ADSORPCIJA RADONA IZ VODE NA MAGNETITU (Fe3O4)

Namestnik, Josipa

Master's thesis / Diplomski rad

2023

Degree Grantor / Ustanova koja je dodijelila akademski / stručni stupanj: **Josip Juraj Strossmayer University of Osijek, Department of Physics / Sveučilište Josipa Jurja Strossmayera u Osijeku, Odjel za fiziku**

Permanent link / Trajna poveznica: https://urn.nsk.hr/urn:nbn:hr:160:251429

Rights / Prava: In copyright / Zaštićeno autorskim pravom.

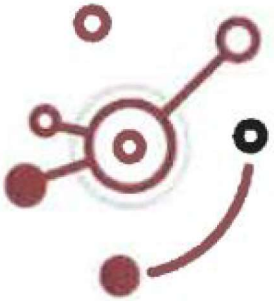
Download date / Datum preuzimanja: **2024-04-26**

Repository / Repozitorij:

Repository of Department of Physics in Osijek

SVEUČILIŠTE JOSIPA JURJA STROSSMAYERA U OSIJEKU

ODJEL ZA FIZIKU



JOSIPA NAMESTNIK

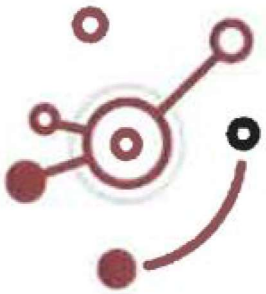
ADSORPCIJA RADONA IZ VODE NA MAGNETITU (Fe_3O_4)

Diplomski rad

Osijek, 2023.

SVEUČILIŠTE JOSIPA JURJA STROSSMAYERA U OSIJEKU

ODJEL ZA FIZIKU



JOSIPA NAMESTNIK

ADSORPCIJA RADONA IZ VODE NA MAGNETITU (Fe_3O_4)

Diplomski rad

Predložen Odjelu za fiziku Sveučilišta Josipa Jurja Strossmayera u Osijeku radi stjecanja akademskog naziva MAGISTRA EDUKACIJE FIZIKE I INFORMATIKE

Osijek, 2023.

„Ovaj diplomski rad je izrađen u Osijeku pod mentorstvom izv. prof. dr. sc. Vanje Radolića i sumentorstvom doc.dr.sc. Gorana Šmita u sklopu Sveučilišnog diplomskog studija fizike i informatike na Odjelu za fiziku Sveučilišta Josipa Jurja Strossmayera u Osijeku.“

Sadržaj

1. UVOD....1
2. RADIOAKTIVNOST....2
2.1. Otkriće radioaktivnosti....2
2.2. Građa atoma....6
2.3. Vrste radioaktivnog zračenja....10
2.4. Utjecaj zračenja na ljude....13
2.5. Zakon radioaktivnog raspada....15
2.6. Aktivnost radionuklida....18
2.7. Raspad jezgre roditelja i jezgre kćeri....19
3. RADON....21
3.1. Mjerenje koncentracije aktivnosti radona u vodi....24
4. ADSORPCIJA....30
4.1. Adsorpcija radona u vodi....34
5. MJERENJA I REZULTATI....37
5.1. Postupak mjerenja....37
5.2. Rezultati mjerenja....41
6. ZAKLJUČAK....52
7. LITERATURA....54
8. ŽIVOTOPIS....57

Temeljna dokumentacijska kartica

Sveučilište Josipa Jurja Strossmayera u Osijeku

Odjel za fiziku

Diplomski rad

ADSORPCIJA RADONA IZ VODE NA MAGNETITU (Fe_3O_4)

JOSIPA NAMESTNIK

Sažetak: Radon je radioaktivni plin bez boje, okusa i mirisa te je on dio našeg prirodnog okruženja. Pronalazimo ga u tlu, vodi i zraku oko nas, a najviše ga ima u tlu bogatom radijem i uranijem jer radon nastaje raspadom tih radionuklida. Radon tijekom raspada emitira alfa česticu koja može ionizirati ljudsko tkivo do razine DNA dođe li u doticaj s njime. S obzirom na opasnost koju predstavlja za ljudsko zdravlje, potrebno je pronaći načine kojima možemo smanjiti njegovu koncentraciju. Mnogi znanstvenici navode metodu filtriranja vode pomoću aktivnog ugljena u granulama kao vrlo uspješnom u smanjenju koncentracije radona u vodi, no nedostatak te metode je stvaranje radioaktivnog otpada. U ovom diplomskom radu istražena je adsorpcija radona iz vode pomoću željezovog oksida – magnetita u područjima svih pH vrijednosti. Rezultati su prikazani Langmuirovom i Freundlichovom izotermom te je iz istih vidljivo da se magnetit može koristiti kao adsorbens.

Rad je pohranjen u knjižnici Odjela za fiziku

Ključne riječi: radon, magnetit, adsorpcija, Langmuirova izoterma, Freundlichova izoterma

Mentor: izv. prof. dr. sc. Vanja Radolić

Sumentor: doc. dr. sc. Goran Šmit

Ocjenjivači: izv. prof. dr. sc. Vanja Radolić, doc. dr. sc. Goran Šmit, doc. dr. sc. Marina Poje Sovilj, mr. sc. Slavko Petrinšak

Rad prihvaćen: 21. ožujka 2023.

Basic documentation card

University Josipa Jurja Strossmayera Osijek

Department of Physics

Bachelor of Physics Thesis

ADSORPTION OF RADON IN WATER ON MAGNETITE (Fe_3O_4)

JOSIPA NAMESTNIK

Abstract: Radon is a radioactive gas without color, taste and smell and it is a part of our natural environment. We find it in soil, water, and air around us, but radon is the most concentrated in soils enriched by radium and uranium because it is a part of uranium radioactive decay series. Radon emits an alpha particle during decay that can ionize human tissue to the level of DNA. Due to its risk for human health, different approaches are applied to reduce its concentration in environment. The water purification by granulated activated charcoal method is very successful for reduction of radon in water, but the flaw of this method is generation of radioactive waste. In this thesis, the adsorption of radon in water using iron oxide – magnetite in areas of all pH values was investigated. The results are shown by Langmuir and Freundlich isotherm and it is evident from them that we can use magnetite as adsorbent.

Thesis deposited in Department of Physics library

Keywords: Radon, Magnetite, Adsorption, Langmuir Isotherm, Freundlich Isotherm

Supervisors: Vanja Radolić, PhD, Assoc, Prof, Goran Šmit, PhD, Asst, Prof

Reviewers: Vanja Radolić, PhD; Goran Šmit, PhD; Marina Poje Sovilj, PhD; Slavko Petrinšak, MSc

Thesis accepted: March 21th, 2023

1. UVOD

U medijima nas često upozoravaju o posljedicama umjetnog zračenja, proizvedenog ljudskom greškom, no rijetko se govori o prirodnom zračenju koje je dio našeg okruženja. Kako ljudi, tako i ostala živa bića na Zemlji izloženi su utjecaju prirodnog zračenja. U prirodne izvore zračenja spada i radon koji čini 51% udjela u godišnjoj efektivnoj dozi koju svaki pojedinac primi od različitih izvora zračenja.

Radon je plemeniti, radioaktivni plin bez boje okusa i mirisa. Radon pronalazimo u tlu, vodi i zraku oko nas, a na njegovu prisutnost uvelike utječe sastav tla. Tlo bogato radijem i uranijem je najčešće bogato i radonom jer radon nastaje radioaktivnim raspadom radija. Radon predstavlja opasnost za ljudsko zdravlje kad ga inhalacijom ili ingestijom unosimo u organizam. Jezgra radona tijekom transmutacije u drugu jezgru emitira alfa česticu koja može ionizirati tkivo do razine DNA i oštetiti je. Prvi zabilježeni slučaj utjecaja izloženosti radonu jest misteriozno obolijevanje (od karcinoma pluća, kako se danas vjeruje) i povećana smrtnost rudara u rudnicima diljem Srednje Europe u 16. stoljeću. Nadalje, neka istraživanja su pokazala da postoji poveznica između gastroenterološkiih i nefroloških oboljenja, no ta veza nije posve jasna [1] [2] [3].

Koncentracija radona u građevinama uvelike ovisi o koncentraciji radona u tlu na kojemu se nalazi građevina jer on kroz pukotine u tlu i zidovima dospijeva unutar građevine. Osim toga, koncentracija radona u građevinama ovisi o brojnim prirodnim i tehničkim parametrima koji su detaljnije opisani u diplomskom radu, a donekle ju možemo smanjiti čestim provjetravanjem prostorija [2].

Podzemne vode smatramo glavnim izvorom slatke vode na Zemlji, a značajno povećanje upotrebe podzemnih voda uzrokovale su klimatske promjene i razdoblja suša u pojedinim područjima [4]. U Republici Hrvatskoj gotovo 90% vode za potrebe vodoopskrbe se crpi iz zahvata podzemnih voda na crpilištima i izvorištima. Osim toga, mnoga kućanstva i dalje koriste bunare i bušotine u tlu za vodoopskrbu [5]. Ako voda prolazi kroz tlo bogato radonom, on će se otopiti u vodi i korištenjem te vode dolazimo u direktan doticaj s radonom [6].

Kao jedan od načina smanjivanja koncentracije radona autori navode provjetravanje i sustav filtriranja vode pomoću granula aktivnog ugljena. Iako su učinkovite, ove metode imaju neke nedostatke. Nedostatak prve metode jest povećanje koncentracije radona u zraku, dok je

nedostatak druge metode taloženje radona na filteru koji se zatim raspada na jezgre s dugim vremenom poluraspada, odnosno postoji opasnost od radioaktivnog otpada [7] [8] [9].

U ovom diplomskom radu istražit ćemo adsorpciju radona iz vode na željezovom oksidu – magnetitu te kako ona ovisi o pH vrijednosti vodenih otopina radona.

2. RADIOAKTIVNOST

Radioaktivnost je naziv za spontanu pretvorbu jezgre nekog kemijskog elementa u drugu jezgru uz emitiranje čestica ili zračenja. Često tu pojavu zovemo radioaktivnim raspadom, no to nije sasvim točan naziv jer raspad podrazumijeva nestajanje jezgre dok ona zapravo ne nestaje već se jezgra atoma s viškom energije pretvori u stabilniju jezgru [10] [11].

Kako bi jezgra ostala stabilna, mora imati uravnoteženi broj protona i neutrona. Ukoliko je njihov omjer velik, jezgra je nestabilna te se počinje spontano raspadati kako bi prešla u stabilnije stanje. Atome s nestabilnim jezgrama zovemo radionuklidima. Takvu jezgru zovemo još jezgra roditelj (jezgra majke) i označavamo ju s X, a novonastalu jezgru zovemo jezgra potomak ili jezgra kćeri i označavamo ju s Y. Većina radionuklida se samo jednom raspadne prije nego postanu stabilni. Postoje i oni radionuklidi koji se raspadaju nekoliko puta prije nego postignu stabilno stanje te njih zovemo serijskim radionuklidima, dok se niz produkata raspada zove lancem radioaktivnih raspada.

2.1. Otkriće radioaktivnosti

Faradayevo istraživanje prolaska električne struje u plinovima potaknulo je mnoge znanstvenike na daljnja istraživanja vođenja elektriciteta u plinovima. Tako je Julius Plücker 1859. godine otkrio nevidljive zrake koje su izlazile iz katode koje ako padnu na stijenku staklene cijevi, izazivaju svjetlucanje i postaju vidljive. Njegov učenik Hittorf ih je opisao kao zrake koje se šire pravocrtno, a da se pod utjecajem magnetskog polja njihova putanja može zakrenuti. Eugen Goldstein je 1876. godine te zrake nazvao katodnima. Njemački fizičar H. Hertz je otkrio da katodne zrake mogu prolaziti kroz tanke zlatne i aluminijske ploče. Hertzov

asistent P. Lenard je tijekom istraživanja katodnih zraka konstruirao posebnu cijev za njihovo proučavanje. Wilhelm Conrad Röntgen je 8. studenog 1895. godine, proučavajući prolaz katodnih zraka kroz katodnu cijev koju je konstruirao upravo Philipp Lenard, primijetio da fluorescentni zaslon na kraju eksperimentalnog postava svjetluca [12].

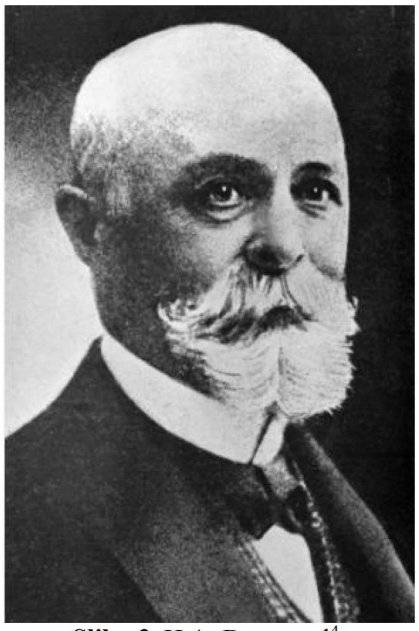
Slika 1. Wilhelm Conrad Röntgen[1]

Tako je, sasvim slučajno, došao do otkrića nove vrste zraka. Budući da su te zrake do tada bile potpuno nepoznate, nazvao ih je X – zrakama, no njemu u čast zovemo ih još i rendgenskim zrakama. Zanimljivo je što su se pojavljivale tijekom istraživanja Hertza i Lenarda, no nisu ih uočili. Nizom pokusa je otkriveno da X – zrake mogu proći kroz brojne tvari, ali ne i kroz određeni sloj olova. Između ostalog mogu prolaziti kroz ljudsko tkivo i kosti koje ga apsorbiraju na drugačiji način te prolaskom kroz kosti na fotografskoj ploči mogu ostaviti trag. Röntgen je 1901. godine dobio prvu Nobelovu nagradu za fiziku [12] [13] [14].

