

**PRILOG PROBLEMU SPONTANE AKUMULACIJE RADIOAKTIVNIH
SUPSTANCIJA NA TERENU**

ing. Vlastimir M. Vučić

Proces spontane akumulacije radioaktivnih supstancija na terenu je veoma malo poznat. Razlog ovome leži svakako u činjenicama da ovi procesi mogu biti veoma raznovrsni i složeni, dok su sa druge strane ovakvi procesi vrlo nepristupačni i veoma teški za proučavanje. Ima veliki broj ustanovljenih mogućnosti za spontanu akumulaciju kao što su: razna dejstva mikroorganizma¹⁾, dejstvo vode pri čemu je akumulacija moguća putem taloženja, adsorpcije, jonske izmene, rastvaranja²⁾ itd. Prirodne radioaktivne supstancije su na terenu raspostranjene ali u veoma malim koncentracijama. Te koncentracije su tako male da je hemijska analiza često nemoguća ili veoma teška i delikatna. Sve su to razlozi da su podaci u literaturi za ovaj problem neobično oskudni. Po ovom problemu je u poslednje vreme najviše urađeno na procesima akumulacije u morskoj vodi. Homogenost sastava morske vode uslovljava veću pravilnost procesa te je moguće isti na jednostavniji način ustanoviti. Nasuprot tome na terenu vladaju daleko nepravilnije i raznovrsnije okolnosti, tako da je ispitivanje ovakvih procesa teže i delikatnije. Usled toga u ovom području postoje veoma oskudni podaci u literaturi.

U poslednje vreme je, međutim, naglo porastao interes za prirodnim radioaktivnim supstancama. Potrebe za pronalaženjem ležišta urana su bile razlog da se zadnjih godina pojavljuje sve više radova na polju izučavanja sadržaja radioaktivnih supstanci u terenu. Najveći broj prirodnih radioaktivnih elemenata nastaje od urana putem radioaktivne transformacije. Jasno je da postoji izvesna veza među sadržajem urana na terenu i ostalih radioaktivnih supstanci odnosno članova uranovog radioaktivnog niza. Ovakve činjenice nagoveštavaju da razne prirodne radioaktivne supstance na terenu treba da budu vesnici postojanja urana na tom mestu ili okolini. Detekcija nekih članova uranovog niza kao što su radium i radon je nesrazmerno lakša nego direktno dokazivanje urana u terenu. Naročito kad se radi o malim koncentracijama, što je obično slučaj na terenu, merenje sadržaja radiuma i radona je relativno lako i brzo dok su nasuprot tome merenja sadržaja urana znatno teža i nepouzdanija.

Vode na površini terena imaju različit sadržaj radiuma i radona. Te vode su obično ispirale velike komplekse terena te odnose sobom veće ili manje količine radioaktivnih supstancija. Razumljivo je da se u cilju kvalitativne

analize terena u pogledu urana pošlo i putem ovih voda. Sve više se pojavljuju opsežni radovi na merenju sadržaja radona i radiuma u velikom broju izvora, potoka, reka i jezera na području jednog terena da bi se iz toga izvukli opšti zaključci o prirodnoj radioaktivnosti terena³⁻⁶). Iz podataka u literaturi se može videti da su ovakva merenja izvršena u velikom broju zemalja: SAD, SSSR, Francuska, Engleska, Austrija, Japan i dr. Jasno je, prema tome, da zaključci o terenu prema ovakvim podacima u velikoj meri zavise od pomenutih procesa akumulacije. Međutim, taj proces akumulacije je i dalje ostao jako neodređen i sa skoro nikakvim podacima. Opšte je mišljenje da je ovakvo stanje nastalo usled pomenute složenosti i raznovrsnosti procesa akumulacije i teškoća pri njihovoj analizi.

Ovde nam je bio cilj da bar u pojedinim slučajevima ustanovimo takve procese na terenu, da ih u granicama mogućnosti analiziramo kako bi se ipak dobilo nešto više podataka. Ukoliko se i ne može odmah ustanoviti tačan proces akumulacije ipak se mogu analizirati pojedini faktori kao što su granične razmere akumulacije, različite mogućnosti akumulacije, verovatnoća pojave akumulacije itd.

