



Istraživanja okolišne radioaktivnosti visokorezolucijskom gamaspektrometrijom

Mihaela Justić, Branko Petrinec, Dinko Babić¹

Uvod

Radioaktivnost i prateća izloženost zračenju ponekad se shvaćaju kao ekološki problemi koji su stvoreni od strane moderne znanosti i tehnologije. Međutim, naš svijet je radioaktivan te je oduvijek takav i bio. Prirodna radioaktivnost potječe od izvanzemaljskih izvora, kao i od radioaktivnih elemenata u Zemljinoj kori. Radionuklidi se prirodno nalaze u zraku, vodi i tlu. Oni se čak mogu naći i u nama, jer smo i mi proizvod našeg okruženja. Svaki dan udišemo i uzimamo radionuklide iz zraka, hrane i vode. Prirodna radioaktivnost je uobičajena u stijenama i tlu koje čine naš planet, u vodama i oceanima, građevinskom materijalu i domovima. Nigdje na Zemlji nema mjesta na kojem se ne može pronaći prirodna radioaktivnost. Procjena radioaktivnosti u određenom mjestu, njezina varijabilnost u prostoru i vremenu uzima u obzir mnoge varijacije zbog geologije regije, kemijske i fizičke mobilnosti prirodnih radionuklida i čovjekovog utjecaja na okoliš. Preko 340 nuklida je pronađeno u prirodi, od čega su njih oko 80 radioaktivni (radioaktivni izotopi ili radionuklidi). Svi kemijski elementi imaju radioaktivne izotope, a svi izotopi elemenata s atomskim brojevima većim od 83 su radioaktivni. Radioaktivni nuklidi mogu se podijeliti u tri opće skupine:

– praiskonski (primordijalni) – izotopi kemijskih elemenata na Zemlji koji su u svom sadašnjem obliku postojali prije Zemljinog nastanka (npr. ^{40}K , ^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th), te produkti raspada uranija i torija koji su također radioaktivni;

– kozmogeni – proizvedeni interakcijom kozmičkih zraka s atomima u atmosferi (npr. ^3H , ^7Be , ^{10}Be , ^{14}C , ^{36}Cl);

– antropogeni – proizvod ljudske aktivnosti, uglavnom u manjem iznosu u odnosu na prirodnu radioaktivnost (npr. ^3H , ^{14}C , ^{36}Cl , ^{131}I , ^{129}I , ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{99}Tc , ^{239}Pu , ^{85}Kr).

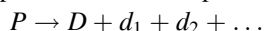
Ljudska svijest o postojanju ionizirajućeg zračenja potječe tek od prijelaza iz 19. u 20. stoljeće. Radioaktivnost je 1896. otkrio H. Becquerel, a otkriće se dogodilo dok je eksperimentirao s fosforescencijom u spojevima urana. Radioaktivnost nije niti mogla biti otkrivena mnogo prije te godine jer je nemjerljiva prostim ljudskim osjetilima. Također, fotografska tehnika koja je pridonijela njegovom otkriću nije bila adekvatno razvijena u 19. stoljeću. Dva otkrića koja su promijenila putanju znanosti i povijest odigrala su se do kraja 19. stoljeća: otkriće Röntgenovih zraka u Njemačkoj 1895. godine nakon čega slijedi Becquerelovo otkriće radioaktivnosti u Francuskoj početkom 1896. godine. Ovi

¹ Djelatnici su Instituta za medicinska istraživanja i medicinu rada, Zagreb.

potpuno neočekivani događaji otvorili su vrata novim spoznajama o nastajanju u svijetu jezgri atoma i visokih energija nuklearnog zračenja. Nakon Becquerelovog otkrića, trebalo je oko 35 godina intenzivnog znanstvenog rada da bi se radioaktivni atomi mogli proizvesti od stabilnih atoma umjetnim putem. Pritom je razvijen koncept izotopa, te otkriven neutron. Metode koje su danas razvijene omogućuju proizvodnju više od 2000 radioizotopa kemijskih elemenata iz periodnog sustava. Ionizirajuće zračenje i izvori radioaktivnosti, odnosno radionuklidi, postali su nužni dio našeg svakodnevnog života. Količina i kvaliteta naše hrane, naše zdravlje, opće dobrobiti, a time i naš produljeni životni vijek rezultat su velikim dijelom radioaktivnih izvora i njihovih brojnih primjena u medicini, biologiji, poljoprivredi, industriji i proizvodnji električne energije.