[1] https://hr.wikipedia.org/wiki/Wilhelm_Conrad_R%C3%B6ntgen (preuzeto 2.1.2023.)

Slika 2. Rendgenska slika šake Röntgenove supruge[2]

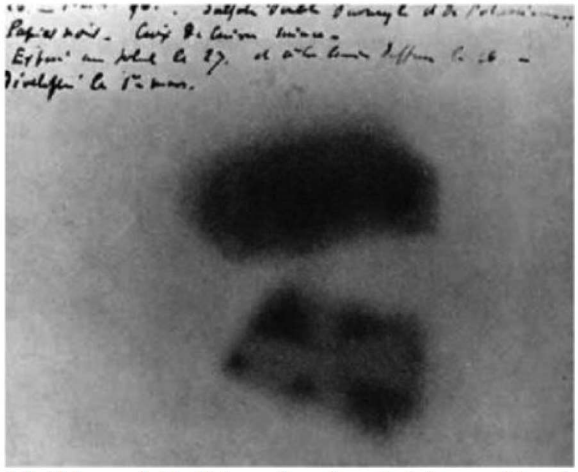
U siječnju 1896. godine je Poincaré na zasjedanju Pariške akademije govorio o otkriću X – zraka. Pretpostavio je da su rendgenske zrake povezane sa fluorescencijom[3] te da nastaju pri luminiscenciji tvari što bi značilo da za njihov nastanak nije potrebna katodna cijev. To je potaklo H. A. Becquerelea na dodatna istraživanja za koja je koristio dvosol kalijeva i uranijeva sulfata ($K_2UO_2(SO_4)_{22}H_2O$) koju je pronašao u zbirci svoga oca [12] [14].



Slika 3. H.A. Becquerel[4].

[2] https://radiologykey.com/radiology-a-historic-perspective/ (preuzeto 2.1.2023.)
[3] Pojava emisije svjetlosti kad se elektron vraća iz pobuđenog u osnovno stanje.
[4] https://www.bridgemanimages.com/en-US/noartistknown/antoine-henri-becquerel-1852-1908-french-physicist-physics-nobel-prize-in-1903-here-c-1908/nomedium/asset/1718357 (preuzeto 2.1.2023.)

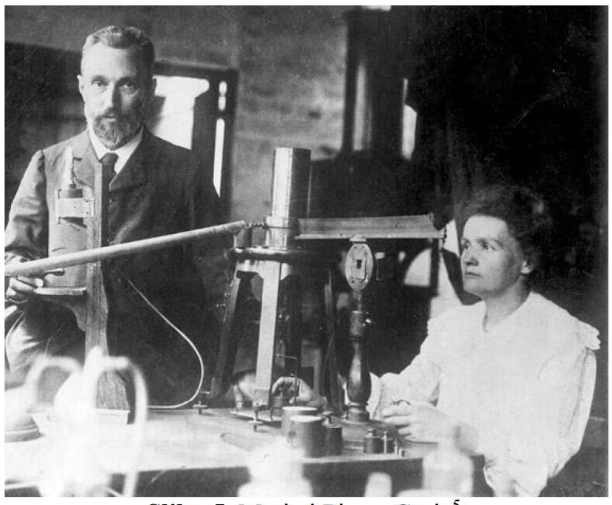
Becquerel je započeo istraživanje tako što je fotografsku ploču omotao u crni, nepropusni papir te je zatim izveo pokus sa fluorescencijom. Mineral je stavio na fotografsku ploču te ga izložio Sunčevoj svjetlosti na nekoliko sati. Razvivši fotografsku ploču, primijetio je otisak minerala. Pretpostavio je da mineral, dok fluorescira, emitira zrake koje mogu proći kroz crni, nepropusni papir. Becquerel je htio na sljedećoj Pariškoj akademiji izvijestiti o svom otkriću pa je odlučio za svaki slučaj ponoviti pokus. Budući da je tijekom veljače bilo nekoliko dana oblačno, Becquerel nije bio u mogućnosti ponovo napraviti pokus pa je zamotanu fotografsku ploču skupa s mineralom spremio u ladicu radnog stola. U nedjelju 1. ožujka 1896.godine, dan prije zasjedanja Pariške akademije, odlučio je razviti fotografsku ploču na kojoj je opet primijetio trag minerala, no sada bez prethodnog osvjetljenja čime je potvrdio Poincaréovu pretpostavku. Daljnjim je istraživanjem ustanovio da uranijeve soli ispuštaju nevidljive zrake tzv. „uranijeve zrake“ koje su u čast Becquerelu nazvane „Becquerelovim zrakama“. Kasnije je Becquerel izvodio pokuse sa raznim predmetima kako bi provjerio domet zraka [12].



Slika 4. Malteški metalni križ između minerala i fotografske ploče [15].

Becquerelovo otkriće je potaknulo mnoge znanstvenike među kojima su najistaknutiji bračni par Curie. Maria Skłodowska-Curie započela je istraživanje radioaktivnih pojava proučavajući uranij i uranijev smolinac. U svojim istraživanjima je otkrila da: „*Uranij, torij i njihovi spojevi ispuštaju Becquerelove zrake. Tvari, koje posjeduju to svojstvo, nazvala sam radioaktivnim.*“ Marie i Pierre Curie zaslužni su za otkriće novih kemijskih elemenata, radija i polonija o kojima su pisali u radu *O novoj radioaktivnoj tvari sadržanoj u rudi smolinca*. Tijekom istraživanja otkrili su da neki uzorci zrače više, a neki manje. To ih je vodilo ka pretpostavci o postojanju novih kemijskih elemenata. Kako bi potvrdili pretpostavku, kemijskim procesima su razdvajali pojedine elemente iz uzoraka. Tako su otkrili tvar čija je aktivnost bila 400 puta veća od

aktivnosti uranija, a to je upravo kemijski element polonij koji je dobio naziv po Poljskoj, državi iz koje je Marie došla. Za radij su otkrili da je to tvar čija je aktivnost 900 puta veća od aktivnosti uranija. Osim toga, Marie je pridonijela znanosti i tako što je povezala radioaktivnost sa svojstvom atoma. Becquerel, Marie i Pierre Curie su zbog svojih velikih otkrića dobili Nobelovu nagradu za fiziku 1903. godine, a Marie je dobila i Nobelovu nagradu za kemiju 1911. godine [12] [13].



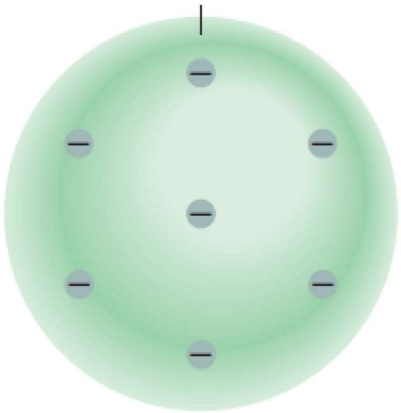
Slika 5. Marie i Pierre Curie[5].

2.2. Građa atoma

Iako se početkom 20. st. znalo da su tvari građene od atoma, nije se znalo baš puno o njegovoj građi, osim da sadrži elektrone. Budući da je atom neutralna čestica, a elektron je negativan, znanstvenici su pretpostavili da u atomu mora biti pozitivno nabijena tvar kako bi on bio neutralan [12].

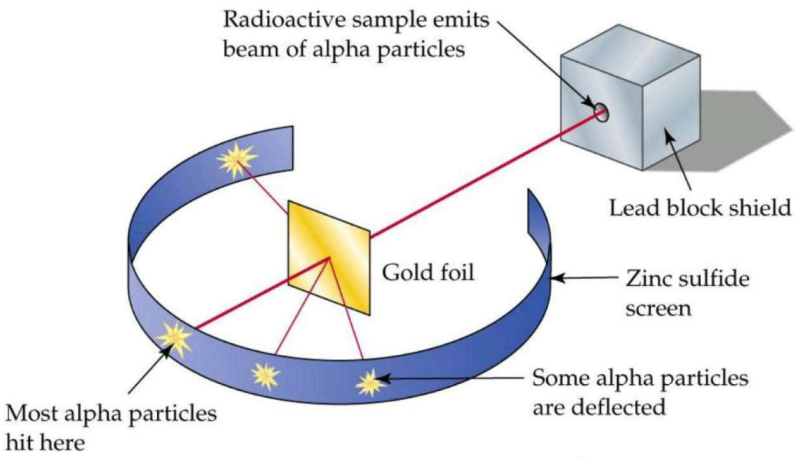
J. J. Thomson je 1904. godine građu atoma pokušao objasniti pomoću modela kolača s grožđicama. Rekao je da je pozitivni naboj razmazan u kugli u kojoj su usađeni elektroni. Elektroni u atomu titraju oko svog ravnotežnog položaja, a atom je neutralan ako su elektroni u ravnoteži. Takav model atoma zovemo statičkim modelom, a nastao je na temelju tvrdnje W. Thomsona koji je rekao da se elektroni nalaze u atomu [12] [13] [15].

[5] https://voxfeminae.net/strasne-zene/maria-sklodowska-zena-koja-je-pomicala-granice/ (preuzeto 2.1.2023.)



Slika 6. Thomsonov (statički) model atoma [13].

Eksperimentalnu provjeru Thomsonovog modela atoma su 1911. godine pod vodstvom E. Rutherforda izveli Hans Geiger i Ernest Marsden istražujući prolazak α – čestica kroz tvari. Usmjeravali su snop α – čestica na tanki listić zlata koji se nalazili u središtu fluorescentnog zaslona napravljenog od cinkovog sulfida. Većina α – čestica je prošlo neometano kroz listić dok se mali broj otklonio pod kutom manjim od 90° ili su se odbile pod kutom većim od 90°, tj. vratile su se unatrag [12].

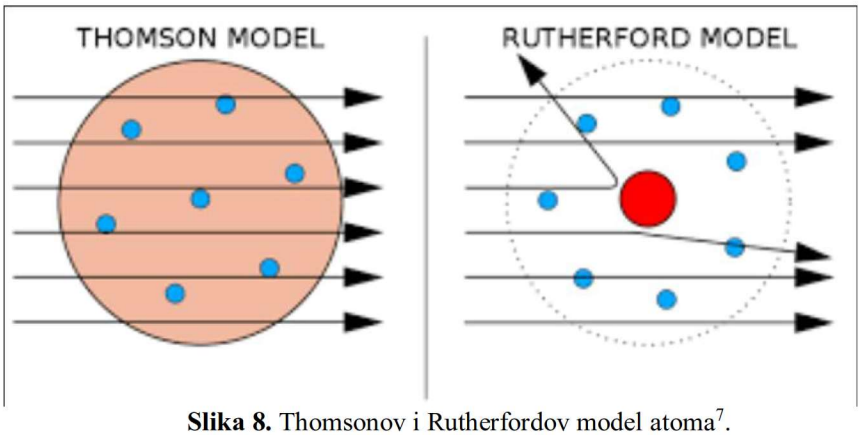


Slika 7. Pokus sa α – česticama[6]

Prema Thomsonovom modelu atoma, sve alfa čestice bi trebale nesmetano proći kroz listić zlata jer nema nikakve pozitivno nabijene čestice o koju bi se alfa čestica mogla odbiti, a elektroni zbog svoje male mase ne predstavljaju prepreku. Budući da je pokus pokazao da su se neke alfa čestice ipak odbile, Rutherford je zaključio da je većina atoma prazan prostor te da se u

[6] https://thefactfactor.com/tag/alpha-particles/ (preuzeto 4.1.2023.)

njegovom središtu nalazi mala jezgra koja je pozitivno nabijena te da ona nosi većinu mase atoma [12] [14].



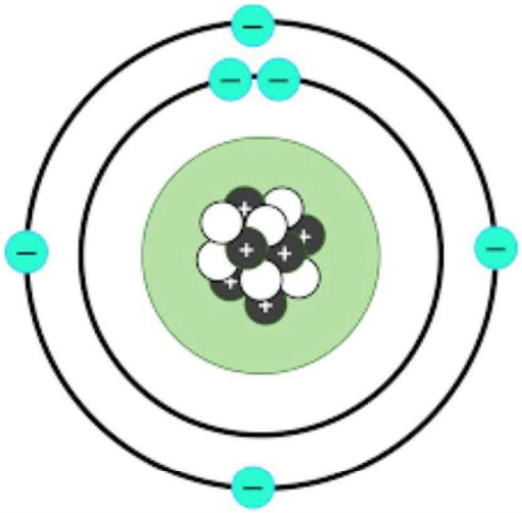
Slika 8. Thomsonov i Rutherfordov model atoma[7].

Japanski fizičar H. Nagaoka je zamislio model atoma sličan Sunčevom sustavu. U središtu atoma se nalazi pozitivno nabijena tvar dok elektroni kruže oko središta. Brojni drugi fizičari su razmišljali na sličan način, no takav model atoma, kojeg zovemo planetarnim modelom je naišao na teškoće unutar klasične teorije elektromagnetizma koje znanstvenici nisu mogli otkloniti. Budući da je takav model zamišljen na način da se elektroni gibaju, zovemo ga još i kinematički model atoma [12].

