2,2 ± 0,7	4,3 ± 2,1		2,8 ± 1,0	6,9 ± 2,4	
RF-MAN2_KOR-KOM	11	MAN	84 ± 4	367,2 ± 47,3		4,1 ± 1,1	0,49 ± 0,03	1,8 ± 0,2		1,1 ± 0,3
RF-KRU_KOR-RUZ	4	KRU	54 ± 3	13,7 ± 2,3				0,7 ± 0,2		
RF-KRU_KOR-BUZ	25	KRU	47 ± 2			9,5 ± 1,9	63,55 ± 3,27	1,0 ± 0,2	3,6 ± 1,2	2,7 ± 1,3

8.3.7. Tablica D19. Faktori prijenosa i odgovarajuće nesigurnosti ($k = 1$) ciljanih radionuklida iz tla u orašaste plodove, žitarice i bilje.

(Faktor prijenosa)×10 ² – Orašasti plodovi										
Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-LJES-SED	6	LJES	43 ± 2	38,68 ± 2,15				0,7 ± 0,3		
(Faktor prijenosa)×10 ² – Žitarice										
Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-PIR-BZV	19	PIR	19 ± 1					2,9 ± 0,2	1,9 ± 0,5	
RF-PSE-VS	10	PSE	22 ± 1					1,1 ± 0,3		
(Faktor prijenosa)×10 ² – Bilje										
Oznaka uzorka	Lokacija	Kultura	⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
RF-KAM-VS	10	KAM	161 ± 8	72,11 ± 3,94	10,3 ± 1,9	27,5 ± 4,5		13,2 ± 0,8	13,5 ± 1,2	10,2 ± 1,1
RF-KAM2-VS	10	KAM	163 ± 8	33,35 ± 1,84				4,6 ± 0,4		
RF-SMI-PELJ	5	SMI	103 ± 5	14,39 ± 0,98		5,6 ± 0,9			2,2 ± 0,6	
RF-RUZ-PELJ	7	RUZ	88 ± 4	398,34 ± 29,74		37,8 ± 5,7		1,6 ± 0,1		
RF-KAD-PELJ	5	KAD	112 ± 6	100,18 ± 2,90		10,0 ± 1,6		3,8 ± 0,2		0,8 ± 0,3

8.4. Granice detekcije ciljanih gama emitera nakon nadogradnje gama-spektrometrijskog sustava aktivnim štitom

8.4.1. Tablica D20. Granice detekcije ciljanih gama emitera nakon nadogradnje gama-spektrometrijskog sustava aktivnim štitom.

Oznaka uzorka	Granice detekcije (Bq kg ⁻¹ , svježa tvar, ISO11929)							
	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁴ Bi	²¹⁴ Pb	²²⁸ Ac	²⁰⁸ Tl	²¹² Bi	²¹² Pb
RF-BAT-DALJ	0,09	1,03	0,16	0,15	0,34	0,09	1,25	0,10
RF-BAT_KOR-DALJ	0,14	1,55	0,22	0,18	0,39	0,11	2,05	0,11
RF-KRA_KOR-DALJ	0,03	0,25	0,09	0,07	0,19	0,05	0,63	0,05
RF-KRA-DALJ	0,02	0,11	0,04	0,04	0,08	0,02	0,26	0,02
RF-KRM-DALJ	0,11	0,69	0,23	0,18	0,48	0,12	1,56	0,12
RF-KRM_KOR-DALJ	0,07	0,47	0,20	0,13	0,24	0,07	0,96	0,08
RF-TIKV_KOR-DALJ	0,06	0,36	0,12	0,10	0,27	0,06	0,85	0,06
RF-TIKV-DALJ	0,02	0,15	0,05	0,03	0,10	0,02	0,32	0,02
RF-ORAH-PAT	0,38	3,59	0,47	0,47	1,49	0,42	5,34	0,49
RF-KAR-VLA	0,05	0,53	0,10	0,08	0,22	0,05	0,69	0,06
RF-KAR_ZEL-VLA	0,02	0,28	0,08	0,06	0,18	0,04	0,57	0,05
RF-KUP-VLA	0,05	0,60	0,11	0,09	0,24	0,06	0,75	0,03
RF-PAP-VLA	0,02	0,31	0,05	0,04	0,12	0,03	0,39	0,03
RF-CIK_KOR-ROS	0,08	0,80	0,19	0,17	0,34	0,08	0,97	0,09
RF-CIK-ROS	0,05	0,41	0,13	0,11	0,29	0,07	0,91	0,07
RF-JAB_KOR-ROS	0,06	0,69	0,24	0,15	0,44	0,12	1,58	0,14
RF-JAB-ROS	0,07	0,40	0,15	0,12	0,28	0,07	0,98	0,08
RF-KRM-ROS	0,09	0,82	0,23	0,23	0,58	0,14	1,92	0,15
RF-KRM_KOR-ROS	0,07	1,29	0,13	0,13	0,40	0,10	1,74	0,10
RF-JAB_KOR-SED	0,10	0,59	0,20	0,16	0,38	0,10	1,29	0,11
RF-JAB-SED	0,08	0,49	0,17	0,14	0,35	0,09	1,11	0,09
RF-LJES-SED	0,45	4,07	0,94	0,58	1,78	0,48	5,96	0,54
RF-BLI-VS	0,07	0,49	0,12	0,11	0,23	0,07	0,92	0,07
RF-KAM-VS	0,75	5,87	2,11	1,63	3,92	1,19	9,06	1,19
RF-MRK-VS	0,04	0,34	0,10	0,10	0,18	0,05	0,70	0,05
RF-PSE-VS	0,49	4,78	0,90	0,76	1,99	0,55	6,89	0,65
RF-JAB_KOR-ILI	0,09	0,62	0,19	0,13	0,37	0,10	1,24	0,11
RF-JAB-ILI	0,05	0,55	0,07	0,07	0,20	0,05	0,64	0,06
RF-KRM-POD	0,06	1,06	0,13	0,15	0,39	0,10	1,28	0,06
RF-KRM_KOR-POD	0,07	0,79	0,15	0,15	0,38	0,12	1,63	0,09
RF-BAT_NAR-BJE	0,14	1,30	0,28	0,24	0,56	0,15	1,90	0,16
RF-BAT_LJUB-BJE	0,17	1,66	0,34	0,29	0,66	0,18	2,27	0,20
RF-BAT_NAR_KOR-BJE	0,11	1,09	0,29	0,20	0,53	0,13	1,17	0,15
RF-BAT_LJUB_KOR-BJE	0,11	1,88	0,28	0,23	0,45	0,20	1,28	0,13
RF-PRIN_KOR-BJE	0,05	0,74	0,14	0,15	0,26	0,10	1,32	0,11