Paralelno s brzim razvojem nuklearne industrije i korištenjem radioaktivnih izotopa, radioaktivni materijal se otpušta u okoliš iz različitih izvora, kao rezultat radnji počinjenih namjerno ili slučajno, kroz nepažnju ili jednostavno neznanje. Što se tiče globalnih radioloških posljedica, izraženih kao kolektivna efektivna doza na ljude, glavni doprinos onečišćenja okoliša su testiranja nuklearnog oružja te nesreće u ciklusu nuklearnog goriva [1].

Radioaktivnost je fenomen povezan sa spontanom prijelazom (raspadom) nestabilne atomske jezgre uz emisiju energije, što dovodi do formiranja novog elementa. U ovom procesu nestabilni nuklid roditelj P transformira se u stabilniji nuklid kćer D preko različitih procesa. Simbolično, proces možemo zapisati kao:



pri čemu su $d_1 + d_2 + \dots$ emitirane čestice. Otpuštena energija u ovoj transformaciji je u obliku elektromagnetskog ili korpuskularnog zračenja. Ukoliko je i nuklid kćer također nestabilna, proces radioaktivnog raspada se nastavlja dalje dok ne dođe do stabilnog nuklida. Mehanizmi spontanog radioaktivnog raspada jezgre su [2]:

- alfa (α) raspad
- beta-minus (β^-) raspad
- beta-plus (β^+) raspad
- uhvat elektrona (electron capture; EC)

a ostale važne pojave koje prate transformacije jezgre su:

- emisija gama (γ) fotona
- izomerni prijelaz (isomeric transition; IT)
- spontana fisija (spontaneous fission; SF)

Zakon radioaktivnog raspada

Radioaktivni raspad je nasumični proces, stoga ne možemo tvrditi kada će se nestabilna jezgra raspasti. Vjerojatnost da će se jezgra atoma raspasti za vrijeme dt je dana s kdt gdje je k konstanta proporcionalnosti koju još nazivamo i konstanta raspada. U sustavu u kojem ima $N(0)$ atoma na početku, broj atoma koji se raspadnu u vremenu dt je dan s $-dN = kNdt$, što se u granici malih vremena može zapisati i kao:

$$\frac{dN}{dt} = -kN. \quad (1)$$

Rješavanjem ove jednadžbe dobivamo

$$N(t) = N(0)e^{-kt} = N(0)2^{-\frac{t}{T_{1/2}}}. \quad (2)$$

Vrijeme za koje broj atoma padne na polovicu početne vrijednosti naziva se vrijeme poluraspada $T_{1/2}$. Vrijeme poluraspada je povezano s konstantom raspada na način:

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{k} \approx \frac{0.693}{k}. \quad (3)$$

Broj raspada po jediničnom vremenskom intervalu je aktivnost A definirana kao

$$A = -\frac{dN}{dt} = kN. \quad (4)$$

Pri čemu se pretpostavlja da N opada zbog raspada. SI mjerna jedinica aktivnosti je *Becquerel* (1 Bq = jedan raspad u sekundi). Često se koristi i mjerna jedinica *Curie* (Ci). 1 Ci = $3.7 \cdot 10^{10}$ Bq, a odgovara aktivnosti jednog grama ^{226}Ra . Specifična aktivnost je definirana kao broj raspada po jedinici težine ili volumenu uzorka.