Višegodišnja ispitivanja na radioaktivnim vrelima Niške Banje⁷) dala su dosta podataka iz kojih se može nesumljivo zaključiti da se ovde radi o procesu akumulacije posredstvom vode. Ispitivanje terena putem sonde i površinskim merenjem pomoću brojača ustanovljeno je da se povećana radioaktivnost terena prostire samo nizvodno od „Glavnog vrela“ i to u sedimentnim slojevima travertina koje je nesumnjivo nataložila voda ovog vrela. Maksimalna radioaktivnost se kreće tačno duž pravca kretanja vode potoka Glavnog vrela. Koncentracija radiuma u ovom terenu kreće se do $2 \cdot 10^{-10}$ gr. radiuma po gramu zemlje. Ni jedna analiza, međutim, nije pokazala prisustvo urana u ovoj zemlji. Koncentracija radiuma opada sa dubinom sedimentnog sloja što odgovara zakonu radioaktivne transformacije radiuma, čiji je period relativno kratak (1690 g), te ovaj zakon može da dođe do izražaja i kod mlađih sedimentnih slojeva⁸). Iz ovih i drugih podataka se može zaključiti ne samo da se radi o procesu akumulacije već i da je u ovim slojevima poremećena radioaktivna ravnoteža sa uranom odnosno da je ovde izvršena deponovanjem radiuma iz vode Glavnog vrela. Postoji naime mogućnost da je voda deponovala jonium a da se radioaktivnom transformacijom obrazovao radium. Međutim, analize na jonium su veoma teške i dugotrajne tako da raspoloživi podaci nisu dovoljni ni da dokažu jonium niti da ga negiraju ma da ima pretežno više razloga da se pretpostavi samo deponovanje radiuma čije je prisustvo u terenu nesumnjivo dokazano.

Termalna voda Glavnog vrela sadrži, međutim, veoma malu koncentraciju radiuma. Sadržaj radiuma u ovoj vodi je mogao biti određen tek posle uparavanja veće količine vode i dobivena vrednost iznosi $3,8 \cdot 10^{-12}$ g/ lit. Ta je vrednost znatno manja od sadržaja radiuma i drugim vodama. Skoro sva radioaktivnost vode Glavnog vrela potiče od sadržaja radona i kreće se oko $4 \cdot 10^{-9}$ Curie/lit. (koncentracija radona u ovoj vodi se menja u toku raznih perioda režima ovog vrela). Očito je, prema tome, da u ovoj vodi ne postoji radioaktivna ravnoteža među radiumom i radonom. Voda ima nesrazmerno više radona nego što bi prema uslovima ravnoteže trebala da ima. Voda Glav-

nog vrela se delom rastura i posle podzemnog toka kroz radioaktivni teren ona izbija na više mesta nizvodno duž potoka Glavnog vrela. Koncentracija radona u vodi ovih izvora je znatno veća i na jednom izvoru kod „Školske česme“ dostiže vrednosti $40 \cdot 10^{-9}$ Curie/lit. Nesumnjivo je dokazano da ove vode potiču od Glavnog vrela a da su se naknadno aktivirale radonom prolaskom kroz teren koji sadrži radium koji pak radioaktivnom transformacijom permanentno prelazi u radon.

Iz ovih i mnogobrojnih drugih podataka se može zaključiti da ovde postoji sledeći principijelni proces akumulacije kome se i pripisuje znatna koncentracija radona odnosno radioaktivnost ovih voda. Iz slabih rastvora voda na svom putu deponuje radium ili jonium. Pošto taj proces biva trajno vrši se akumulacija ovih supstanci u čvrstim slojevima terena kroz koje protiče voda. Na taj način koncentracija radiuma u terenu raste tokom vremena. Time se i sve veći broj atoma radiuma transformuje u radon koji je na običnoj temperaturi u gasnom stanju. To je inertan gas koji se uglavnom ne vezuje sa okolnim elementima. Radon ostaje slobodan te ga voda ponese sobom pa se otuda i objašnjava znatno povećani sadržaj radona u vodi. Znači da se sadržaj radona u vodi spontano povećava u znatnim razmerama usled opisanog procesa akumulacije radiuma. Ponašanje koncentracije radona u vodi Glavnog vrela za vreme nadolaska vrela posle velikih padavina ukazuje na mogućnost da proces akumulacije otpočinje još u podzemnom toku tj. pre izlaska vode na Glavnom vrelu.