Tablica D20. Granice detekcije ciljanih gama emitera nakon nadogradnje gama-spektrometrijskog sustava aktivnim štitom (nastavak).

Oznaka uzorka	Granice detekcije (Bq kg ⁻¹ , svježa tvar, ISO11929)							
	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁴ Bi	²¹⁴ Pb	²²⁸ Ac	²⁰⁸ Tl	²¹² Bi	²¹² Pb
RF-BUT_KOR-BJE	0,07	0,77	0,20	0,17	0,24	0,11	1,40	0,11
RF-KAB_KOR-BJE	0,12	0,92	0,24	0,17	0,47	0,12	1,55	0,09
RF-BUT-BJE	0,07	0,81	0,15	0,12	0,32	0,08	1,03	0,08
RF-PRIN-BJE	0,05	0,59	0,10	0,08	0,23	0,05	0,72	0,06
RF-KAB-BJE	0,10	0,59	0,15	0,14	0,42	0,10	1,29	0,10
RF-JAB_KOR-KOM	0,05	0,56	0,17	0,14	0,34	0,09	1,14	0,10
RF-JAB-KOM	0,08	0,73	0,12	0,11	0,30	0,08	1,05	0,09
RF-MAN_KOR-KOM	0,14	1,73	0,46	0,39	0,76	0,24	3,06	0,27
RF-MAN-KOM	0,06	0,57	0,12	0,06	0,23	0,06	0,77	0,07
RF-KAD-PELJ	0,96	5,07	2,16	1,30	3,63	0,97	12,60	1,04
RF-RUZ-PELJ	0,79	4,46	1,88	1,21	3,25	0,85	10,60	0,87
RF-SMI-PELJ	1,06	5,39	2,23	1,75	2,31	1,13	14,30	1,14
RF-HOK_KOR-SOL	0,08	1,08	0,17	0,19	0,45	0,12	1,51	0,13
RF-BUT_KOR-SOL	0,06	0,64	0,22	0,18	0,44	0,11	1,48	0,12
RF-KAB_KOR-SOL	0,09	1,50	0,34	0,25	0,62	0,17	2,16	0,19
RF-HOK-SOL	0,05	0,74	0,15	0,12	0,30	0,07	1,00	0,08
RF-KAB-SOL	0,07	0,54	0,19	0,16	0,40	0,10	1,35	0,11
RF-BUT-SOL	0,04	0,60	0,12	0,10	0,24	0,06	0,81	0,07
RF-CIK-SPL	0,10	1,03	0,14	0,13	0,40	0,10	1,39	0,12
RF-KELJ-SPL	0,10	0,63	0,20	0,13	0,42	0,10	1,38	0,12
RF-MRK-SPL	0,07	0,74	0,10	0,09	0,14	0,07	0,96	0,05
RF-PATL_KOR-SPL	0,12	1,08	0,25	0,21	0,50	0,13	1,70	0,11
RF-PATL-SPL	0,03	0,52	0,11	0,09	0,11	0,06	0,76	0,06
RF-SPI-SPL	0,06	0,40	0,07	0,06	0,28	0,06	0,86	0,04
RF-BAT_LJUB-ZAD	0,06	1,27	0,19	0,18	0,52	0,14	1,79	0,16
RF-BAT_ZUT-ZAD	0,06	0,97	0,20	0,17	0,26	0,10	0,60	0,12
RF-BAT_ZUT_KOR-ZAD	0,08	0,68	0,23	0,16	0,43	0,12	0,79	0,11
RF-BAT_LJUB_KOR-ZAD	0,08	0,96	0,18	0,15	0,36	0,09	1,77	0,09
RF-BLI-IGRC	0,04	0,32	0,11	0,10	0,24	0,06	0,81	0,07
RF-KRM-IGRC	0,04	0,92	0,16	0,13	0,29	0,08	1,12	0,09
RF-KRM_KOR-IGRC	0,05	1,07	0,20	0,16	0,43	0,10	0,69	0,06
RF-PAP-IGRC	0,02	0,32	0,06	0,04	0,12	0,03	0,40	0,03
RF-TIK_KOR-IGRC	0,03	0,63	0,11	0,09	0,28	0,07	0,87	0,07
RF-TIK-IGRC	0,03	0,28	0,05	0,04	0,11	0,03	0,37	0,03
RF-KELJ-NED	0,05	0,55	0,11	0,10	0,21	0,05	1,05	0,06
RF-PAP-NED	0,02	0,43	0,08	0,07	0,17	0,04	0,58	0,05
RF-TIKV_KOR-NED	0,04	0,50	0,09	0,07	0,19	0,05	0,39	0,03
RF-TIKV-NED	0,02	0,35	0,06	0,05	0,08	0,03	0,41	0,03
RF-KRM-NOV	0,05	0,97	0,18	0,15	0,36	0,10	1,25	0,11
RF-KRM_KOR-NOV	0,05	1,05	0,20	0,09	0,42	0,11	1,38	0,12