Planetarni model atoma je zagovarao i danski fizičar Niels Bohr koji je 1913. godine rekao da se atom sastoji od pozitivno nabijene jezgre koja nosi gotovo cijelu masu atoma, a oko jezgre kruže negativno nabijeni elektroni po točno određenim putanjama koje zovemo stacionarnim stazama. Kada elektron prelazi s više stacionarne staze na nižu, emitira točno određeni iznos energije, a kada prelazi s niže na višu stacionarnu stazu apsorbira energiju. Već sljedeće 1914. godine, James Franck i Gustav Hertz su izveli eksperimente čiji su rezultati bili u suglasju s idejama Bohrovog modela atoma. Proučavali su sudare elektrona s atomima para i plinova te su kod neelastičnog sudara uočili da elektron predaje točno određenu količinu energije atomu s kojim se sudario, a atom se pri tome pobudi ili ionizira. Budući da su u svojim pokusima koristili živu, prenesena energija je odgovarala točno onom iznosu energije koji je potreban elektronu žive da prijeđe iz osnovnog u pobuđeno stanje. Time su dokazali da je apsorbirana energija kvantizirana, a za svoj rad su 1925. dobili Nobelovu nagradu [12].

[7] https://historyoftheatomictheory.wordpress.com/thomson-and-rutherford/ (preuzeto 4.1.2023.)

Tijekom pokusa u kojemu je izlagao jezgre atoma dušika alfa česticama, E. Rutherford je 1920. godine pretpostavio da u atomu postoji nenabijena čestica te je time pokušao objasniti ukupnu masu atoma. Budući da je čestica nenabijena, bilo ju je vrlo teško otkriti, no to je 1932. godine pošlo za rukom britanskom fizičaru Jamesu Chadwicku koji je objavio svoja istraživanja o postojanju neutralne subatomske čestice – neutrona [12].



Slika 9. Bohrov (planetarni) model atoma[8].

Danas znamo da se atom sastoji od jezgre koju čine protoni i neutroni i elektronskog omotača u kojemu se nalaze elektroni. Promjer jezgre atoma iznosi oko $10^{-15}\ m$ te je 100000 puta manji od promjera atoma koji je oko $10^{-10}\ m$. U atomskoj jezgri djeluju četiri osnovne sile: jaka nuklearna sila, elektromagnetska sila, slaba nuklearna sila i gravitacijska sila. Jaka nuklearna sila je odgovorna za privlačenje nukleona. Protone i neutrone zajednički zovemo nukleoni. Taj naziv dolazi od grčke riječi *nucleus* što znači jezgra, Od iste riječi potječe i nuklid što je drugi naziv za atom. Iako je najsnažnija sila u prirodi, kratkog je dosega. Atom nekog kemijskog elementa je određen atomskim i masenim brojem. Maseni broj označavamo s A te on predstavlja ukupan broj protona i neutrona u jezgri. Atomski broj Z predstavlja broj protona u jezgri. Budući da je atom neutralna čestica, mora u sebi imati jednak broj protona i elektrona pa Z predstavlja i broj elektrona u atomu. Zbog toga kemijski element prikazujemo na sljedeći

8 https://kw.m.wikipedia.org/wiki/Restren:Carbon_atom_(Bohr_model).png?fbclid=IwAR10yYgZJCp0LlgyG_LiepItuupzlIdnKbxIv-MjsYwvS0TsAgcT2FjPt8Q (preuzeto 4.1.2023.)

način: ${}^{A}_{Z}X$ gdje je X oznaka kemijskog elementa. N predstavlja broj neutrona i može se odrediti iz masenog i atomskog broja na sljedeći način: $N = A - Z$ [16].

Dok svi atomi nekog kemijskog elementa imaju jednak atomski broj, to ne znači da imaju jednak maseni broj. Atome jednakog atomskog broja, a različitog masenog broja zovemo izotopima [16].

2.3. Vrste radioaktivnog zračenja

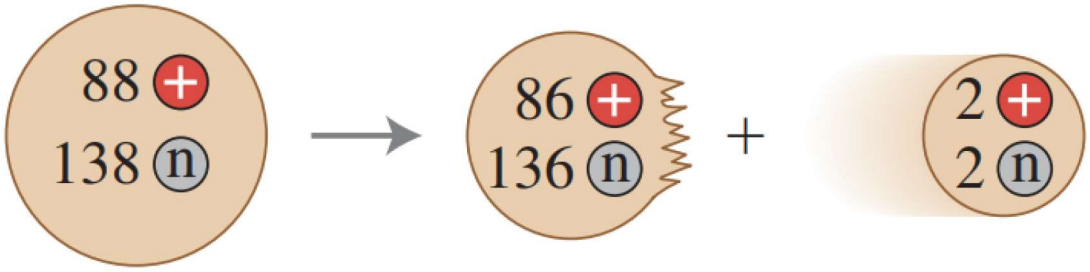
E. Rutherfordu možemo pripisati otkriće različitih vrsta zračenja. Provodio je eksperimente s uranijem te je otkrio da uranijeve zrake sadrže barem dvije različite vrste zračenja. Jedne se jače apsorbiraju i njih je nazvao β – zrakama i druge koje se slabije apsorbiraju i njih je nazvao α – zrakama.

2.2.1. Alfa zračenje

Alfa zračenje se događa kod atoma čiji je maseni broj veći od 150 te imaju mnogo protona u jezgri. Alfa čestica izgledom podsjeća na jezgru helija koja se sastoji od dva protona i dva neutrona. Prilikom emitiranja alfa čestice, nestabilna jezgra izgubi dva protona i dva neutrona te transmutira u drugu atomsku jezgru pri čemu joj se atomski broj smanji za dva, a maseni za četiri. Novonastali kemijski element je u periodnom sustavu pomaknut za dva mjesta u lijevo. Alfa raspad prikazujemo sljedećom jednadžbom:

$${}^{A}_{Z}X \rightarrow {}^{A-4}_{Z-2}Y + {}^{4}_{2}He$$

Alfa česticu je otkrio E. Rutherford tijekom jednog od svojih pokusa. Pokazao je da se alfa zrake mogu zakrenuti pod utjecajem jakog električnog i magnetskog polja. Daljnjim istraživanjem je ustanovio da su to masivne, pozitivno nabijene čestice velikih brzina. Sakupljao je alfa zrake u cijev te nakon nekoliko dana shvatio da je nakupina zraka helij i tako je došao do zaključka da je alfa čestica zapravo čestica helija. Iako su alfa čestice izbačene brzinom od oko $1{,}52 \cdot 10^{7} \frac{m}{s}$, zbog svoje velike mase brzo potroše energiju pa su kratkog dometa. On u zraku iznosi svega nekoliko centimetara [10] [11] [15].



SLIKA 10. Prikaz pretvorbe nestabilne jezgre prilikom alfa zračenja [15].

Zbog njihovog kratkog dosega alfa čestice ne mogu prodrijeti kroz kožu pa može se od njih zaštiti i običnim papirom, no uspiju li doći u tijelo hranom i/ili pićem ili udisanjem, mogu ionizirati tkivo te prouzrokovati oštećenje stanica i DNA [10] [11] [15].

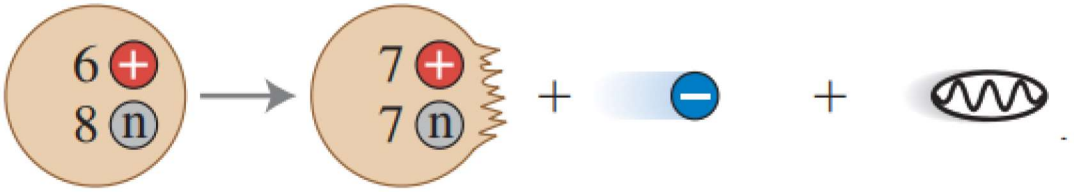
2.2.2. Beta zračenje

Svaki kemijski element sastoji se od niza izotopa. Izotopi koji su bogati neutronima postaju stabilniji emisijom elektrona, dok izotopi koji su siromašni neutronima postaju stabilniji emisijom pozitrona ili hvatanjem elektrona. Razlikujemo beta minus (β^-), beta plus (β^+) zračenje i elektronski uhvat [10] [11] [15].

Beta minus zračenje se događa pod utjecajem slabe nuklearne sile. Nestabilna jezgra s viškom neutrona se raspada na način da se jedan neutron transformira u proton koji ostaje u jezgri potomka, a iz jezgre se emitira tzv. beta čestica koja je po svojstvima jednaka elektronu te antineutrino. Beta minus zračenje možemo prikazati na sljedeći način:

$${}^{A}_{Z}X \rightarrow {}^{A}_{Z+1}Y + \beta^{-1} + \bar{\upsilon}_e$$

Dok beta česticu prikazujemo kao β^{-1}, antineutrino označavamo $\bar{\upsilon}_e$ [10] [11] [15].



Slika 11. Prikaz pretvorbe nestabilne jezgre prilikom beta minus zračenja [15].

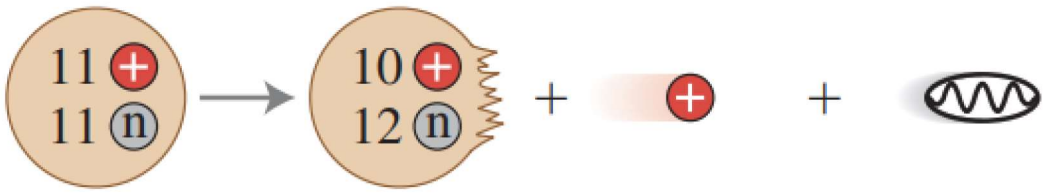
Beta plus zračenje se događa se spontano kod izotopa s manjkom neutrona. Proton u nestabilnoj jezgri roditelja se raspada na neutron koji ostaje u stabilnoj jezgri potomka, a osim toga jezgra roditelja emitira pozitron i neutrino. Novonastala jezgra ima atomski broj za jedan manji od atomskog broja jezgre roditelja, a maseni broj je ostao nepromijenjen. Beta plus zračenje prikazujemo na sljedeći način:

$${}^{A}_{Z}X \rightarrow {}_{Z-1}{}^{A}Y + {}^{0}_{+1}e + \upsilon_e$$

gdje je e^+ $({}^{0}_{+1}e)$ oznaka za pozitron, dok υ_e za neutrino [10] [11] [15].

Kod nekih jezgara beta plus zračenje nije moguće zbog manjka energije pa tada govorimo o uhvatu elektrona. Kad se elektron iz elektronskog omotača dovoljno približi nestabilnoj jezgri, ona ga može uhvatiti te se elektron i proton spoje pa nastane neutron koji ostaje u jezgri dok jezgra emitira neutrino.

Iako je beta čestica većeg dosega od alfa čestice, zbog svoje manje mase djeluje manje razorno nego li alfa čestica. Beta čestica može prodrijeti kroz kožu te ju oštetiti i uzrokovati opekline. Unese li se u organizam ingestijom ili inhalacijom, može biti vrlo opasna po organizam [10] [11] [15].



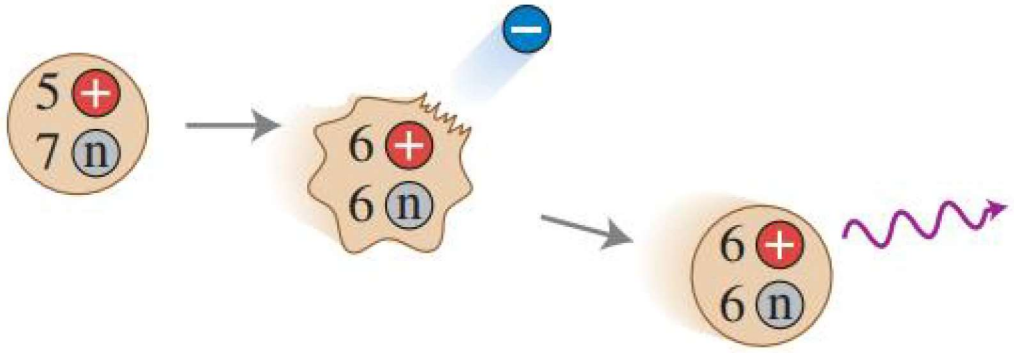
Slika 12. Prikaz pretvorbe nestabilne jezgre prilikom beta plus zračenja [15].

2.2.3. Gama zračenje

Nakon alfa ili beta zračenja jezgra može i dalje ostati u pobuđenom stanju stoga kako bi postala stabilna, oslobađa energiju u obliku gama zračenja. Pri njegovoj emisiji ne dolazi do promjene niti atomskog, niti masenog broja, no jezgra potomka će formirati drugačije energetsko stanje. Atome s jednakim masenim brojem i brojem protona, a različitim energetskim stanjima zovemo nuklearnim izomerima. Gama zračenje možemo prikazati jednadžbom:

$${}^{Am}_{Z}X \rightarrow {}^{A}_{Z}Y + {}^{0}_{0}\gamma$$

Gama zračenje je vrsta elektromagnetskih valova. Gama fotoni se kreću brzinom svjetlosti, no prodornije su od nje te imaju veću energiju ($10\ keV - 5\ MeV$). Zbog svoje prodornosti najbolje nas mogu zaštiti tvari velikog atomskog broja (npr. olovo) i velike gustoće. Budući da s lakoćom prolaze kroz ljudsko tijelo, mogu uzorkovati značajne biokemijske promjene. Zbog tog svojstva se često koriste u medicini za tretiranje kancerogenih stanica, sterilizaciju medicinskog pribora, a u farmaciji za proizvodnju antibiotika [10] [11] [15].



Slika 13. Nakon beta raspada, jezgra kćeri je i dalje u pobuđenom stanju. Prilikom povratka u osnovno stanje, emitira foton gama zračenja [15].

2.4. Utjecaj zračenja na ljude

Ionizacija je pojava u kojem se neutralnom atomu vanjskim utjecajem može izbaciti elektron iz elektronskog omotača pri čemu atom postane pozitivan ion. Zračenje koje uzrokuje ionizaciju nazivamo ionizirajućim zračenjem. Dok ionizirajuće zračenje prolazi kroz materiju, prenosi dio svoje energije na atome s kojima se sudara te tako dolazi do ionizacije. Zračenje koje nema dovoljno veliku energiju da uzorkuje ionizaciju zovemo neionizirajućim zračenjem.