Mnogi nuklidi raspadaju se na više načina. Ako promotrimo radionuklid koji se raspada na dva načina (1 i 2), vjerojatnost da se taj atom raspadne procesom 1 u vremenu dt je $k_1 dt$. Slično, vjerojatnost da će se raspasti procesom 2 u vremenu dt je $k_2 dt$. Stoga se jednadžba koja određuje radioaktivni raspad može zapisati kao:

$$\frac{dN}{dt} = -(k_1 + k_2)N. \quad (5)$$

Ukupna konstanta raspada nuklida roditelja je zbroj pojedinačnih konstanti tj. $k = k_1 + k_2$.

Omjeri grananja za način raspada 1 i 2 su definirani kao $BR_1 = \frac{k_1}{k}$ i $BR_2 = \frac{k_2}{k}$.

Općenito, omjer grananja BR (*branching ratio*) za određeni raspad se definira kao omjer broja atoma koji se raspadaju tim raspadom naprama ukupnom broju jezgara koje se

raspadnu: $BR_i = \frac{k_i}{k_1 + k_2 + \dots + k_i \dots} = \frac{k_i}{k}$.

Visokorezolucijska gamaspektrometrija

Gama-zrake interagiraju s materijom detektora, a njihova detekcija ovisi o proizvodnji nabijenih sekundarnih čestica koje mogu proizvesti električni signal. Mehanizmi interakcije gama-zračenja s materijom su: fotoelektrični efekt, Comptonovo raspršenje i tvorba para.

Fotoelektrični efekt je interakcija upadnog fotona s atomom ozračene tvari u kojoj foton predaje svu svoju energiju vezanom elektronu u elektronskom omotaču atoma tvari, pri čemu ga izbacuje iz njegove orbitale s kinetičkom energijom

$$E_e = E_\gamma - E_b, \quad (6)$$

gdje je E_γ energija gama-zrake, a E_b energija vezanja elektrona u atomu. Izbačeni elektron u tvari gubi energiju ionizacijom, pobuđenjem atoma, zakočnim zračenjem i konverzijom kinetičke u termičku energiju. Izbijeni fotoelektron uzrokuje pojavu Augerovog elektrona ili rentgenskih zraka zbog popunjavanja praznog mjesta u elektronskom omotaču elektronima iz viših orbitala.

Comptonovo raspršenje je proces sudara ulaznog fotona i elektrona u kristalu kojeg možemo smatrati "slobodnim" (zanemarive energije vezanja). Energija ulaznog fotona nakon sudara preraspodjeljuje se na odbijeni elektron i raspršeni foton. Energija

raspršenog fotona dana je s

$$E = \frac{hv}{1 + \frac{(1 - \cos \theta) hv}{mc^2}} \quad (7)$$

gdje je h Planckova konstanta, v valna duljina fotona prije raspršenja, θ kut pod kojim se rasprši foton, m masa elektrona, a c brzina svjetlosti.

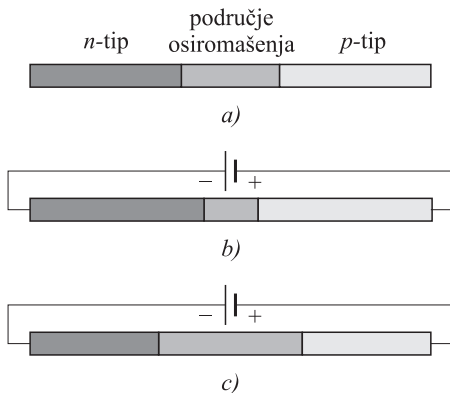
Ako foton ima energiju veću od 1.022 MeV (dvije mase mirovanja elektrona), može doći do procesa koji se naziva tvorba para. U tom procesu upadni foton nestaje, a njegova energija se pretvara u masu mirovanja stvorenog para elektron-pozitron i njihovu kinetičku energiju. Proces je radi zakona očuvanja energije i impulsa moguć samo u polju jezgre koja bi primila dio impulsa.