Tablica D20. Granice detekcije ciljanih gama emitera nakon nadogradnje gama-spektrometrijskog sustava aktivnim štitom (nastavak).

Oznaka uzorka	Granice detekcije (Bq kg ⁻¹ , svježa tvar, ISO11929)							
	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	²¹⁴ Bi	²¹⁴ Pb	²²⁸ Ac	²⁰⁸ Tl	²¹² Bi	²¹² Pb
RF-PAP-NOV	0,02	0,30	0,05	0,04	0,12	0,03	0,37	0,03
RF-KAM2-VS	0,79	8,04	1,44	1,23	3,46	0,85	11,40	0,96
RF-MAN2_KOR-KOM	0,11	0,76	0,20	0,16	0,50	0,12	1,63	0,09
RF-MAN2-KOM	0,05	0,57	0,07	0,06	0,21	0,05	0,72	0,06
RF-MRK-IGRC	0,05	0,59	0,08	0,07	0,13	0,06	0,73	0,04
RF-JAB_KOR-RUZ	0,07	0,82	0,15	0,14	0,30	0,08	1,07	0,09
RF-JAB-RUZ	0,03	0,63	0,13	0,10	0,25	0,07	0,84	0,07
RF-KRU_KOR-RUZ	0,08	0,92	0,12	0,14	0,36	0,09	1,13	0,10
RF-KRU-RUZ	0,05	0,56	0,11	0,09	0,22	0,06	0,73	0,04
RF-BAT-BZV	0,05	0,93	0,12	0,11	0,35	0,09	1,14	0,10
RF-BAT_NAR_KOR-BZV	0,06	1,12	0,14	0,14	0,36	0,11	1,41	0,08
RF-PIR-BZV	0,34	3,68	0,60	0,50	1,05	0,36	4,73	0,44
RF-GOL_KOR-BZV	0,09	0,95	0,18	0,12	0,34	0,10	1,28	0,06
RF-GOL-BZV	0,04	0,47	0,05	0,04	0,11	0,04	0,59	0,02
RF-CIK_KOR-KRI	0,04	0,58	0,12	0,09	0,19	0,05	1,00	0,05
RF-CIK-KRI	0,03	0,66	0,07	0,08	0,14	0,06	0,79	0,04
RF-TUR_KOR-KRI	0,02	0,31	0,05	0,04	0,14	0,02	0,43	0,02
RF-TUR-KRI	0,01	0,22	0,02	0,02	0,08	0,02	0,26	0,02
RF-JAB_KOR-PET	0,07	0,47	0,15	0,13	0,30	0,08	0,99	0,09
RF-JAB-PET	0,03	0,62	0,09	0,08	0,22	0,06	0,75	0,07
RF-KRU_KOR-BUZ	0,08	0,61	0,12	0,12	0,34	0,09	0,50	0,10
RF-KRU-BUZ	0,03	0,69	0,10	0,07	0,22	0,07	0,38	0,08
RF-KAKI_KOR-PAZ	0,09	0,64	0,14	0,14	0,39	0,10	1,33	0,07
RF-KAKI-PAZ	0,08	0,91	0,14	0,15	0,35	0,09	1,11	0,10
RF-BUT_KOR-PAZ	0,04	0,50	0,09	0,08	0,28	0,07	0,88	0,07
RF-BUT-PAZ	0,02	0,39	0,05	0,04	0,14	0,02	0,46	0,02
RF-BRO-POR	0,03	0,35	0,08	0,10	0,27	0,06	0,85	0,07
RF-CIK_KOR-POR	0,07	0,60	0,11	0,09	0,22	0,06	1,02	0,05
RF-CIK-POR	0,06	0,73	0,08	0,08	0,16	0,07	0,87	0,04
RF-KAR-POR	0,02	0,37	0,06	0,05	0,15	0,03	0,46	0,04
RF-KRM-POR	0,12	1,44	0,19	0,20	0,53	0,12	1,70	0,14
RF-KRM_KOR-POR	0,11	1,31	0,17	0,12	0,49	0,11	1,59	0,13
RF-KRM-OG	0,10	1,19	0,12	0,17	0,23	0,11	1,42	0,12
RF-KRM_KOR-OG	0,05	1,18	0,20	0,14	0,45	0,10	1,36	0,06
RF-KRM-PLI	0,08	1,35	0,17	0,13	0,51	0,13	1,66	0,14
RF-KRM_KOR-PLI	0,07	1,31	0,17	0,11	0,50	0,12	1,64	0,09
RF-TIKV_KOR-PLI	0,04	0,40	0,14	0,11	0,28	0,07	0,92	0,08
RF-TIKV-PLI	0,02	0,35	0,05	0,04	0,10	0,03	0,44	0,04
RF-KAM2-VS	0,79	8,04	1,44	1,23	3,46	0,85	11,40	0,96