Stanica je osnovna građevna jedinica našeg tijela. Većinu volumena tijela, pa time i stanice čini voda. Ako stanicu izložimo zračenju, vjerojatnost interakcije ionizirajućeg zračenja s DNA je vrlo mala jer ona čini mali dio stanice, no može reagirati s vodom što uzorkuje biološke promjene stanice koje dovode do poremećaja u funkciji organa. Ionizirajuće zračenje može

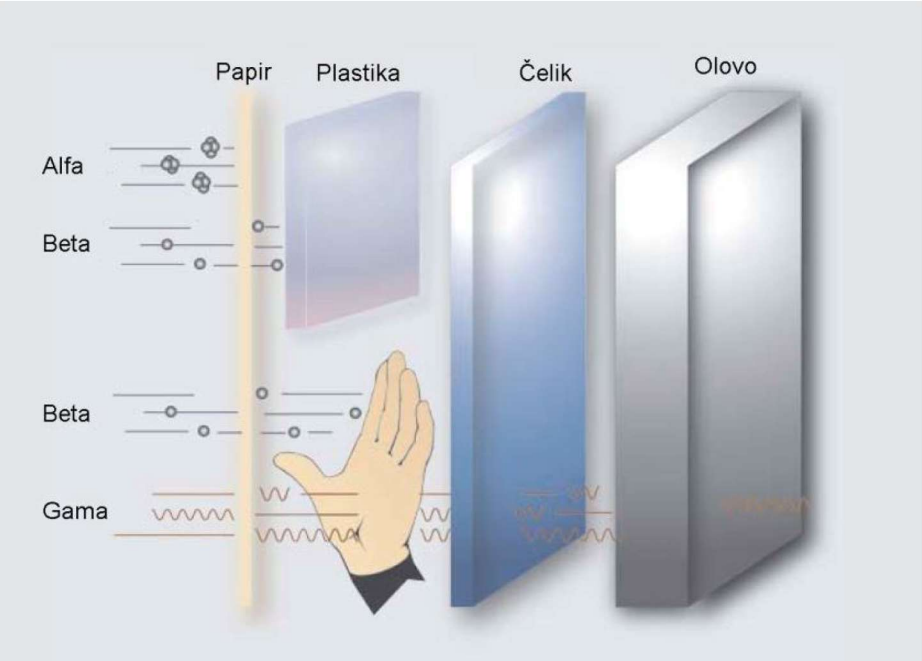
prekinuti kovalentne i vodikove veze među atomima u molekuli vode i stvoriti fragmente kao što su vodik i hidroksid. Oni se mogu rekombinirati ili spojiti s drugim fragmentima ili ionima stvarajući spojeve poput vode kako ne bi došlo do oštećenja stanice, no nerijetko mogu tvoriti štetne tvari koje zovemo slobodnim radikalima poput vodikovog peroksida koji može uništiti stanicu. Budući da stanice ljudskog tijela imaju sposobnost obnavljanja, u mnogim slučajevima mogu popraviti nastalo oštećenje i zatim normalno funkcionirati. Nadalje, u nekim slučajevima stanica je iako oštećena, sposobna za reprodukciju što može uzrokovati ili smrt ili oštećenja stanica – kćeri. Takva oštećenja uzorkuju mutaciju stanice koja će svojim daljnjim množenjem prouzrokovati maligna oboljenja ili se mutacija može nasljeđivati. Treća mogućnost je da se stanica ne može regenerirati i tada nastupa nekroza ili smrt stanice [17].

Osjetljivost različitih organa ovisi o osjetljivosti stanica od kojih su organi izgrađeni. Tako su najosjetljivije stanice koje se brzo dijele, a to su krvotvorne stanice u koštanoj srži, stanice u sluzi probavnog sustava i reproduktivne stanice. Osim toga, stanice malignog tumora su također vrlo osjetljive pa se za njihovo uništavanje koristi ionizirajuće zračenje.

Učinci ionizirajućeg zračenja ovise o:

- Dometu pojedine vrste zračenja
- Energiji pojedinačnih fotona ili čestica
- Broj fotona ili čestica koje pogode određeno područje u jedinici vremena
- Kemijskim svojstvima tvari izložene zračenju

Uzimajući u obzir navedene čimbenike, alfa čestice imaju snažnu interakciju s materijom zbog svog velikog naboja i mase, ali zbog kratkog dometa, ne prodiru duboko u nju i može ih zaustaviti odjeća, koža ili komad papira. Beta čestice vrlo lako prodiru kroz kožu, no može ih zaustaviti komad drveta ili tanka ploča metala. Gama fotoni iako nemaju masu i naboj pa nemaju interakciju s materijom, velikog su dometa i prodiru kroz gotovo sve materije. Za potpuno zaustavljanje gama fotona potrebna je kombinacija olova i baritnog betona debljine nekoliko desetaka centimetara. Baritni beton se dodaje olovu kako bi se spriječila reakcija olova i gama zračenja koja je poznata kao *GDR (Giant Dipole Resonance)* reakcija u kojoj nastaju neutroni [17].



Slika 14. Domet pojedinih vrsta zračenja[9]

2.5. Zakon radioaktivnog raspada

Budući da je radioaktivni raspad spontani proces, ne možemo sa sigurnošću predvidjeti kad će se pojedina jezgra raspasti, niti možemo utjecati na proces raspada. Usprkos tome, možemo izračunati broj raspadnutih jezgara nakon vremena t, a o tome nam govori zakon radioaktivnog raspada. Broj neraspadnutih jezgri u uzorku na početku je proporcionalan broju raspadnutih jezgri u nekom vremenu:

$$-\frac{dN}{dt} = \lambda \cdot N \qquad (1)$$

λ („lambda“) označava konstantu radioaktivnog raspada, a ona kaže da je vjerojatnost po jedinici vremena da će se jezgra raspasti konstantna, tj. neovisna o vremenu. Mjerna jedinica konstante radioaktivnog raspada je s^{-1}. Karakteristična je veličina za svaki radionuklid [10].

Iz (1) možemo izvesti zakon radioaktivnog raspada:

[9] file:///C:/Users/Korisnik/Downloads/675812.Diplomski_rad_Velagic_Final_2013.pdf (preuzeto 8.1.2023.)

$$\frac{dN}{N} = -\lambda \cdot dt \tag{2}$$

Ako integriramo obje strane u izrazu (2), dobijemo:

$$\int_{N_0}^{N} \frac{dN}{N} = -\lambda \int_0^t dt \tag{3}$$

$$\ln N - \ln N_0 = -\lambda(t - 0) \tag{4}$$

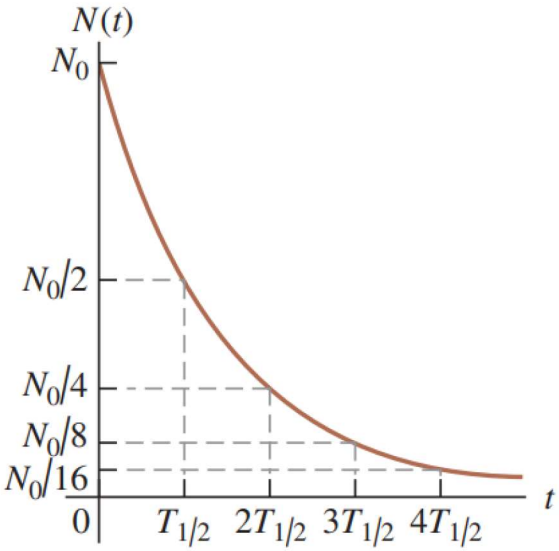
$$\ln \frac{N}{N_0} = -\lambda t \tag{5}$$

$$\frac{N}{N_0} = e^{-\lambda t} \tag{6}$$

Preoblikujemo li (6) dobit ćemo eksponencijalni izraz zakona radioaktivnog raspada:

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda t} \tag{7}$$

N_0 predstavlja broj jezgara u početnom trenutku, dok je N broj neraspadnutih jezgara u vremenu t. Brzinu nuklearnog raspada možemo mjeriti vremenom poluraspada. To je vrijeme potrebno radionuklidu da izgubi polovicu svoje radioaktivnosti [10].



Slika 15. Ovisnost broja jezgara radionuklida o vremenu [16].

Pogledamo li Sliku 15. vidimo da je $t = t_{1/2}$ pa je tada :

$$N(t_{1/2}) = \frac{N_0}{2} \tag{8}$$

Primijenimo li to na jednadžbu (3), možemo odrediti odnos između konstante radioaktivnog raspada λ i vremena poluraspada $t_{1/2}$:

$$N(t_{1/2}) = N_0 \cdot e^{-\lambda t_{1/2}} \tag{9}$$

$$\frac{N_0}{2} = N_0 \cdot e^{-\lambda t_{\frac{1}{2}}} / \cdot \frac{1}{N_0} \tag{10}$$

$$\frac{1}{2} = e^{-\lambda t_{1/2}} \tag{11}$$

$$\ln\left(\frac{1}{2}\right) = -\lambda \cdot t_{1/2} \tag{12}$$

$$\ln(2^{-1}) = -\lambda \cdot t_{1/2} \tag{13}$$

$$-\ln(2) = -\lambda \cdot t_{1/2} \tag{14}$$

$$\ln(2) = \lambda \cdot t_{1/2} \tag{15}$$

$$t_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\lambda} \tag{16}$$

Osim vremena poluraspada, postoji fizikalna veličina vrijeme poluživota koje označavamo sa τ, a možemo ga dobiti na sljedeći način:

$$\tau = \frac{1}{N_0}\int_0^\infty t\lambda N dt = \frac{1}{\lambda} \quad (17)$$

Broj jezgri u ovisnosti o vremenu poluživota tada možemo dobiti pomoću izraza:

$$N(\tau) = N_0 \cdot e^{-1} = 0{,}37 \cdot N_0 \quad (18)$$

2.6. Aktivnost radionuklida

Aktivnost radionuklida predstavlja broj čestica ili fotona koje radioaktivni uzorak emitira u vremenu, odnosno brzinu kojom se raspada jezgra. Ona ne ovisi o vrsti radioaktivnog raspada, energiji proizvoda raspada ili biološkim učincima zračenja, već samo o vrsti raspada. Možemo je izračunati na sljedeći način:

$$A(t) = -\frac{dN}{dt} \quad (19)$$

$$A(t) = \lambda \cdot N(t) \quad (20)$$

$$A(t) = \lambda \cdot N_0 \cdot e^{-\lambda t} \quad (21)$$

$$A(t) = A_0 \cdot e^{-\lambda t} \quad (22)$$

A_0 predstavlja aktivnost u početnom trenutku, dok je A aktivnost u vremenu t. Osnovna mjerna jedinica za aktivnost radionuklida je $[Bq]$, a $1\ Bq = 1\ s^{-1}$. Osim u bekerelima, aktivnost možemo mjeriti u *kirima* (Ci), a definira se kao $1\ Ci = 3{,}7\ \cdot 10^{10}\ raspada\ u\ sekundi$ kao i u *rutherfordima* (Rd) koja se definira kao aktivnost količine radioaktivne tvari u kojoj se milijun jezgri raspada u sekundi [10].

Osim aktivnosti postoji fizikalna veličina *koncentracija aktivnosti* kojom se želi izmjeriti aktivnost tvari koja se sastoji od stabilnih izotopa i radionuklida. Zovemo ju još i *aktivnost po jedinici veličine*, a najčešće ju izražavamo u mjernim jedinicama $\frac{Bq}{l}$, $\frac{Bq}{kg}$, $\frac{Bq}{m^3}$.

2.7. Raspad jezgre roditelja i jezgre kćeri

Često se možemo susresti sa situacijom gdje početna nestabilna jezgra transmutira u drugu nestabilnu jezgru koja opet može transmutirati u nestabilnu jezgru i tako sve dok ne dođe do prve stabilne jezgre. U takvim slučajevima govorimo o lancu radioaktivnih raspada. Lanac radioaktivnih raspada je opisan Batemanovom jednadžbom koja za drugi nuklid u nizu raspada glasi:

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_1(0) \cdot \left(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}\right) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_1 \cdot \left(1 - e^{-(\lambda_1 - \lambda_2)t}\right) \quad (23)$$

Uzmemo li u obzir razliku između konstante radioaktivnog raspada jezgre majke i jezgre kćeri, moguće je da nakon nekog vremena njihove aktivnosti budu u ravnoteži. S obzirom na to, jezgre mogu biti u sekularnoj ravnoteži, prijelaznoj ravnoteži ili mogu biti bez ravnoteže [17].

2.6.1. Sekularna ravnoteža

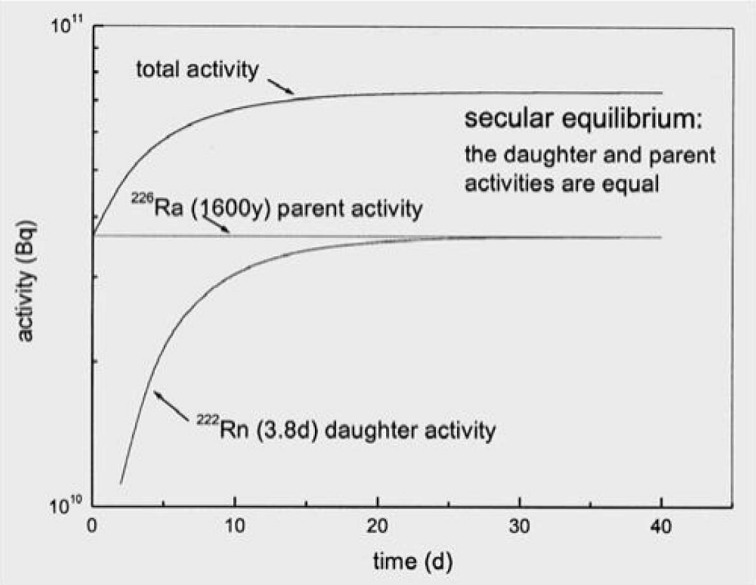
Ako je vrijeme poluživota majke puno veće od vremena poluživota kćeri, aktivnost kćeri će tijekom vremena dosegnuti aktivnost majke i one će biti jednake. Takvo stanje zovemo sekularnom ravnotežom. Sekularnu ravnotežu možemo matematički pokazati [17].