Kako navedene interakcije omogućuju da se gama-zračenje zabilježi u detektoru, glavni zahtjev za detektorski materijal bit će osjetljivost na gama ionizaciju i veliki volumen prema površini (veći broj interakcija znači i veći broj zabilježenih gama-zraka). Između mnogo vrsta gama detektora (npr. plinski, scintilacijski, poluvodički detektori) za detekciju zračenja okolišnih uzoraka kao najbolje rješenje pokazali su se poluvodički detektori, zbog svoje robusnosti i jednostavnosti s jedne strane, a opet velike osjetljivosti na gama-zračenje s druge. Poluvodič je za visokoenergijsko zračenje ionizacijska komora u čvrstom stanju, a ionizacijom stvoreni naboji se sakupljaju preko primijenjenog napona i direktno doprinose stvaranju električnog signala.

Kod apsolutno čistih poluvodičkih materijala toplinska pobuda će uzrokovati da određen broj elektrona iz valentne vrpce prijeđe u vodljivu, za sobom ostavljajući jednaki broj pozitivno nabijenih šupljina. Energija pobuđenja električki vodljivog naboja je kod Si i Ge reda veličine 1 eV (10^5 K). Vjerojatnost da će elektron preskočiti u vodljivu vrpcu raste s temperaturom kao [3]

$$p(T) \propto T^{\frac{3}{2}} \exp\left(-\frac{E_g}{2kT}\right) \quad (8)$$

(k je Boltzmannova konstanta) pa je na sobnoj temperaturi električna vodljivost mala.



Slika 1. a) p - n spoj bez primijenjenog napona,
 b) p - n spoj pri propusnoj polarizaciji,
 c) p - n spoj pri nepropusnoj polarizaciji.

vog naboja, a takvo područje naziva se područje osiromašnja. Ako se na takav p - n spoj priključi napon tako da je plus napon na p -poluvodiču, a minus na n -poluvodiču,

Naravno, nije moguće pripremiti materijal potpuno slobodan od nečistoća, što u poluvodičima može imati značajan učinak na vodljivost. Defekti u kristalnoj strukturi stvaraju lokalizirana stanja slabo vezanih elektrona koja su podložnija termičkoj aktivaciji, što na kraju povećava vodljivost. Jedan od načina povećanja vodljivosti je dopiranje poluvodiča donorskim, odnosno akceptorskim primjesama. Donori unose višak elektrona te stvaraju n -tip poluvodiča, a akceptori unose višak šupljina i stvaraju p -tip. Relativno mala energija termičke aktivacije (10–100 meV) za te dodane elektrone i šupljine dovest će do povećane vodljivosti [4]. Ukoliko se n i p tip poluvodiča dovedu u kontakt, višak šupljina se međusobno poništi s viškom elektrona te se stvori područje bez vodli-

područje osiromašenja se smanji i preko njega teče električna struja te se takav spoj naziva propusnopolarizirani $p-n$ spoj. Ako $p-n$ spoj priključimo na suprotne polove (plus napon na n -poluvodič, a minus na p -poluvodič), područje osiromašenja će se proširiti, te ovu polarizaciju nazivamo nepropusnom (slika 1).

Kod nepropusne polarizacije (u idealnom slučaju) puls električne struje mogu dati samo parovi elektrona i šupljina koji su stvoreni u području osiromašenja odlaganjem energije izvana. Kad brze nabijene čestice ili gama-zrake prolaze kroz ovaj osiromašeni sloj, izbacuju elektrone najčešće u stanja u kontinuumu. Ti primarni elektroni stvaraju pljusak elektrona pa se nakon brzih sudarnih procesa u osiromašenom sloju nalazi određeni broj elektrona i šupljina u vodljivoj odnosno valentnoj vrpci. Elektroni i šupljine su zatim privučeni na elektrode i na taj način dobiva se električni puls koji se detektira, a naboj prikupljen na elektrodama proporcionalan je energiji upadnog zračenja.