8.5. Opis Python skripta i sučelja sustava za automatizirano sekvencijalno odjeljivanje radionuklida

Tablica D21. Funkcije korištene prilikom pisanja Python skripta.

Funkcija	Opis
db_functions.state()	Funkcija vraća trenutno stanje sustava (1, 2, 3...)
db_functions.set_state(<i>n</i>)	Funkcija postavlja program u željeno stanje <i>n</i>
db_functions.pgm_parameter(8, 'korak', step)	funkcija upisuje ime i vrijednost za parametar u prozor sučelja (sučelje sadrži 8 takvih prozora), u 8. prozoru pod nazivom „korak“ ispisuje se vrijednost parametra „step“
db_functions.print_msg('poruka')	Ispis u prozor ekrana
tecan_functions.valve_init('n')	Inicijalizacija ventila <i>n</i>
tecan_functions.valve('n', 'm')	Postavljanje ventila <i>n</i> u određenu poziciju <i>m</i>
tecan_functions.pump_init('n')	Inicijalizacija pumpe <i>n</i>
tecan_functions.pump('n', 'k', 'b')	Pumpa <i>n</i> ispumpava <i>k</i> koraka brzinom <i>b</i>
tecan_functions.pump_stop('n')	Zaustavlja rad pumpe <i>n</i>
positioner_functions.init()	Inicijalizacija skupljača frakcija
positioner_functions.moveZ_to(pozicija)	Skupljač frakcija pomiče ispušt po z koordinati (vertikali), pozicije: 0 – 250
positioner_functions.moveXY_to(posX, posY)	Skupljač frakcija pomiče ispušt po x – y ravnini, položaji indeksirani za 8x8 pozicija, posX/posY: 1 – 8