Uvjet za sekularnu ravnotežu je $\tau_1 \gg \tau_2$, ako pogledamo izraz (17) vidimo da su vrijeme poluživota i konstanta radioaktivnog raspada obrnuto proporcionalne veličine što znači da za konstante raspada kod sekularne ravnoteže vrijedi $\lambda_1 \ll \lambda_2$. U tom slučaju izraz (23) možemo zapisati kao:

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \cdot N_1\left(1 - e^{-\lambda_2 t}\right) \quad (24)$$

Odnosno:

$$N_2 \cdot \lambda_2 = N_1 \cdot \lambda_1 \quad (25)$$



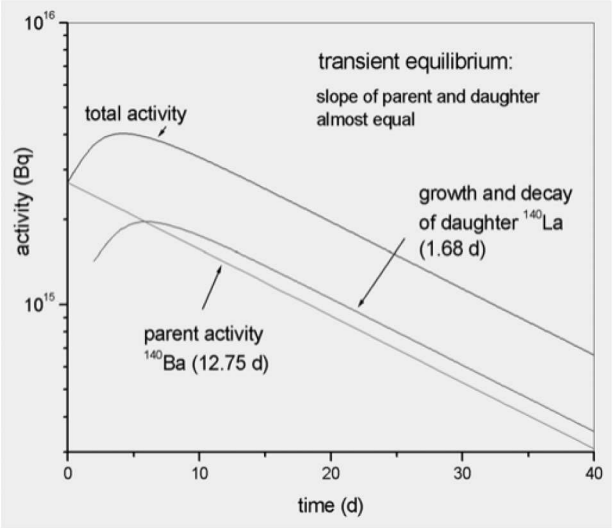
Slika 16. Grafički prikaz sekularne ravnoteže jezgre roditelja (^{226}Ra) i jezgre kćeri (^{222}Rn) [17]

2.6.2. Prijelazna ravnoteža

Jezgra majke i jezgra kćeri se nalaze u prijelaznoj ravnoteži kad je vrijeme poluživota kćeri jednakog reda kao i vrijeme poluživota majke, no i dalje kraće. Iz uvjeta da je $\tau_1 > \tau_2$ slijedi da je $\lambda_1 > \lambda_2$ [17].

Nakon nekog vremena ($t \gg \tau_2$) pa se drugi eksponencijalni član u jednadžbi (23) zanemaruje i jednadžbu tada pišemo na sljedeći način:

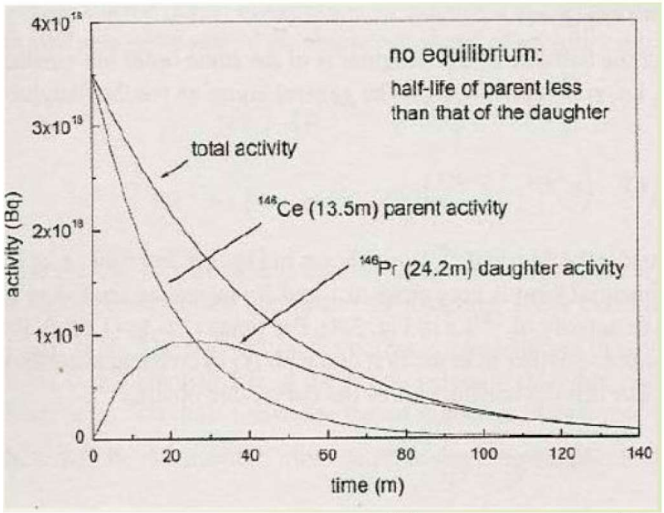
$$N_2 = \frac{\lambda_2 \cdot \lambda_1}{\lambda_2 \cdot (\lambda_1 - \lambda_2)} \cdot N_1 \qquad (26)$$



Slika 17. Grafički prikaz prijelazne ravnoteže između jezgre roditelja (^{140}Ba) i jezgre kćeri (^{140}La) [17],

2.6.3. Bez ravnoteže

Kad je vrijeme poluživota jezgre roditelja manje od vremena poluživota jezgre kćeri ($\tau_1 < \tau_2$), tada aktivnost jezgre kćeri dosegne određeni maksimum, a zatim se jezgra krene raspadati s vlastitim karakterističnim vremenom poluraspada [17].



Slika 18. Grafički prikaz kad su jezgra roditelja (^{146}Ce) i jezgra kćeri (^{146}Pr) bez ravnoteže [17].

3. RADON

Krajem 16. stoljeća u rudnicima srebra Srednje Europe uočena je velika smrtnost rudara. Postojale su brojne pretpostavke o uzrocima smrtnosti, no tek krajem 19. stoljeća je rak pluća proglašen glavnim razlogom smrti rudara. Kasnije je otkriveno da je uzročnik raka pluća plin radon. Radon je 1900. godine otkrio njemački kemičar Friedrich Ernst Dorn tijekom proučavanja raspada radija gdje je otkrio da njegovim raspadom nastaje plin koji se širi u zraku i čini ga radioaktivnim. Prvotno je novootkriveni plin nazvan niton (lat. *nitēre* = sjajiti), no kasnije, 1923. dobiva naziv radon u čast elementa od kojeg nastaje - radija.

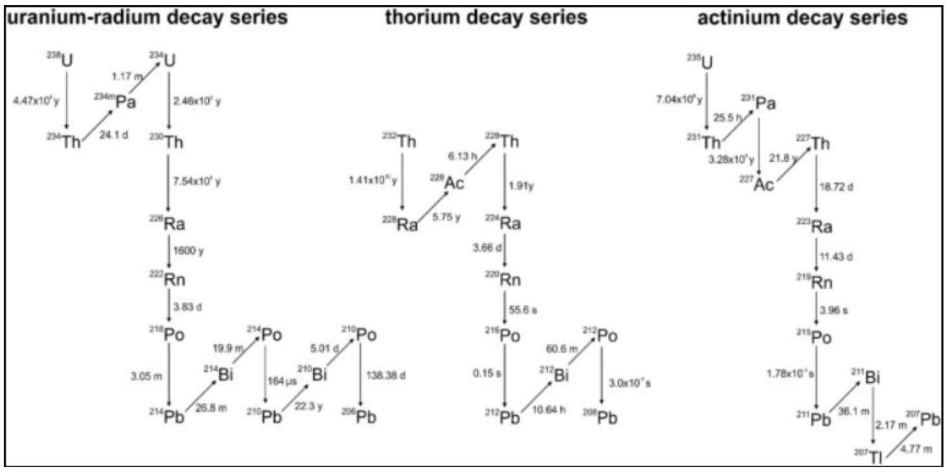
Radon, kemijski element rednog broja 86, je jednoatomni radioaktivni plin bez boje, okusa i mirisa stoga su za njegovu detekciju i mjerenje potrebni posebni uređaji. Njegovo je vrelište na 61,8 °C, a talište na -71°C. Velike je gustoće, oko 9,73 $\frac{kg}{cm^3}$ pri sobnoj temperaturi, a to ga čini čak sedam puta gušćim od zraka i smatra se najgušćim plinom. Zbog svoje elektronske konfiguracije pripada 18. skupini periodnog sustava elemenata koju čine plemeniti plinovi.

Nalazi se ispod ksenona, a tu ga je smjestio škotski kemičar Sir William Ramsay odredivši atomsku masu radona [18].

Elektronska konfiguracija plemenitih plinova je vrlo stabilna zato što imaju popunjene valentne orbitale. Takva konfiguracija ograničava sposobnost spajanja plemenitih plinova s drugim kemijskim elementima. Znanstvenici su plemenite plinove smatrali kemijski inertnima sve do 60-ih godina prošlog stoljeća kad su izvedeni pokusi spajanja plemenitih plinova s vrlo aktivnim kemijskim elementima, odnosno onima koji imaju veliku elektronegativnost. Tako je 1962. pokusima dokazano da ksenon može stupati u kemijske reakcije s fluorom (^{18}F). Osim spojeva elemenata sa ksenonom, dobiveni su spojevi radona i fluora (radon fluorid, RnF). Nadalje, otkriveno je da radon može stupati u kemijske reakcije i s kisikom tako što su 1989. ruski znanstvenici ispitivali svojstva radonovog oksida u vodenoj otopini [13].

Radon je posljednje otkriveni plemeniti plin, a peti otkriveni radioaktivni element. Nastaje radioaktivnim raspadom radija (najčešće alfa raspadom) te ga nalazimo posvuda u Zemljinoj kori. Količina nastalog radona u stijenama i tlu ovisi o sadržaju uranija i radija u njima. Otapa se u vodi, a mjehurićenjem vode može izaći iz nje i vezati se za čestice zraka. Danas poznajemo oko 20 izotopa radona, no postoje samo tri prirodna:

- Radon (^{222}Rn), član radioaktivnog niza ^{238}U, čije je vrijeme poluraspada $t_{1/2} = 3{,}8235\ dana$. Ovo je najstabilniji izotop radona, a njegov potomak je ^{218}Po.
- Toron (^{220}Rn), član radioaktivnog niza ^{232}Th, čije je vrijeme poluraspada $t_{1/2} = 55\ sekundi$.
- Aktinon (^{219}Rn), član radioaktivnog niza ^{235}U, čije je vrijeme poluraspada $t_{1/2} = 3{,}96\ sekundi$



Slika 19. Lanac radioaktivnog raspada ^{238}U, ^{232}Th, ^{235}U [10].

Budući da je vrijeme poluraspada ^{222}Rn najduže, on je zapravo najzanimljiviji za promatranje, dok se vrijednosti torona i aktinona uglavnom zanemaruju. Raspadom radona stvaraju se njegovi potomci, također radionuklidi, koji emitiraju alfa, beta i gama zračenje [18].

Koncentracija radona nije svugdje jednaka i ovisi o sastavu tla. Tlo koje je bogato uranijevim rudama bogato je i radonom pa to uzorkuje veće koncentracije radioaktivnog plina u zraku u blizini tog tla, no na otvorenom prostoru su koncentracije radioaktivnog plina općenito niske pa ne predstavljaju opasnost [19].

Nasuprot tome, opasnost za ljudsko zdravlje predstavlja radon u zatvorenim prostorima u kojima ljudi borave. On u naše kuće, stanove i urede ulazi različitim mehanizmima, a glavni izvor radona je tlo ispod građevine (85 - 90%), znatno manji udio dolazi od građevinskog materijala (5 – 10%), kao i iz podzemnih zaliha voda (oko 5%), dok gotovo neznatan udio potječe od zemnog plina (1%). Koncentracija radona unutar građevine ovisi o parametrima koje dijelimo na tehničke i prirodne. Tehnički parametri su:

- veličina površine građevine koja je u dodiru sa tlom
- način gradnje
- broj katova i etaža
- (ne)propusnost građevine što podrazumijeva pukotine u zidovima, prostor oko cijevi i instalacija, odvoda i sl.

[10] https://geothermal-energy-journal.springeropen.com/articles/10.1186/s40517-020-00179-4 (preuzeto 12.1.2023.)

Prirodni parametri:

- sastav tla
- koncentracija radona u tlu
- razlika tlaka unutar i izvan građevine te razlika tlaka između tla i donjih prostorija građevine (zbog razlike tlakova može doći do stvaranja blagog vakuuma ispod građevine koji „povlači“ radon iz tla)
- meteorološki i sezonski parametri, a to su uglavnom razlike između vanjske temperature i temperature u unutrašnjosti građevine.

Koncentracije radona su najveće u podrumima i prostorijama koje su u dodiru s tlom, no nerijetko se visoke koncentracije mogu naći i u prostorijama na višim etažama. Čestim provjetravanjem prostorija možemo ih donekle smanjiti.

Radon predstavlja opasnost za ljudsko zdravlje zato što se njegovi potomci vežu za aerosole u zraku. Novonastale čestice inhalacijom unosimo u dišni sustav gdje se talože, a zatim raspadaju alfa raspadom i pri tome emitiraju alfa čestice koje ioniziraju tkivo do razine DNA, a takva oštećenja mogu uzrokovati rak pluća. Razornost alfa čestice ovisi o više čimbenika. Jedan od njih je taloženje čestica koje opet ovisi o veličini čestice, volumenu pluća, frekvenciji disanja i sl. Osim toga, debljina zaštitnog sloja stanice uvelike utječe na zaštitu od prolaska ionizirajuće čestice. Što je sloj deblji, čestica će imati manje šanse za prolazak i interakciju sa stanicom. Nadalje, ovisi i o vremenu poluraspada radioaktivne tvari jer ono utječe na vjerojatnost hoće li se radioaktivna tvar raspasti i emitirati alfa česticu izvan ili unutar tijela. Ne trebamo zanemariti ni energiju alfa čestice jer što su veće energije, to će biti veće oštećenje tkiva. Na kraju imamo i vjerojatnost hoće li alfa čestica pogoditi osjetljivo tkivo i razoriti ga ili neće.