Za identifikaciju i kvantifikaciju aktivnosti radionuklida potrebna je kalibracija sustava. Pravilna kalibracija osigurava da se spektri gama-zraka pravilno interpretiraju u smislu energije i aktivnosti. Tri su glavna parametra:

- energijska kalibracija (energija u odnosu na broj kanala),
- oblik vrha ili FWHM (*FullWidth at Half Maximum*) u odnosu na energiju,
- kalibracija efikasnosti (odnos između broja detektiranih fotona i aktivnosti).

Energijska kalibracija se postiže mjerenjem spektra izvora s poznatim *full-peak* energijama, što se postiže korištenjem standardnih izvora ili certificiranih referentnih materijala, čije su aktivnosti dobro poznate. Bitno je da se izvori standarda sastoje od poznatih energetskih vrhova koja obuhvaća cijelo područje energija preko kojeg se koristi spektrometar, a brojanje traje toliko dugo da se položaj vrha odredi s točnošću manjom od 0.5 keV. Položaji vrhova koriste se za utvrđivanje koeficijenata funkcije za oblikovanje (linearne ili kvadratne) koji se memoriraju za naredne proračune energija mjerenih vrhova u spektru uzorka. Provjera utvrđene energijske kalibracije provodi se na dnevnoj bazi (ili između dva mjerenja uzorka ako mjerenje traje više od 24 sata). Kad se u laboratoriju nadopunjavaju Dewarove posude tekućim dušikom, provjera energijske stabilnosti spektrometra provodi prije i poslije nadopunjavanja. Nesigurnosti reda 1–5 keV u položaju vrha uzduž spektra (porast nesigurnosti s porastom energije gama-zrake) uzorka obično su prihvatljive za ispravnu identifikaciju radionuklida.

Prije mjerenja zračenja uzorka potrebno je provesti mjerenje pozadinskog zračenja okoline (*background*). Ono se mjeri bez uzorka, uz sve geometrijske odnose identične onima pri brojanju uzorka. Vrijeme brojanja pozadinskog zračenja mora biti barem kao i vrijeme brojanja analiziranog uzorka. Vrijeme mjerenja mora biti dovoljno dugo da se osigura statistička nesigurnost ispod 5% za jednu standardnu devijaciju u energijskom području oko 100 keV [5]. U praksi to znači da se osnovno zračenje obično mjeri 80 000 sekundi ili više.

Kvantitativna analiza povezana je s efikasnošću detektora koja se za određenu geometriju definira kao omjer broja pulseva (detektiranih fotona) u vrhu ukupne energije naprama ukupnom broju raspada jezgara u uzorku. Kalibracija efikasnosti stoga podrazumijeva proračun učinkovitosti detektorskog sustava kao funkcije energije. Efikasnost detektora ovisi o geometriji sustava detektor – izvor (odnosno o prostornom kutu iz kojeg će na detektor biti emitirani fotoni), materijalu od kojeg je napravljen detektorski kristal, materijalu koji okružuje detektor i apsorpcije u matrici izvora. Kalibracija efikasnosti potrebna je za svaki geometrijski odnos uzorak – detektor posebno, a to se radi tako da se napravi krivulja efikasnosti detektora kao funkcije energije za određenu geometriju i energijsko područje. Periodično se provode kontrole kalibracije efikasnosti (najmanje jednom godišnje) mjerenjem referentnih tvari poznate aktivnosti.

Računanje koncentracije aktivnosti uzorka

Mjerna veličina kao fizikalni parametar koji se kvantificira mjerenjem u gamaspektrometriji je koncentracija aktivnosti uzorka. Koncentraciju aktivnosti (A_K) radionuklida koji emitiraju gama-zračenje u uzorku računa se prema:

$$A = \frac{N \cdot C_d \cdot C_a}{\epsilon \cdot \gamma \cdot t_s \cdot m}, \quad (9)$$

pri čemu je N ukupni broj pulseva odgovarajućeg vrha:

$$N = N_T - N_B. \quad (10)$$

N_T – ukupni broj pulseva odgovarajućeg vrha u spektru uzorka,

N_B – ukupni broj pulseva odgovarajućeg vrha u spektru pozadinskog zračenja,

t_l – vrijeme brojanja uzorka u sekundama (*lifetime*),

γ – pojavnost zrake (vjerojatnost emisije gama-zrake koja odgovara energiji vrha),

ϵ – efikasnost detektora u energiji promatranog fotovrha,

C_d – ukupan vremenski faktor korekcije,

C_a – ukupan faktor korekcije zbog atenuacije,

m – količina uzorka (masa ili volumen).