Skripta je automatizirani slijed naredbi za upravljanje pumpom, ventilima i skupljačem frakcija. Naredbe se izvršavaju u petlji prateći parametre stanja „state“ i koraka „step“. Prilikom učitavanja, svaki program započinje u stanju 0 te zaustavlja pumpe ukoliko izvode naredbu. Pritiskom na gumb „Priprema“ u sučelju web preglednika stanje se mijenja u 1 te započinje inicijalizacija sustava koja postavlja sustav u stanje 2. Opisani dio je isti za svaki program te slijedi ispis početnog dijela skripte nakon kojega se upravlja jedinicama sustava zadavanjem naredbi u petlji po potrebi odjeljivanja:

```
#!/usr/bin/env python3
#Pb, Sr, Ra(Ba) odjeljivanje na AL23 0,4 g
#50 mL uzorka, Pb-Sr H2O, skuplja se u Sr frakciju
#

#      2.-4- RED U PROGRAMU JE OPIS!

import sys
sys.path.append(r"/var/www/html/")
#from db_functions import state, set_state, print_msg

import tecan_functions
import positioner_functions
import db_functions

import time
import mysql.connector

step = 0
wait_cnt = 0
k_30 = 7457.788915*1.15*1.11
t_30 = 0.00625
k_16 = 9582.215408
t_16 = 0.00125

db_functions.set_state(0)
db_functions.pgm_parameter(8, 'korak', step)
db_functions.pgm_parameter(7, 'wait count', wait_cnt)

while 1:
    time.sleep(1)
    state= db_functions.state()
    print(state)
    db_functions.pgm_parameter(8, 'korak', step)
    db_functions.pgm_parameter(7, 'wait count', wait_cnt)
    if(state==0):
```

```
tecan_functions.pump_stop('4')
if(state==1):
    db_functions.print_msg('Inicijalizacija pumpi i ventila... Pričekajte molim!')
    tecan_functions.valve_init('6')
    time.sleep(2)
    tecan_functions.valve_init('5')
    time.sleep(2)
    tecan_functions.valve('5', '6')
    time.sleep(2)
    tecan_functions.pump_init('4')
    time.sleep(3)

    db_functions.print_msg('Inicijalizacija pozicionera... Pričekajte molim!')
    positioner_functions.init()
    time.sleep(17)
    positioner_functions.moveXY_to(8, 1)
    time.sleep(17)
    positioner_functions.moveZ_to(175)
    positioner_functions.moveZ_to(215)
    positioner_functions.moveZ_to(235)
    time.sleep(7) #

    db_functions.print_msg('Inicijalizacija završena')
    db_functions.set_state(2)
    step =1

if(state==3):
    if(step ==1):
        db_functions.print_msg('Prije nastavka provjeri jesu li cjevčice')
        db_functions.print_msg('u odgovarajućim otopinama i je li je sustav spreman')
        db_functions.print_msg('za odjeljivanje te pritisni start za početak odjeljivanja')
        step =2
        db_functions.set_state(2)

    elif(step ==2):
```

Nakon inicijalizacije, program je u stanju pripravnosti (2) i na koraku 1 te se odjeljivanje pokreće mijenjanjem stanja u 3, pritiskom na gumb start. Tada se izvršavaju naredbe u petlji prateći parametar korak. Pritiskom gumba „Stop“ odmah se zaustavlja program. Ukoliko se program želi vratiti u stanje pripravnosti zadaje se naredba za promjenu stanja (u stanje 2). Program se tada zaustavlja na zadnjem koraku te kreće s radom od tog koraka nakon ponovnog pritiska gumba Start. Prilikom rada moguć je ispis poruke s vremenskom oznakom, koja se može spremiti u tekstualnu dnevnik datoteku. Ispisom poruke bilježimo točno vrijeme odjeljivanja što je bitno za izračune prirasta potomaka radinuklida koje odjeljujemo. Prilikom

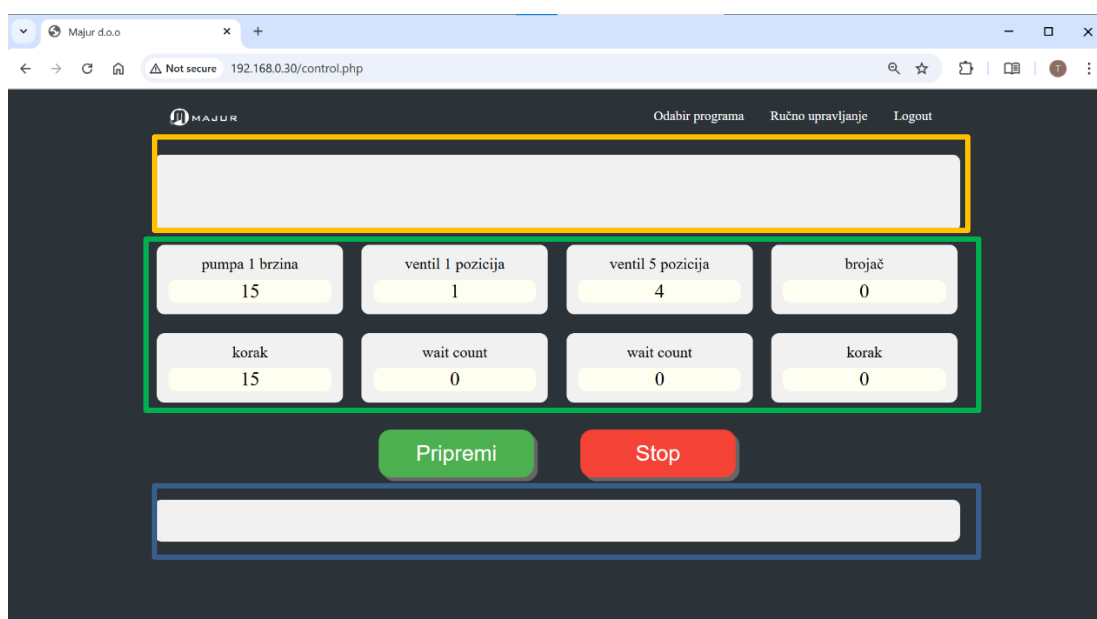
sastavljanja skripte treba paziti na to da računalo instantno zada naredbu dok pumpi, ventilu te skupljaču frakcija treba neko vrijeme da se naredba izvrši. Stoga nakon svake naredbe treba program postaviti u stanje mirovanja korištenjem naredbe „time.sleep(7)“ dok jedinice rade ili zadavanjem brojača „wait_cnt“ u petlji koji ispisuje preostalo vrijeme rada pumpe. Slijedi primjer dijela skripte s takvim brojačem:

```
elif(step ==16):
    db_functions.print_msg('P4: 4,76mL, brzina 16')
    volumen =round(k_16 * 4.76)
    tecan_functions.pump('4', str(volumen),'16')
    step =17
    wait_cnt =round(1.02*volumen*t_16+3) #s

elif(step ==17):
    if(wait_cnt >0):
        wait_cnt-=1
    else:
        step =18
elif(step ==18):
```