3.1. Mjerenje koncentracije aktivnosti radona u vodi

Postoji nekoliko metoda mjerenja koncentracije aktivnosti radona u vodi koje se razlikuju po principu rada, dok je svima zajedničko potreba za pažljivim rukovanjem uzorcima. Sam proces uzorkovanja je zapravo najveći izvor pogrešaka pri mjerenju. Pri uzimanju uzorka je poželjno

što manje mućkati uzorak jer time riskiramo izlazak radona iz uzorka u zrak što uzrokuje nevaljale rezultate mjerenja. Metode mjerenja radona koje se koriste su:

- AlphaGUARD mjerni sustav
- Alfa spektrometar DURRIDGE RAD 7
- HPGe Gama spektrometar
- Scintilacijski detektor

4.1.4. Scintilacijski detektori

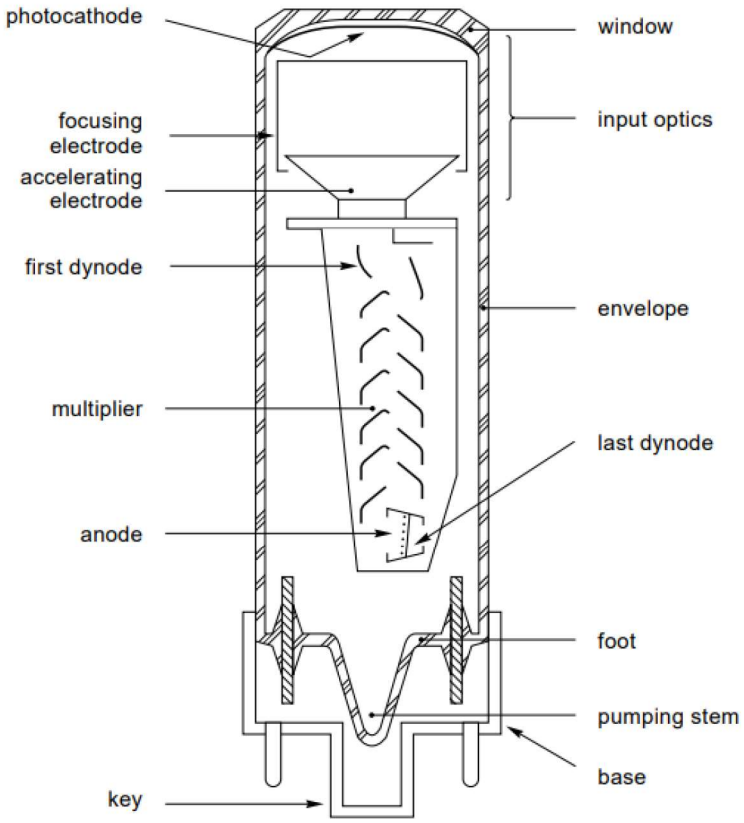
Za mjerenje koncentracije radona koristili smo scintilacijski detektor.

Scintilacijski detektori se koriste za detekciju svih vrsta čestica zračenja, a rade na principu scintilacije. Kad tvar biva ionizirana ionizirajućim zračenjem, njezini elektroni apsorbiraju dio energije i prelaze u pobuđena stanja. Tijekom povratka iz pobuđenog, u osnovno stanje elektroni emitiraju energiju, odnosno fotone vidljive svjetlosti. Prilikom emisije fotona vidimo bljeskove koje zovemo scintilacijama, a tvari s tim svojstvom scintilatorima. Remisiju koja se dogodi u vremenskom intervalu manjem od $10^{-8}\ s$ zovemo fluorescencijom, a onu koja se dogodi u vremenskom intervalu većem od $10^{-8}\ s$ zovemo fosforescencijom.

Kako bismo mogli napraviti mjerenja pomoću scintilacijskog detektora, potrebno je pomiješati uzorak sa scintilacijskim koktelom. Scintilacijski koktel se sastoji od scintilatora i otapala.

Scintilatori mogu biti organskog ili anorganskog podrijetla te u krutom, tekućem ili plinovitom stanju. Ono na što moramo obratiti pažnju jest prozirnost scintilatora. On mora biti dovoljno proziran da kroz njega mogu prolaziti fotoni vidljive svjetlosti. Kad prođu kroz scintilator, fotoni putuju ka fotomultiplikatorskoj cijevi koju još nazivamo fotomultiplikatorom. Ako fotomultiplikator nije neposredno povezan sa scintilatorom, povezan je svjetlovodima. Fotomultiplikator je staklena vakuumirana cijev na čijem se jednom kraju (onom bliže scintilatoru) nalazi katoda koja je napravljena od materijala osjetljivog na svjetlost. Prilikom dolaska fotona na katodu, dolazi do fotoelektričnog efekta. To je pojava kod koje foton elektromagnetskog zračenja pri interakciji s elektronom u metalu preda svu svoju energiju samo tom elektronu. Elektron dio dobivene energije potroši na izlazni rad, a ostatak energije prelazi u kinetičku energiju kad elektron napusti površinu metala. Na katodu se nastavlja sustav za skupljanje elektrona koji ih vodi do sustava dioda koje služe za multiplikaciju elektrona. Sustav

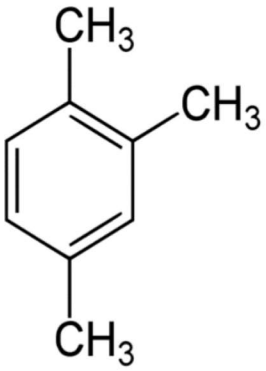
dinoda završava s anodom s koje se uzima nastali električni puls. Elektroni bivaju ubrzani visokim naponom koji postoji između katode, dinoda i anode. Prilikom udara elektrona na svaku od dinoda, stvaraju se sekundarni elektroni koji uzrokuju pojačani električni puls na anodi (Ahmed, 2007.).



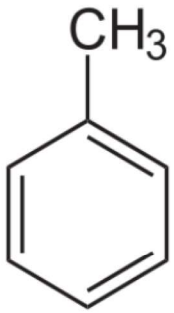
Slika 20. Shematski prikaz fotomultiplikatora[11].

Otopinu koktela preko 60 % čini otapalo stoga prilikom radioaktivnog raspada postoji velika vjerojatnost da će čestice naići na molekule otapala pa su glavni zadaci otapala što uspješnije sakupiti energiju nastalu radioaktivnim raspadom, zatim tu istu energiju predati molekulama scintilatora, spriječiti nastanak prigušenja scintilacija (tzv. quench-a) te mora biti dobro otapalo za scintilator. Najčešća otapala koja se koriste su derivati benzena: pseudokumen, PXE, i toluen. Otapala koja se koriste sadrže tzv. aromatične prstene koji lako apsorbiraju energiju nastalog zračenja. Potrebno je biti oprezan pri rukovanju s otapalima jer su to lako zapaljive tvari i opasne ukoliko ih se udiše ili dođu u dodir s kožom.

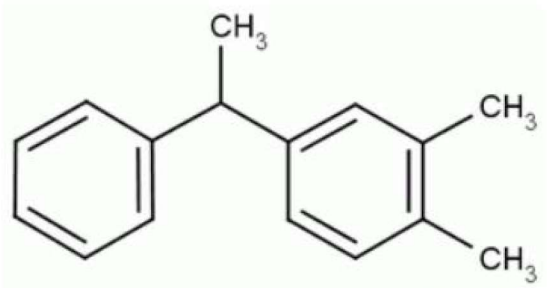
[11] http://www.phy.pmf.unizg.hr/~bosnar/pfec/scintilator.pdf (preuzeto 20.1.2023.)



Slika 21. Strukturna formula pseudokumena[12].



Slika 22. Strukturna formula toluena[13].



Slika 23. Strukturna formula PXE (*Phenyl Xylyl Ethane*)[14].

Tekući scintilacijski detektor TriCarb 2900

TriCarb 2900 je tekućinski scintilacijski detektor koji služi za detektiranje alfa i beta čestica. To je neprenosivi uređaj kojeg je potrebno držati u zatamnjenoj prostoriji, izvan dosega izvora zračenja (osim onih u uzorku) jer u suprotnom riskiramo nastajanje lažnih signala, tj.

12 https://www.sigmaaldrich.com/HR/en/product/sigma/314358?fbclid=IwAR1n0ykl5_HlaO6K7JLClGrIvvM6JsJv7jsUgKA2_PyRH7jklkdAPWopMOo (preuzeto 20.1.2023.)

13 https://www.sigmaaldrich.com/HR/en/product/mm/814505?fbclid=IwAR10yYgZJCp0LlgyG_LiepItuupzlIdnKbxIv-MjsYwvS0TsAgcT2FjPt8Q (preuzeto 20.1.2023.)

14 https://www.haz-map.com/Agents/16556 (preuzeto 20.1.2023.)

scintilacija. Nadalje, kako bi spriječili moguće zagrijavanje uređaja tijekom rada, potrebno ga je odmaknuti od zida ili neke druge površine barem 15 cm. Za dodatnu zaštitu od pozadinskog zračenja (atmosferski radon ili kozmičko zračenje) koristi se olovni oklop debljine manje od 5 cm.

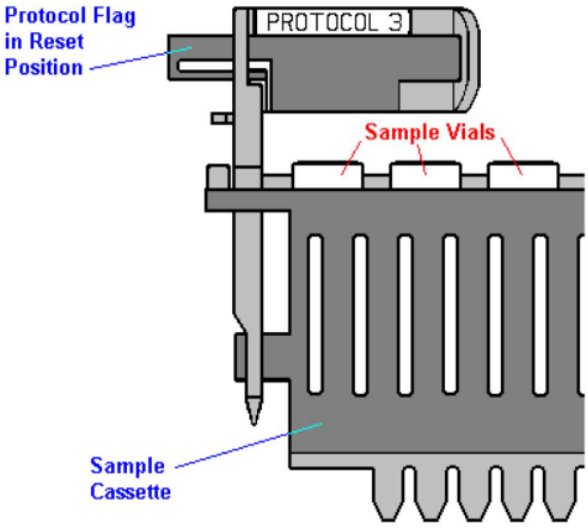
Slika 24. Scintilacijski detektor TriCarb2900.

Detektor uređaja se sastoji od dva fotomultiplikatora koji su postavljeni jedan nasuprot drugome u reflektirajućoj optičkoj komori, a signal koji se detektira na oba fotomultiplikatora se broji kao jedan događaj. Broj događaja tijekom vremena možemo razvrstati prema energiji i time dobijemo 2D uzorak spektra u određenom trenutku. Svakih 6 sekundi se obnavljaju podaci u spektru.

Kako bi mogli vršiti mjerenja, potrebno je uzorak, zajedno sa scintilacijskim koktelom pomiješati u malenim, prozirnim, staklenim bočicama – vijalama, a zatim vijale staviti u plastični držač za vijale – kazetu.

Slika 25. Kazeta s vijalama

Uređaj može držati najviše 408 vijala od 20 ml koje su raspoređene u kazete u koje stane najviše 14 vijala. Ukoliko su vijale volumena 4 ili 7 ml, tada stane ukupno 720 vijala, a u svaku kazetu stane 18 vijala. Prije analize uzorka, na kazetu se postavlja zastavica s lijeve strane. Uređaj tako prepoznaje da se u držaču nalaze uzorci koji su spremni za analizu, a sama za pojedinačni uzorak. Osim zastavice, svaki držač ima svoj jedinstveni broj koji se nalazi na kraju držača. Jedinstveni broj držača i zastavica koja označava protokol automatski se očitavaju i slažu u programu u listu zadataka koji se treba provesti.



Slika 26. Shema kazete [20].

Uzorci u držačima se automatski šalju na analizu. Obično se držači pokreću u smjeru obrnutom od kazaljke na satu, no ukoliko npr. dođe do nestanka struje, prilikom ponovnog pokretanja uređaja, držači se mogu pokretati u obrnutom smjeru, tj. u smjeru kazaljke na satu, kako bi se vratili u početni položaj i započeli novi ciklus. Kad jedan ciklus analize bude završen, bočice sa analiziranim uzorcima se vraćaju nazad u držač i na njihovo mjesto dolaze novi uzorci spremni za analizu.

Procesom analize se upravlja pomoću računalnog softera *QuantaSmart.* On omogućava 2D prikaz spektra uzorka koji se analizira u stvarnom vremenu. Spektar se obnavlja svakih 6 sekundi, a moguće ga je prikazati u linearnoj ili logaritamskoj skali te nam daje informacije o broju događa zabilježeni u uzorku i području energije (keV) na kojoj su zabilježeni [20].

4. ADSORPCIJA

Adsorpcija (lat. *adsorptio*) je spontani proces povećanja koncentracije jedne tvari na površini neke druge tvari. *Adsorbensom* zovemo tvar na kojoj se odvija adsorpcija, a *adsorbatom* tvar koja adsorbira. Budući da veze između adsorbensa i adsorbata mogu biti kemijske ili fizikalne, razlikujemo kemijske i fizikalne adsorpcije. Ako je veza kemijske prirode, govorimo o kemijskoj adsorpciji – *kemisorpciji* gdje entalpije adsorpcije dosežu i $800\,\frac{kJ}{mol}$. Ukoliko se radi o fizikalnim vezama govorimo o fizikalnoj adsorpciji – *fizisorpciji* gdje između čestica djeluju slabe Van der Waals-ove sile, a molarne entalpije adsorpcije nisu veće od $40\,\frac{kJ}{mol}$ [21].