Koncentracija aktivnosti izvještava se u Bq po jedinici mase ili volumena uzorka. U svrhu dobivanja što točnijih rezultata mjerenja uzorak je mjereno pod istim uvjetima pod kojim je kalibriran i gamaspektrometrijski sistem.

Da bi se ispitala okolišna radioaktivnost sakupljaju se uzorci tla, vode i zraka te se analiziraju u laboratoriju. Kako bi se uspješno uzorkovao dio okoliša, moraju se razumjeti obilježja i dinamika dijela okoliša koji se uzorkuje. Pojam “uspješan uzorak” odnosi se na uzorak koji istinito i točno opisuje karakteristike dijela okoliša u određenom trenutku [6].

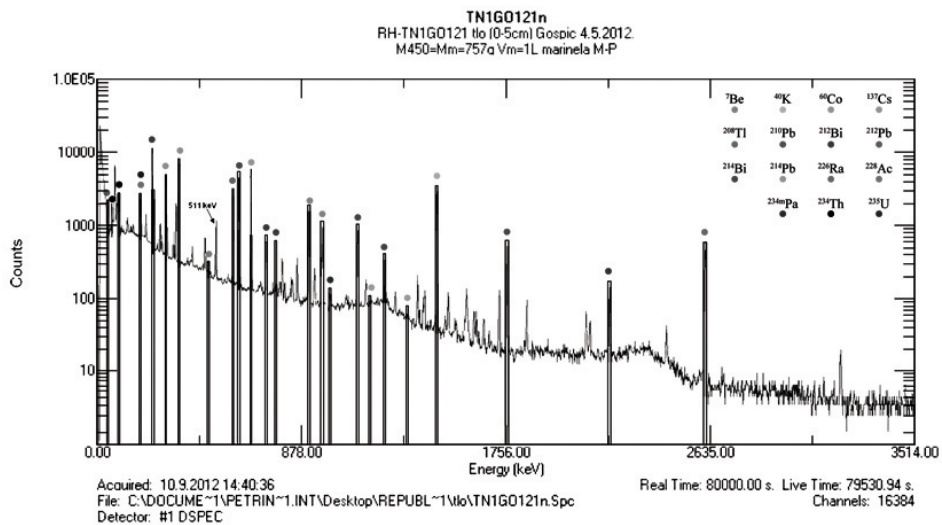
Tijekom planiranja uzorkovanja neka bitna pitanja su [7]:

- agregatno stanje uzorka (čvrsta tvar, tekućina ili plin)
- lokacija, mjesto i pozicija za uzorkovanje
- veličina, količina i volumen uzorka
- broj uzoraka koji se uzimaju
- vrijeme i učestalost uzorkovanja
- homogenost uzorka
- kontaminacija uzorka

Uz informacije o prirodnoj radioaktivnosti, analiza uzoraka iz okoliša pružit će informacije o učincima ljudskih aktivnosti preko akumulacije različitih radionuklida.

Primjer gamaspektrometrije pokazat ćemo na uzorku tla, a svi postupci analize vrijede i za ostale vrste uzoraka iz okoliša. Uzorak tla je iz Gospića, a uzet je na lokaciji koja je određena za monitoring. Tlo je neobrađeno, dubina uzimanja je 0–5 cm. Tlo je uzorkovano i pripremljeno prema standardnoj proceduri. Masa uzorka je 0.757 kg. Geometrija je plastična cilindrična kutijica (Marinelli posuda) jednaka onoj u kojoj je kalibracijski standard. Na slici 2 prikazan je mjereno spektralno područje tog uzorka, dobiven gamaspektrometrijom. Spektralno područje je prikazano kao ukupni broj pulseva u ovisnosti energiji.