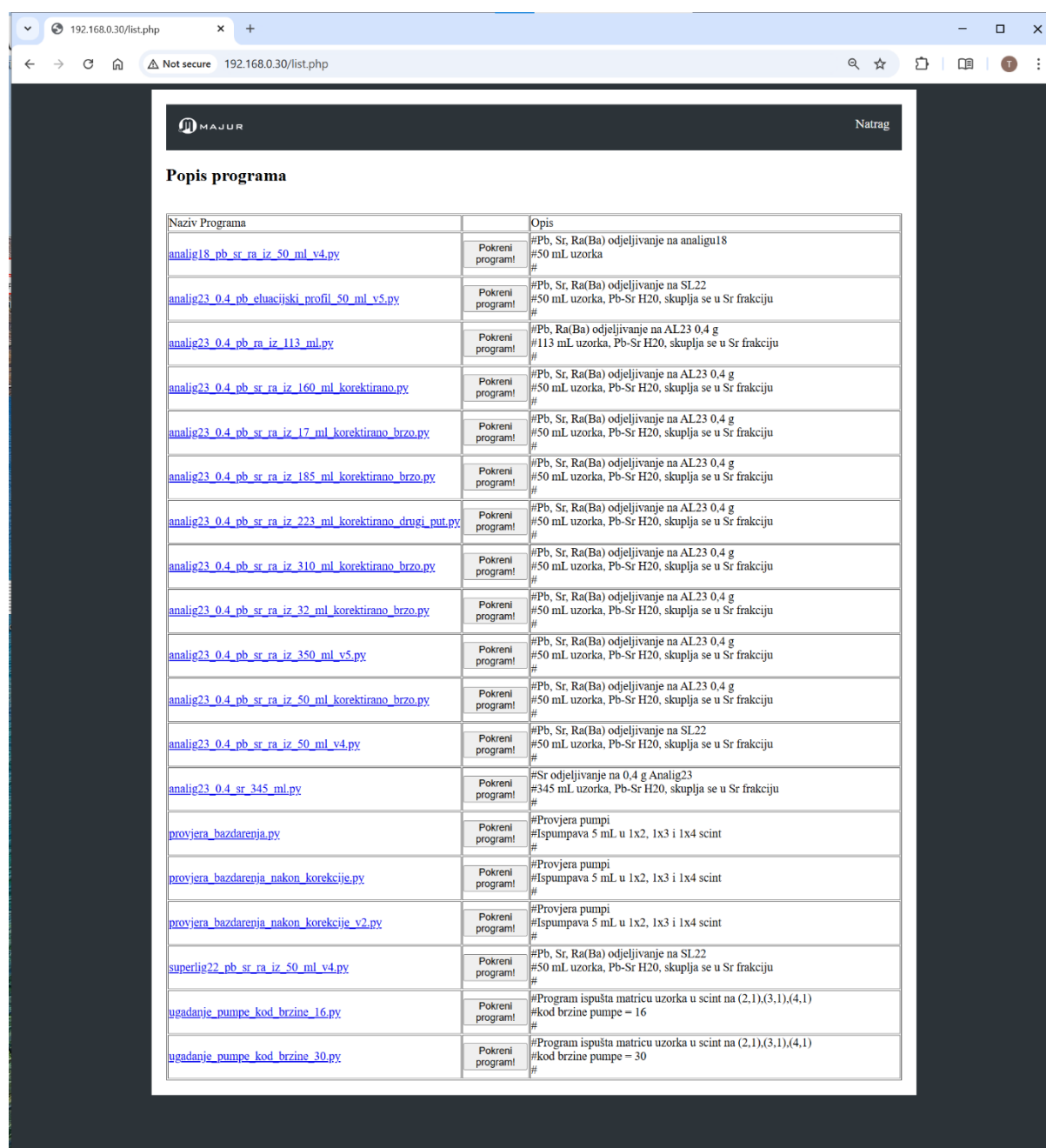
Ukoliko je program u koraku 17, „wait_cnt“ se umanjuje za 1 u petlji dok pumpa ispumpava. Nakon što brojač dostigne $\text{wait_cnt} = 0$, pumpa je gotova s ispumpavanjem i spremna za daljni rad. Kada je odjeljivanje završeno program se postavlja u stanje 2 te je sustav spreman za ponovno izvođenje programa.