Van der Waalsove sile su slabe električne sile koje djeluju između dipolnih molekula u plinovitom stanju, no djeluju i kod većine organskih tekućih i krutih tvari. Dobile su naziv po nizozemskom fizičaru J. Diderik van der Waalsu koji ih je otkrio 1873. godine istražujući svojstva realnih plinova. To su sile kojima dipolne molekule privlače druge dipolne molekule (*dipol – dipolno privlačenje*). Takvi spojevi su obično teže taljivi i hlapljivi od onih bez dipolnih molekula. Osim što se dipolne molekule međusobno privlače, one privlače i pozitivne i negativne ione (*ion – dipolno privlačenje*) te mogu s njima tvoriti *ion – dipolnu vezu*. Budući da visoko pozitivno ili negativno nabijeni ioni mogu kod nepolarnih molekula izazvati dipol

(*inducirani* dipol) deformacijom elektronske strukture, oni se također mogu privlačiti pa tada govorimo o *ion – inducirano dipolno privlačenje* [22].

Adsorpcije su većinom reverzibilni procesi gdje se dva suprotna procesa odvijaju približno jednakim brzinama tako da se u promatranom sustavu ne primjećuje promjena tijekom dužeg vremena. Odnosno, u određenom trenutku dolazi do dinamičke ravnoteže između adsorbiranih i neadsorbiranih čestica, tj. između brzine adsorpcije i desorpcije (pojava oslobađanja čestica s površine adsorbensa).

Množina adsorbirane tvari ovisi o slijedećim čimbenicima:

- O relativnoj površini i prirodi adsorbensa – potrebno je da čestice adsorbensa budu što sitnije kako bi im aktivna površina bila veća, te da po prirodi budu amorfne jer će se uvijek više tvari adsorbirati nego li na kristalnim adsorbensima jednake površine.
- O koncentraciji adsorbata (ako je u otopini) – što je veća koncentracija adsorbata, više se tvari adsorbira do postizanja ravnoteže
- O tlaku adsorbata (ako je plin) – što je veći tlak adsorbata, više će se tvari adsorbirati do postizanja ravnoteže
- O temperaturi – adsorpcije su većinom egzotermni procesi pa se pri višim temperaturama manje tvari adsorbira

Prilikom mjerenja, adsorpcija se najčešće izražava *adsorpcijskim molalitetom* q_r, što predstavlja množinu adsorbirane tvari n_B po masi adsorbensa m_A (gdje je površina razmjerna masi) u ravnoteži pri stalnoj temperaturi:

$$q_r = \frac{n_B}{m_A} = \frac{(c_P - c_r)V_S}{m_A} \tag{27}$$

gdje c_P predstavlja početnu koncentraciju adsorbata (koncentraciju prije adsorpcije), a c_r koncentraciju dijela adsorbata koji se nije adsorbirao, odnosno koncentraciju adsorbata u ravnoteži. Koncentraciju izražavamo u mjernoj jedinici $\frac{mol}{dm^3}$. Volumen V_S predstavlja volumen sustava, tj. volumen otopine.

Pratimo li tijekom adsorpcije pri stalnoj temperaturi ovisnost množine adsorbirane tvari po jedinici mase adsorbensa o koncentraciji otopine (ili tlaku ako je plin), dobit ćemo krivulju – *adsorpcijska izoterma.*

Postoji niz adsorpcijskih izoterma, a neke od njih su *Langmuirova izoterma i Freundlichova izoterma.*

Langmuirova izoterma je dobila naziv po Irwingu Langmuiru koji je 1916. prvi fizikalno i matematički objasnio adsorpcije i izoterme koje opisuju takve procese. Langmuirovom izotermom je opisao adsorpciju plina na čvrstim tvarima u kojoj molekule plina zauzimaju jednaku površinu tvari, ali interakcije među njima su zanemarive, postoji jednaka vjerojatnost za mogućnost adsorpcije na čitavoj površini adsorbensa, te je ona isključivo jednoslojna. U takvom slučaju adsorpcija prestaje kad je zauzeta sva površina adsorbensa. Kod takve izoterme imamo „plato“ što predstavlja točku zasićenja nakon koje više nema adsorpcije [23].

Vrijednost adsorpcijskog molaliteta kod opisane adsorpcije se dobije na sljedeći način:

$$q_r = \frac{q_{max} K c_r}{1 + K c_r} \tag{28}$$

gdje je q_{max} oznaka za *maksimalnu vrijednost adsorpcijskog molaliteta* nakon nastajanja monosloja, a *K konstanta ravnoteže za adsorpciju* koju dobijemo pomoću formule:

$$K = \frac{k_{ads}}{k_{des}} \tag{29}$$

Koeficijent brzine adsorpcije označavamo sa k_{ads}, dok *koeficijent brzine desorpcije* sa k_{des}. Preoblikujemo li (28), dobivamo linearnu ovisnost:

$$\frac{1}{q_r} = \frac{1}{q_{max} \cdot K} \cdot \frac{1}{c_r} + \frac{K \cdot c_r}{q_{max} \cdot K \cdot c_r} \tag{30}$$

$$\frac{1}{q_r} = \frac{1}{q_{max} \cdot K} \cdot \frac{1}{c_r} + \frac{1}{q_{max}} \tag{31}$$

Langmuirovu izotermu možemo opisati bezdimenzijskim konstantnim faktorom razdvajanja R_L. Faktor računamo pomoću izraza:

$$R_L = \frac{1}{1+K \cdot c_0} \tag{32}$$

Gdje je c_0 početna koncentracija. Ovisno o iznosu faktora, možemo opisati adsorpciju tj. izotermu na sljedeće načine:

- $R_L > 1$ → Za takve vrijednosti adsorpcija je nefavorizirana;
- $0 < R_L < 1$ → Ako je vrijednost faktora između 0 i 1, adsorpcija je favorizirana;
- $R_L = 0$ → U slučaju da je vrijednost faktora jednak nuli, kažemo za adsorpciju da je nepovratni proces;
- $R_L = 1$ → Kod ovakvog slučaja govorimo o linearnoj adsorpciji [24].

Freundlichova adsorpcijska izoterma je najranije poznati model koji opisuje neidealnu i reverzibilnu adsorpciju. Predložio ju je njemački kemičar Herbert Freundlich 1909. godine. Empirijska je te se primjenjuje pri višeslojnim procesima kada vjerojatnost adsorpcije nije jednaka za sva mjesta na površini adsorbensa. Najčešće se koristi za opisivanje adsorpcija iz otopina:

$$q_r = K_F \cdot c_r^{\frac{1}{n}} \tag{33}$$

Sa K_F označavamo konstantu koja je približni indikator adsorpcijskog kapaciteta te ima mjernu jedinicu $\frac{mol}{kg}$, dok sa $\frac{1}{n}$ označavamo faktor koji govori o intenzitetu adsorpcije (adsorpcijski eksponent). Ipak, postoje tri vrijednosti kod kojih primjećujemo određena svojstva:

- $\frac{1}{n} = 1$ → raspodjela adsorbata između čvrstog i tekućeg stanja neovisna je o koncentraciji;
- $\frac{1}{n} > 1$ → ovakve vrijednosti su rijetke i tipične za slučajeve kada su sile koje dovode do stvaranja monosloja slabije;

- $\frac{1}{n} < 1$ → ovakve vrijednosti koeficijenta imamo kod normalne adsorpcije, a on tada ukazuje na heterogenost površine (što je manji koeficijent, veća je heterogenost).

Osim što opisuje heterogenost površine, faktor $\frac{1}{n}$ ukazuje i na vrstu adsorpcije. Ako ima vrijednost manju od 1, adsorpcija je kemijska, a ako ima vrijednost veću od 1, adsorpcija je fizikalna [23].

Ukoliko logaritmiramo izraz (33) dobit ćemo jednadžbu pravca:

$$\log q_r = \log K_F + \frac{1}{n} \log c_r \tag{34}$$

4.1. Adsorpcija radona u vodi

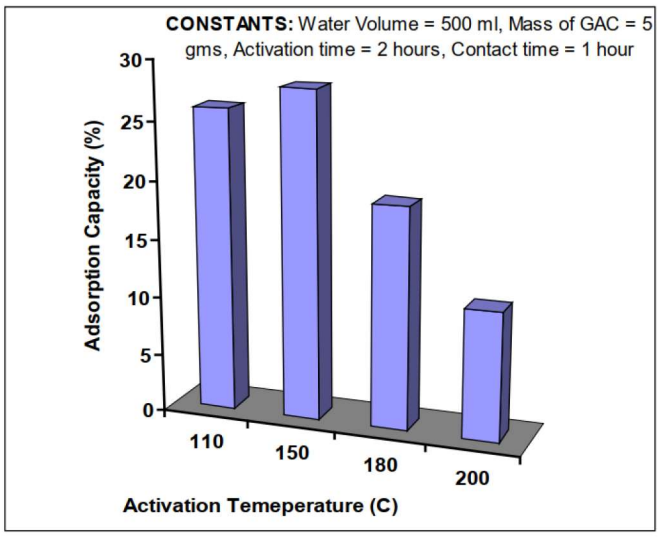
Adsorpcijom radona iz vode su se pozabavili već mnogi drugi znanstvenici. Metoda koja se pokazala vrlo učinkovitom jest adsorpcija pomoću aktivnog ugljena u granulama (GAC).

Tijekom 80-tih godina prošlog stoljeća u podzemnim vodama na području SAD – a izmjerene su velike koncentracije aktivnosti radona od oko $5{,}6 \cdot 10^4 \frac{Bq}{m^3}$. USEPA, američka agencija za zaštitu okoliša, je uložila mnogo truda kako bi ta koncentracija radona u pitkoj vodi pala na maksimalnu dozvoljenu vrijednost od $11{,}1 \frac{Bq}{dm^3}$. Istovremeno, u mnogim europskim zemljama su također izmjerene velike koncentracije radona jer se na području europskog kontinenta većinom koriste podzemni izvori pitke vode. Tako je pokrenut TENAWA projekt, u kojemu su testirane tehnike uklanjanja prirodnih radionuklida iz pitke vode. Tijekom istraživanja metoda filtriranja vode pomoću aktivnog ugljena u granulama pokazala se vrlo uspješnom jer aktivni ugljen adsorbira čestice radona. Osim što je ta metoda vrlo učinkovita, jeftina je i lako se može postaviti. Međutim, veliki nedostatak ove metode jest taloženje radona na filteru koji se zatim raspada na potomke s velikim vremenom poluraspada koji emitiraju gama zračenje. Nadalje, ta je metoda bila učinkovita za velike koncentracije aktivnosti radona pa se postavilo pitanje koliko je ona učinkovita za srednje i male koncentracije aktivnosti radona u vodi. Kako bi se to utvrdilo, provedeno je novo istraživanje. Prilikom istraživanja korištene su tri različite vrste aktivnog ugljena F – 300, F – 400 i HD – 4000. Granule svih triju vrsta aktivnog ugljena su bile podjednake veličine. Kao uzorak je korištena voda iz podzemnih izvora aktivnosti

$(96 \pm 11)\frac{Bq}{m^3}$. Ovo istraživanje je pokazalo da je metoda adsorpcije radona iz vode pomoć aktivnog ugljena učinkovita i kod srednjih vrijednosti koncentracije aktivnosti radona [7].

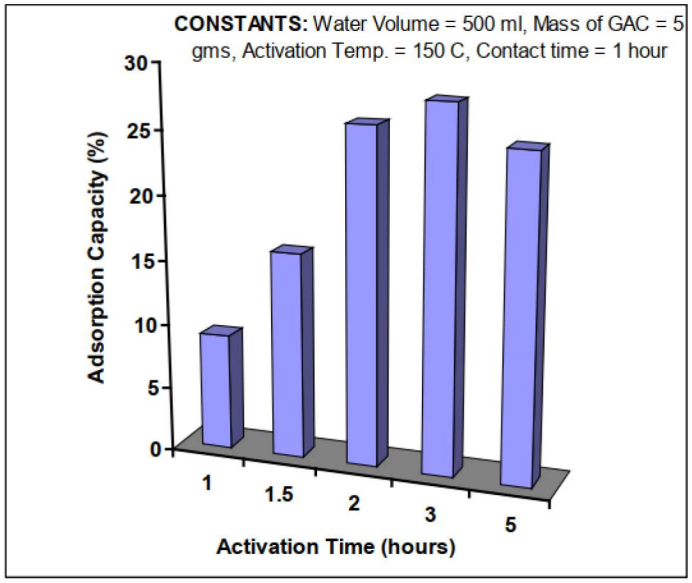
Smanjivanje koncentracije aktivnosti radona u bunarskoj vodi neophodno zbog očuvanja našeg zdravlja stoga su mnogi drugi autori izvještavali o GAC metodi. Neki tvrde da se efektivnost GAC – a smanjuje s vremenom, dok drugi i dalje upozoravaju na radioaktivni otpad koji nastane na filteru GAC – a jer je u nekim slučajevima uzrokovao značajan porast doze zračenja. Zbog toga se ne preporučuje primjena GAC – a u kućanstvima [7].

Pitanje koje se postavlja jest koji su optimalni uvjeti za aktivaciju GAC metode. Vođeni tom mišlju, tim znanstvenika je proučavao kako aktivacija GAC – a ovisi o temperaturi i vremenu. Prvo su testirali aktivaciju GAC – a na različitim temperaturama. 5 grama aktivnog ugljena u granulama aktivirali zagrijavanjem na 110 °C, 150 °C, 180°C i 200°C. Oba uzorka su stavljena na hlađenje tijekom noći, a zatim je u njih dodano 500 ml vode obogaćene radonom poznate koncentracije. Tijekom vremenskog intervala od 1 sata, najviše radona se adsorbiralo u uzorku gdje su granule bile zagrijavane na 110 °C, 150 °C, 180°C i 200°C. [7].



Slika 27. Ovisnost adsorpcije radona iz vode o temperaturi [7].

Kad je otkrivena optimalna temperatura, granule aktivnog ugljena su zagrijavane na 150 °C određeni broj sati (1 h, 1,5 h, 2 h, 3 h, 5 h) kako bi otkrili optimalno vrijeme aktivacije. Zatim su preko noći ostavljene da se ohlade i u svaki uzorak GAC – a je stavljeno 500 ml vode u kojoj se nalazio radon poznate koncentracije. Nakon jednog sata, rezultati su pokazali da se najviše čestica adsorbiralo u uzorku u kojemu su granule bile zagrijavane 3 h [7].