Energijski raspon je od oko 0 do 2500 keV. U gamaspektroskopiji površina pojedinog fotovrha je mjera aktivnosti radionuklida povezanog s pojedinom gama-zrakom.



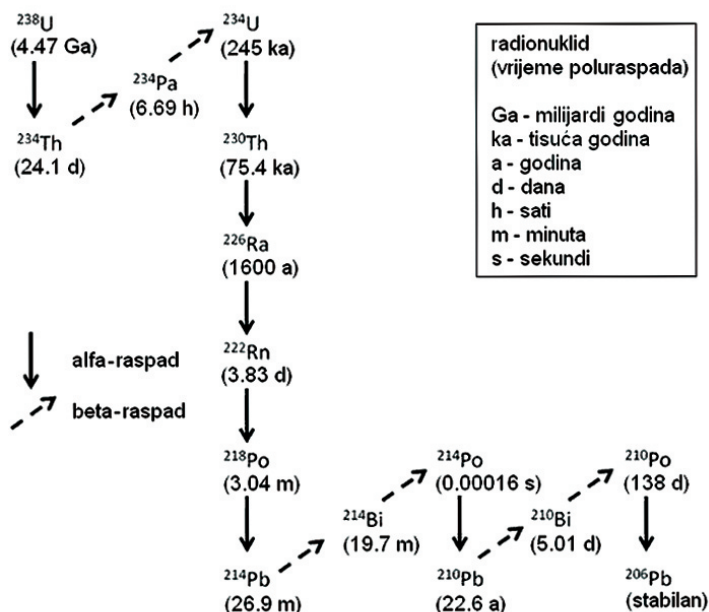
Slika 2. Spektar uzorka tla RH-TN1G0121.

U ovom spektru zabilježeni su fotovrhovi radionuklida koji se često javljaju u prirodi: ^{40}K , ^{235}U , pojedini nuklidi iz ^{238}U niza (^{210}Pb , ^{214}Bi , ^{214}Pb , ^{226}Ra , ^{234m}Pa , ^{234}Th) te nuklidi iz ^{232}Th niza (^{212}Bi , ^{212}Pb , ^{228}Ac). Također, prisutan je fotovrh ^7Be , koji nastaje interakcijom kozmičkih zraka s dušikom i kisikom u gornjoj atmosferi.

Tablica 1. Rezultati mjerenja koncentracije aktivnosti uzorka tla u Gospiću.

radionuklid	Bq/ kg	\pm	2Σ
^{40}K	505.0	\pm	3.07
^{137}Cs	40.1	\pm	0.212
^{134}Cs	0,118	\pm	0.0464
^{232}Th	51.7	\pm	0.403
^{228}Ra	51.7	\pm	0.403
^{208}Tl	17.8	\pm	0.146
^{238}U	55.4	\pm	2.34
^{226}Ra	62.1	\pm	0.338
^{214}Pb	69.2	\pm	0.366
^{214}Bi	62.1	\pm	0.338
^{210}Pb	82.2	\pm	2.09
^{235}U	2.59	\pm	0.109

Može se primijetiti ponavljanje istih ili bliskih koncentracija nekih izotopa, nastalih raspadom urana i torija. To je posljedica *sekularne ravnoteže*, koja nastupa kada se jednako mnogo radioizotopa stvara i raspada, npr. ^{226}Ra u lancu raspada ^{238}U . Neke od metoda određivanja starosti uzoraka baziraju se na omjerima takvih izotopa, a za ilustraciju prikazan je lanac raspada ^{238}U , do stabilnog izotopa olova, ^{206}Pb .



Slika 3. Lanac raspada ^{238}U .