Skripta napisana u tekstualnom uredniku pohranjuje se kao .py datoteka u memoriju Raspberry Pi računala koristeći SSH (*engl. Secure Shell*) protokol te se pokreće iz sučelja za web preglednike. Snimke zaslona sučelja prikazana su na slikama D1, D2 te D3.

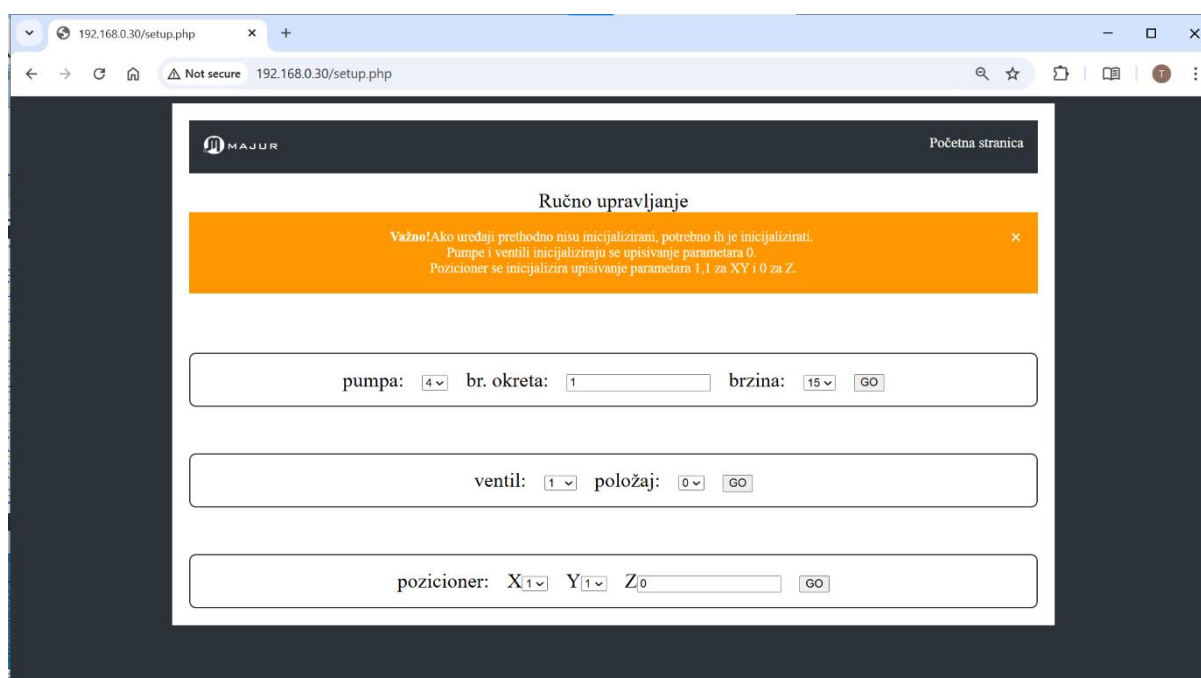


Slika D1. Početna stranica sučelja za upravljanje sustavom za automatizaciju odjeljivanja radionuklida.

Na početnoj stranici sustava nalaze se poveznice za odabir programa i ručno upravljanje. Nakon odabira programa, u pravokutniku označenom narančasto ispisuje se opis programa (koji se zadaje u skripti od drugog do četvrtog reda). Gumb „Pripremi“ se nakon dovršene inicijalizacije pretvori u gumb Start. Nakon pokretanja programa, u pravokutniku označenom plavo ispisuje se vrijeme pokretanja programa, poruke zadane naredbom „db_functions.print_msg('poruka')“ te vrijeme završetka programa. Zelenim pravokutnikom označeni su prozori koji ispisuju ime i vrijednost zadanih parametara pomoću funkcije db_functions.pgm_parameter(*n*, 'ime parametra', parametar). Prilikom pisanja skripti definiraju se nazivi koji se prikazuju za neki parametar definiran u skripti poput pozicije određenih ventila, koraka u odjeljivanju ili vrijednosti brojača rada pumpe.



Slika D2. Stranica sučelja za odabir programa.