Proces akumulacije se vršio nizvodno od Glavnog vrela skoro u površinskim slojevima terena te su time dosta pristupačni posmatranju. Više dobivenih podataka u tom smislu, smatramo, pružaju izvestan materijal iz koga se može načiniti makar i gruba analiza procesa akumulacije.

S obzirom na zakone radioaktivne transformacije akumulacija ne može ići neograničeno. Pretpostavimo da postoji samo deponovanje radiuma. Voda deponuje radium ali se ovaj daljom transformacijom raspada transformujući se u radon. Time se količina prisutnog radiuma smanjuje dok se sa druge strane vrši povećavanje količine radiuma usled deponovanja. To znači da količina radiuma može da se povećava samo do jedne maksimalne vrednosti kada se uspostavlja tekuća ravnoteža pri kojoj se u datom intervalu vremena deponuje ista količina radiuma koliko se i izgubi usled dalje radioaktivne transformacije. Tada se više koncentracija radiuma u terenu ne može povećavati.

Neka je broj deponovanih atoma radiuma u intervalu vremena dt

$$dn = b dt$$

gde je b konstanta kada se radi o stacionarnom procesu i označuje broj deponovanih atoma u jediničnom intervalu vremena. Sa druge strane zakon radioaktivne transformacije radiuma glasi

$$dn = -\lambda n dt$$

gde je n broj prisutnih atoma radiuma a λ radioaktivna konstanta radiuma. Tada dn predstavlja broj atoma radiuma koji se transformuju u elementu vremena dt . Za slučaj pomenute ravnoteže važiće jednostavna relacija

$$b = \lambda n$$

U ovom izrazu n predstavlja maksimalni broj atoma odnosno maksimalnu količinu radiuma koja se akumulacijom može dobiti pri intenzitetu deponovanja b .

Prenesimo sada ovu relaciju na terenske uslove. Može se zaključiti da se intenzivno deponovanje na ovom terenu vrši prilikom laganog toka vode kroz porozni teren. Uzmimo sada 1 m^3 takvog terena koji prema podacima sadrži $3,0 \cdot 10^{-4}$ g. Ra. Neka kroz takav kubni metar zemlje prolazi $0,1$ lit. vode u sekundi. Proces deponovanja radiuma je konstatovan na dužini od nekoliko stotina metara te se može pretpostaviti da se u jednom kubnom metru deponuje 1% od sadržaja radiuma u vodi. Ako količinu deponovanog radiuma izrazimo u gramima onda će se u svakom sekundu deponovati u jednom kubnom metru zemlje $3,8 \cdot 10^{-12} \cdot 10^{-1} \cdot 10^{-2} = 3,8 \cdot 10^{-15}$ g. To će ujedno biti intenzitet deponovanja odnosno veličina b g/s. Ako pak istu veličinu b izračunamo prema gornjem teorijskom obrascu dobiva se $1,38 \cdot 10^{-11} \cdot 3,0 \cdot 10^{-4} = 4,14 \cdot 10^{-15}$ g/s. Slaganj eu ovalikoj meri je svakako slučajno jer su veličine sa terena ustanovljene sa znatno većom neodređenošću. Ipak se može proceniti da slaganje postoji bar u redu veličina.