Zaključak

Navedeni primjer gamaspektrometrijskog mjerenja uzorka tla dobro ilustrira mogućnosti uređaja i vidljivo je da se mogu mjeriti vrlo male aktivnosti i različiti radionuklidi. Nadzor nad radioaktivnošću je definiran zakonskom regulativom (Zakon o radiološkoj i nuklearnoj sigurnosti, Narodne novine RH 141/2013, prateći zakonski akti i Pravilnik EU (EC) No 733/2008). Radi se o kontroli prvenstveno fisijskih radionuklida ^{137}Cs i ^{134}Cs čija koncentracija aktivnosti mora biti manja od 600 Bq/kg za živežne namirnice. Možemo navesti neke okvirne vrijednosti ^{137}Cs za pojedine namirnice: jadranska srdela oko 6 Bq/kg [8], krumpir oko 0.05 Bq/kg [9], a mlijeko u zagrebačkoj regiji je oko 0.04 Bq/l [10]. Praćenje stanja radioaktivnosti životne sredine u Republici Hrvatskoj pokazalo je da su vrijednosti koncentracija radioaktivnosti puno manje od dozvoljenih granica. Ipak, provođenje opsežnog nadzora, praćenje i istraživačke aktivnosti nužni su da bi se procijenila količina radioaktivnosti koja je u okolišu prisutna bilo zbog prirodnih izvora bilo zbog različitih kontaminacija uzrokovanih ljudskom djelatnošću.

Literatura

- [1] *Sources and Effects of Ionizing Radiation: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation UNSCEAR 2008 Report to the General Assembly, With Scientific Annexes*, United Nations, New York, 2008.
- [2] J. MAGILL, J. GALY, *Radioactivity, Radionuclides, Radiation*, Springer, Berlin, 2005.
- [3] G. R. GILMOR, *Practical Gamma-ray Spectrometry*, – 2nd Edition, John Wiley & Sons, 2008.
- [4] D. BABIĆ, *Fizikalni principi rada nekih suvremenih detektora ionizirajućeg zračenja*, Zbornik radova VIII. Simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja, Krajcar Bronić, i dr. (ur.), Zagreb, Hrvatsko društvo za zaštitu od zračenja, 2011, 71–76.
- [5] *Institut za medicinska istraživanja i medicinu rada. Visokorezolucijska gamaspektrometrija – određivanje radionuklida visokorezolucijskom gamaspektrometrijom u energijskom rasponu od 40 do 2000 keV*, Radna uputa RU-602-5.4-1
- [6] A. R. CONKLIN, R. MEINHOLTZ, *Field sampling, Principles and practices in environmental analysis*, Marcel Dekker, New York, 2005.
- [7] P. HOFFMAN, *General Aspects of Environmental Sampling*, u *Environmental Sampling for Trace Analysis*, VCH, Weinheim, 1994.
- [8] ZDENKO FRANIĆ, BRANKO PETRINEC, GINA BRANICA, GORDANA MAROVIĆ, DRAGAN KUBELKA, ZRINKA FRANIĆ, *Post-Chernobyl investigations of radiocaesium activity concentrations in Adriatic Sea pilchards*, *Radiation protection dosimetry*, 151 (2012), 2; 314–322.
- [9] ZDENKO FRANIĆ, BRANKO PETRINEC, GORDANA MAROVIĆ, ZRINKA FRANIĆ, *Radiocaesium Activity Concentrations in Potatoes in Croatia after the Chernobyl Accident and Dose Assessment*, *Journal of Environmental Science and Health – Part B: Pesticides, Food Contaminants, and Agricultural Wastes*, 42 (2007), 2; 211–217.
- [10] IVA FRANULOVIĆ, BRANKO PETRINEC, MILICA KOLAR, ^{137}Cs i ^{90}Sr u mlijeku zagrebačke regije, Zbornik radova IX. simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja, Željka Knežević, Marija Majer, Ines Krajcar Bronić, (ur.), Zagreb, HDZZ-CRPA, 2013, 211–215.