Slika D3. Stranica sučelja za ručno upravljanje sustavom uživo.

Moguće je i ručno, uživo, upravljanje sustavom. Analitičar zadaje naredbe korak po korak koristeći odgovarajuće izbornike i upisivajući iznose parametara u stranicu sučelja predviđenu za to. Takav način rada zamišljen je za razvijanje metode ili umjeravanje sustava.

§ 9. ŽIVOTOPIS

Osobni podaci:

Ime i prezime: Tomislav Ilievski
Datum rođenja: 16. studenog 1995.
Mjesto rođenja: Zagreb, Hrvatska

Radno iskustvo:

2022. – 2026. Asistent, Laboratorij za radioekologiju, Institut Ruđer Bošković, Zagreb, Hrvatska

Obrazovanje:

2022. – 2026. Doktorski studij kemije, Prirodoslovno-matematički fakultet, Sveučilište u Zagrebu, smjer: Fizikalna kemija
2019. – 2021. Diplomski studij kemije, Prirodoslovno-matematički fakultet, Sveučilište u Zagrebu, smjer: Fizikalna i organska kemija
2014. – 2019. Prediplomski studij kemije, Prirodoslovno-matematički fakultet, Sveučilište u Zagrebu
2010. – 2014. Prirodoslovna škola Vladimira Preloga, smjer: Prirodoslovno-matematička gimnazija

Članstva:

2022. – ... Hrvatsko društvo za zaštitu od zračenja

Znanstveni radovi u časopisima baza WoS:

- Ilievski, T.; Skoko, B.; Karanović, G.; Grahek, Ž.; Magdić Košiček, K.; Coha, I.; Pavičić-Hamer, D.; Tucaković, I. Radioactivity in Food Crops from the Family Farms in Croatia with Ingestion Dose Assessment. Food Control 2025, 167, 110805.
<https://doi.org/10.1016/j.foodcont.2024.110805>.

- Bakrač, L.; Ilievski, T.; Marković, N.; Bosnar, D.; Tucaković, I. Implementation and Optimisation of Cosmic Veto System Using Digital Electronics in an Environmental Gamma-Spectrometry Laboratory. *Radiat. Meas.* **2024**, *178*, 107302. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2024.107302>.
- Skoko, B.; Magdić Košiček, K.; Ilievski, T.; Karanović, G.; Grahek, Ž.; Coha, I.; Pavičić-Hamer, D.; Tucaković, I. Radionuclides Determination by Alpha (^{210}Po , $^{228,230,232}\text{Th}$) and Gamma ($^{226,228}\text{Ra}$, ^{137}Cs , ^{40}K) Spectrometry in Children's Food in Croatia with Assessment of Cumulative Ingestion Dose for Infants. *J. Food Compos. Anal.* **2024**, *136*, 106828. <https://doi.org/10.1016/j.jfca.2024.106828>.

Priopćenja na znanstvenim skupovima:

- *Upgrade of HPGe spectrometry system for low level activity determination with cosmic veto*, 23rd International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications (ICRM 2023) 27. – 31.03.2023., Bukurešt, Rumunjska – postersko izlaganje
- *Nadogradnja HPGe spektrometrijskog sustava aktivnim štitom*, 13. simpozij Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja, 18. – 21.4.2023., Poreč, Hrvatska – usmeno izlaganje
- *Radioactivity in Agricultural Crops and Soils From the Family Farms in Croatia*, 7th International Conference on Environmental Radioactivity, 17. – 22.9.2023., Sevilja, Španjolska – postersko izlaganje
- *Application of Solid Phase Extraction for Automated Sequential Separation of Radionuclides*, 14. simpozij Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja, 1. – 4.4.2025., Vodice, Hrvatska – postersko izlaganje
- *Radioactivity in Food Crops From the Family Farms in Croatia With Ingestion Dose Assessment*, 9. Simpozij studenata doktorskih studija PMF-a, 27. i 28.4.2025., Zagreb, Hrvatska – usmeno izlaganje
- *Application of Solid Phase Extraction for Automated Sequential Separation of Radionuclides From Environmental Samples*, 8th International Conference on Environmental Radioactivity, 14. – 19.9.2025., Krakov, Poljska – usmeno izlaganje

Stručna usavršavanja:

- Naturally Occurring Radioactive Material – characterisation, inventory of related exposure situations and monitoring principles, 15. – 26.4.2024., The Central Mining Institute, National Research Institute, Katowice, Poljska
- Stručno usavršavanje iz područja spektrometrije atomske emisije (ICP-OES) na Institutu za nuklearne nauke „Vinča“, 2. – 13.12.2024., Beograd, Srbija
- Application of Liquid Scintillation Counting (LSC) and alpha spectrometry for NORM characterisation, 12. – 23.5.2025., The Central Mining Institute, National Research Institute, Katowice, Poljska