Ako se pođe od ovako ustanovljenih relacija može se analizirati u u kojoj meri je ovde izvršena akumulacija. Kad se uporede koncentracije radiuma u radioaktivnom terenu i u vodi onda se dobiva odnos $5,3 \cdot 10^4$, što predstavlja vrlo veliko povećanje koncentracije. Sa druge strane usled opisanog načina akumulacije voda dobiva znatno veći sadržaj radona, nego što bi imala u slučaju radioaktivne ravnoteže sa radiumom koji sadrži. U radioaktivnoj ravnoteži voda bi imala $3,8 \cdot 10^{-12}$ Curie/lit. dok jedan izvor kod Školske česme, kao što je pomenuto ima koncentraciju radona od $4 \cdot 10^{-9}$ Curie/lit. To predstavlja povećanje koncentracije od $1,05 \cdot 10^3$.

Na taj način se dolazi do važnog zaključka da proces akumulacije može u vrlo velikoj meri da poveća radioaktivnost terena i voda.

Što se tiče fizičko-hemijskih procesa koji se na terenu dešavaju pri ovakvoj akumulaciji može se uopšte reći da se oni veoma teško određuju pod ovakvim uslovima na terenu. Postoji, na prvom mestu, više mogućih procesa dok je sa druge strane sastav terena i vode veoma složen. Radi se uvek o veoma malim koncentracijama radioaktivnih i drugih supstancija pri čemu je direktna analiza veoma teška ili nemoguća. Proces akumulacije se dešava veoma malim intenzitetom i u vrlo dugim intervalima vremena. Sve to čini analize vrlo teškim i dugotrajnim a u velikoj meri i neupozdanim. Svi do sada dobiveni rezultati po ovom problemu ukazuju na kompleksnost pojava. Najviše podataka ide u prilog fizičke adsorpcije bez izrazitih karakteristika.

U području Suve Planine na kome se nalazi i ovo vrelo ima još desetak vrela ali je vrelo Niške Banje jedino termalno vrelo. Ispitivanja su pokazala da je koncentracija radona u vodama ostalih vrela neznatna i čak manja od normalnih. To znači da na ostalim vrelima ne postoji značajnija akumulacija.

U ovom smeru su ispitana i dva dalja područja i to Keževica kod Štipa i Banjsko kod Strumice u Makedoniji. Područje Keževice nije pokazalo pojavu akumulacije bar što se tiče površinskih slojeva. Međutim površinski teren nizvodno od termalnog vrela Banjsko kod Strumice pokazuje akumulaciju po intenzitetu sličnu onoj u Niškoj Banji. Teren koji je natapala voda ovog vrela ima povećanu radioaktivnost. Upoređenja sa brojačem i koncentracijom radona izvađenog iz terena pokazuju da njegova radioaktivnost odgovara onoj u Niškoj

Banji. I ovde radioaktivnost terena opada idući od vrela nizvodno. No ovde se javlja izvesna razlika jer teren sadrži urana čiji odnos prema radiumu približno odgovara radioaktivnoj ravnoteži. To znači da je ovde izvršena akumulacija urana. Isto tako neki izvori nizvodno od vrela pokazuju povećanu koncentraciju radona što se može tumačiti na sličan način kao i na terenu Niške Banje.

Izrazit primer ovakve akumulacije ustanovljen je i ispod vrela u Banjskom kod Debra. Brojačem je ustanovljena povećana radioaktivnost slojeva bigra, koje je očito nataložila voda vrela. Radioaktivnost vode vrela, cenjena prema sadržaju radona, je relativno mala i kreće se u granicama od $0,7 - 1,5 \cdot 10^{-9}$ Curie/lit. Međutim neki manji izvori nizvodno od vrela, a koji ističu iz pomenutih naslaga bigra imaju daleko veći sadržaj radona koji se nekad kreće i preko $40 \cdot 10^{-9}$ Curie/lit.

Prema nepotpunim podacima pojava slične akumulacije postoji i na nekim izvorima hladne vode na Kopaoniku i na termalnom vrelu Soko Banje.

Iako je možda broj ispitanih slučajeva mali da bi se dobio statistički zaključak o procentualnom broju vrela koja pokazuju pojavu opisane akumulacije, ipak dati podaci pokazuju da su kod 4 ispitana područja ustanovljena tri slučaja akumulacije. Sa druge strane može se uočiti i sledeća činjenica. Izvor kod Školske česme u Niškoj Banji i izvori ispod naslaga bigra u Banjskom kod Debra spadaju među najradioaktivnije vode u zemlji a njihova radioaktivnost je nesumnjivo posledica procesa akumulacije

Iz ovoga bi se moglo izvesti zaključak da pomenuti procesi akumulacije mogu u velikoj meri da izmene proporciju među radioaktivnošću terena i radioaktivnosti vode koja iz njega ističe. Procenu radioaktivnosti terena na osnovu radioaktivnosti voda treba prema tome vršiti sa znatnom rezervom s obzirom na mogućnosti akumulacije. Slučaj poslednjeg citiranog izvora pokazuje da i najradioaktivnije vode ne mora da znače povećani sadržaj urana u terenu. Ovo se, naravno, odnosi na radioaktivnost širih područja terena. Ako se na terenu pojavljuje voda povećane radioaktivnosti onda je to svakako znak da se na putu vode nalaze povećane koncentracije radioaktivnih supstancija. Ali takav povećani sadržaj je samo lokalnog značaja u slučajevima kada postoje opisani efekti akumulacije. U oba citirana slučaja gde je akumulacija ustanovljena radioaktivno područje je lokalizovano na uzan domen duž toka potoka i na relativno malim dužinama duž ovog toka.

U literaturi se često iznose gledišta nekih autora da na opštu radioaktivnost terena ne mogu imati značajan uticaj deponovane radioaktivne supstance kraćeg perioda kao što su jonium i radium. Ovo se objašnjava činjenicom da su geološki slojevi obično mnogo stariji nego što iznosi period ovih radioaktivnih tela te se za to vreme njihove količine morale smanjiti na neznatnu meru. Kad se uzme u obzir prosečna radioaktivnost na većim područjima onda se ovo gledište može smatrati korektnim, ma da postoje i drugi ustanovljeni procesi koji omogućuju i veća područja sa poremećenom radioaktivnom ravnotežom. Neki autori međutim, prenose ovakva gledišta i na slučajeve kada se vrši procena sadržaja urana na terenu prema radioaktivnosti voda. U takvim slučajevima opisani procesi akumulacije svakako ne mogu biti zanemarljivi te bi ta gledišta trebalo upotpuniti mogućnostima pojave akumulacije.

L I T E R A T U R A

1. Brunowsky, B., Studien Über die Koncentration des Radiums durch Lebewesen, Acad. Sci. U.R.S.S. pp 9—25. 1932
2. Horowitz—Paneth,—Z. Phys. Ch. 89,573 1915
3. Arndt H. R., Kuroda K. P., Radioaktivität of rivers and lakes in part of Gorland and Hot Spring Counties, Arkansas, Econ. Geol. 48; 551—567 1953
4. Kuroda K. P., Damon P. E., Hyde H. J. Radioaktivität of the spring waters of Hot Springs National park and vicinity in Arkansas, Am. J. Sci 252; 76—86 1954
5. Natural radioaktivität of water, Jnd. Eng. Chem. 43; 1541—1544 1951
6. Miholić S., Radioaktivität of Waters issuing from sedimentary rocks, Econ. Geol^{*} 47; 543—547 1952
7. Vučić V. Radioaktivnost voda i gasova Niške Banje i njihovo aktiviranje. S. A. N. knj. CLXII, 1950
8. Vučić V., Mogućnost analize sedimentni geoloških slojeva na osnovu spontano deponovanog radiuma, Vesnik D. F. i M. NRS; VI, 3—4 1954

S U M M A R Y

A CONTRIBUTION TO THE PROBLEM OF SPONTANEOUS ACCUMULATION
OF RADIOACTIVE MATTERS ON THE GROUND

An aproximate analysis of he action of the spontaneous accumulation of radioactive matters on the radioactivity of waters on the ground is given. The checkings made with measured and estimated values in the field are found to be in good agreement with the theory. The results of measurement show that the action of the spontaneous accumulation on the radioactivity of the ground and waters is more significant and more frequent than is believed in many cases.