SLIKA 28. Ovisnost adsorpcije radona iz vode o vremenu zagrijavanja [7].

Nadalje, proučavani su čimbenici koji utječu na adsorpciju radona iz vode pomoću GAC – a, a to su:

- Količina GAC-a koja se koristi
- Vrijeme kontakta GAC-a i uzorka vode
- Volumen uzorka vode

Pri stalnom volumenu uzorka, povećavana je masa GAC-a. Nakon određenog vremena kontakta (0,5 h, 1 h, 2 h, 6 h, 12 h i 24 h) zabilježene su količine radona koje su preostale u uzorku. Rezultati su pokazali da se u uzorcima sa većom masom GAC-a, odmakom vremena, smanjivala količina radona. Što znači da veća količina GAC-a u uzorku pospješuje adsorpciju radona iz vode. Isto tako, iz rezultata je vidljivo da porast vremena kontakta GAC-a sa uzorkom također pridonosi adsorpciji radona. Nakon samo 12 sati kontakta u uzorcima volumena 250 ml, 500 ml i 1000 ml gdje je dodano 5 grama GAC-a ostalo je 13%, 42% i 43% početne količine radona, a nakon kontakta u vremenu od 24 sata u istim uzorcima ostalo je 8%, 19% i 25% početne količine radona. Nakon što je uzet u obzir raspad radona, te su vrijednosti povećane na 23%, 33% i 40%. Uspoređivanjem postotka preostalog radona u uzorcima sa različitim volumenima, a istim masama GAC-a vidljivo je da se smanjuje učinkovitost GAC-a povećanjem volumena uzorka. Odnosno, povećanjem volumena uzorka, mora se povećati i masa korištenih granula [8].

Tablica 1. Rezultati uklanjanja radona iz vode GAC metodom [8].

GAC Mass (g)	Contact Time (hr)	0	0.50	1	2	6	12	24
		Relative Radon Remainder (%)						
0	Water Volume 250 ml	100	100	99	98	95	92	84
1		100	85	77	57	41	21	17
2		100	78	63	45	35	13	11
5		100	62	54	42	26	11	8
0	Water Volume 500 ml	100	100	99	99	97	93	86
1		100	88	76	68	55	44	35
2		100	85	73	65	54	42	31
5		100	52	70	61	46	33	19
0	Water Volume 1000 ml	100	100	99	98	98	94	85
1		100	89	84	70	62	47	39
2		100	87	83	70	59	43	28
5		100	83	71	65	50	38	25

Rezultati su također pokazali da se efektivnost granula aktivnog ugljena nije previše smanjivala ponovnim korištenjem. Na kraju autori upozoravaju da je i dalje glavni problem kod GAC metode filter na kojemu se talože čestice radona koje se raspadaju na potomke s dugim vremenom poluraspada (^{210}Pb sa vremenom poluraspada 22,3 godine) koje emitiraju gama zračenje [8].

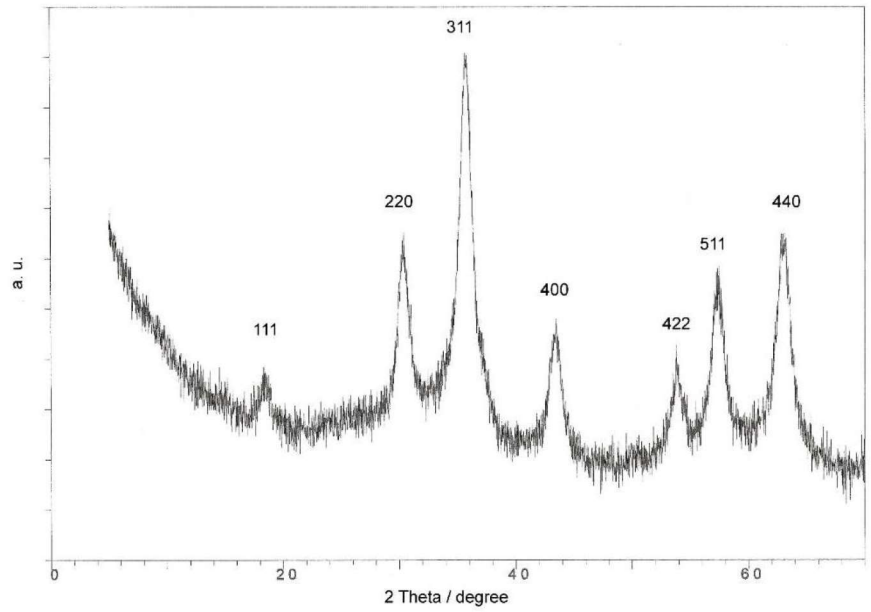
5. MJERENJA I REZULTATI

5.1. Postupak mjerenja

Kako bi se moglo provjeriti je li moguća adsorpcija radona u vodi na magnetitu (Fe_3O_4), bilo je potrebno pripremiti uzorke.

Magnetit je pripravljen sukladno [25].

Rendgensko difrakcijsko mjerenje (XRD) koje je izvedeno uređajem Philips 3710 s 40 mA, 40 kV i monokromatiziranim $Cu - K\alpha$ zračenjem. Pri tome je korišten program X'Pert, a uzorak je snimljen pri temperaturi 293 K u području 2θ od 5 do 70° brzinom $0{,}02\ °/s$.



Slika 29. Rendgenski difraktogram sintetiziranog magnetita.

Slika 29. prikazuje maksimume pri 18°, 30°, 35°, 43°, 54°, 57° i 63°, s pripadajućim Millerovim indeksima (111), (220), (311), (400), (422), (511) i (440), a to znači da uzorak sadrži čiste i kristalne Fe_3O_4 nanočestice.

Magnetično svojstvo magnetita omogućuje jednostavno razdvajanje čvrste od tekuće faze na kraju adsorpcije pomoću magneta.

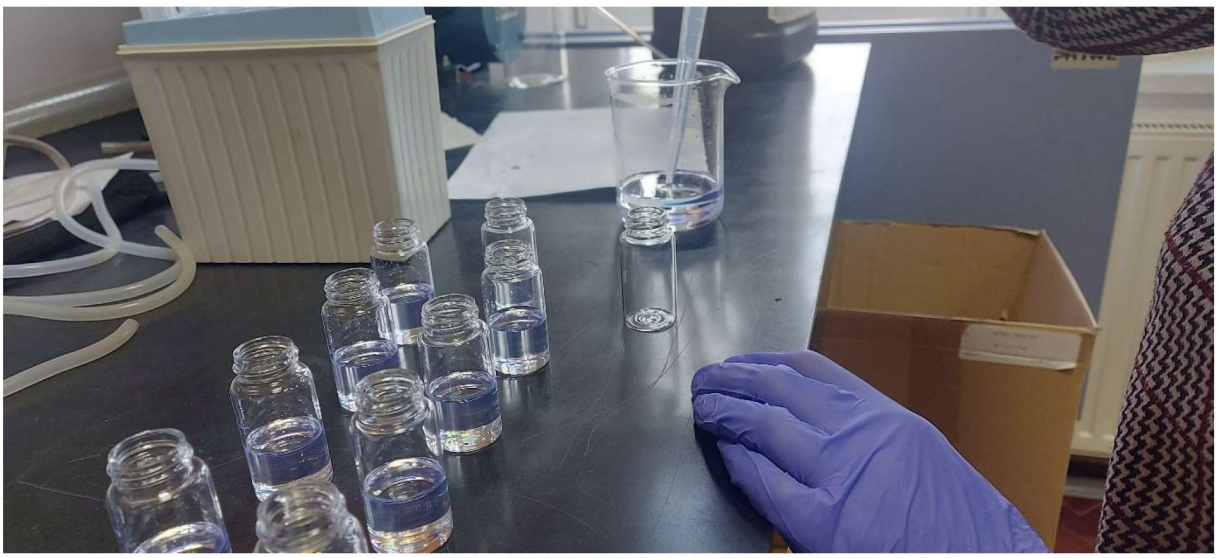
Budući da ^{222}Rn nastaje raspadom ^{226}Ra, razrjeđivanjem standarda radija destiliranom vodom, dobiveni su uzorci različitih koncentracija aktivnosti. U tu svrhu korišten je standard radija aktivnosti A (^{226}Ra) =$(3731 \pm 26)\ Bq$, proizvođač Institut za meteorologiju, Češka Republika. Isti standard korišten je i za kalibraciju LSC uređaja. Nakon 28 dana postignuta je sekularna ravnoteža gdje je jezgra kćeri, odnosno radona postigla aktivnost jezgre majke, odnosno radija.

Budući da su uzorci niskih pH vrijednosti (oko 2), odnosno vrlo kiseli, postavlja se pitanje kako adsorpcija ovisi o pH vrijednosti. U svrhu toga, uzorci su titrirani sa NaOH (natrijevom lužinom) poznatih koncentracija te je tako za svaku koncentraciju aktivnosti dobiven po jedan kiseli, neutralni i lužnati uzorak. Tijekom titracije, pH vrijednost uzoraka je praćena pH-metrom HandiLab 100, SI Analytics (XYLEM Analytics, Njemačka). Dobivanje neutralne vrijednosti

je bio pravi izazov. Tijekom titriranja sa NaOH, pH vrijednost bi vrlo brzo skočila te bi uzorak postao lužnat pa se pri tome za titraciju koristila i HNO_3 (dušična kiselina) kako bi neutralizirali otopinu.

Slika 30. pH-metar *HandiLab 100, SI Analytics* (XYLEM Analytics, Njemačka).

Bilo je potrebno pripremiti vijale s koktelima. 10 ml koktela je pipetirano u vijale u koje je kasnije dodano 10 ml uzorka. Za ovo istraživanje korišten je koktel Ultima Gold F.



Slika 31. Pipetiranje koktela u vijale.

U svaku vijalu s 20 ml vode bogatom radonom dodano je 0,03 g adsorbensa. Zatim su pripremljene vijale stavljene u miješalicu tijekom vremenskog intervala od 10 min. Budući da su se na magnetit vezale čestice radona, bilo je potrebno magnetskim razdavanjem odvojiti magnetit od prozirnog dijela uzorka u kojemu se nalaze čestice radona koje se nisu vezale za magnetit. Budući da magnetit ima magnetska svojstva odvojen je pomoću neodimijskih magneta. Vijala je postavljena na neodimijski magnet te su čestice magnetita „oborene“ na dno posude. Neodimijski magnet je vrsta permanentnog (trajnog) magneta, a načinjen od neodimija (Nd), željeza (Fe) i bora (Br).

Slika 32. Uzorak prije magnetskog razdvajanja s neodimijskim magnetom.

Slika 33. Uzorak nakon magnetskog razdvajanja s neodimijskim magnetom.

Na kraju je 10 ml prozirnog dijela uzorka (nastalog nakon magnetskog razdvajanja) pipetirano u vijale s koktelima jer je za mjerenje aktivnosti radona korišten scintilacijski detektor TriCarb

2900 čija su svojstva i način rada opisani ranije. Vijale je bilo potrebno promućkati na trenutak kako bi se koktel i uzorak sjedinili, a zatim su poslagane u kazetu. Kazeta je stavljena u uređaj TriCarb2900 koji je mjerio aktivnost radona preostalog u uzorku nakon adsorpcije. Čestice magnetita koje su oborene na dno su adsorbirane čestice radona u vodi.

Slika 34. Kazeta sa vijalama.

5.2. Rezultati mjerenja

Uređaj je početnu koncentraciju adsorbata i koncentraciju u ravnoteži izmjerio u mjernoj jedinici $\frac{Bq}{dm^3}$ stoga je rezultate potrebno prebaciti u mjernu jedinicu $\frac{mol}{dm^3}$ zbog daljnjih izračuna.

Za potrebe izvoda, označimo koncentraciju aktivnosti sa A. Koncentraciju aktivnosti adsorbata dobivamo kao omjer aktivnosti po jedinici veličine, a to je u ovome slučaju volumen:

$$A = \frac{A'}{V} \tag{35}$$

Nadalje, uvrstimo li za aktivnost A' izraz (20) dobijemo:

$$A = \frac{N \cdot \lambda}{V} \tag{36}$$

Broj čestica N, možemo izraziti pomoću izraza za količinu tvari na sljedeći način:

$$n = \frac{N}{N_A} \tag{37}$$

gdje je N_A oznaka za Avogadrovu konstantu koja iznosi $6{,}022 \cdot 10^{23} mol^{-1}$. Iz (37) slijedi da je:

$$N = n \cdot N_A \tag{38}$$

Uvrstimo li to u (36) dobijemo:

$$A = \frac{n}{V} \cdot N_A \cdot \lambda \tag{39}$$

Uočimo li s desne strane jednadžbe (39) omjer količine tvari i volumena, možemo zaključiti da se tu radi o *molarnoj (množinskoj) koncentraciji c*, koju izražavamo mjernom jedinicom $\frac{mol}{dm^3}$, a ona je upravo jednaka koncentraciji adsorbata prije adsorpcije i koncentracije adsorbata u ravnoteži. Prilagode li se tome oznake, dobijemo sljedeće:

$$A = c \cdot N_A \cdot \lambda \tag{40}$$

$$c = \frac{A}{N_A \cdot \lambda} \tag{41}$$

Ako konstantu radioaktivnog raspada zapišemo pomoću izraza (16), uz poznavanje vremena poluraspada radioaktivnog adsorbata (koje za radon iznosi 3,8 dana), lako možemo iz koncentracije aktivnosti dobiti molarnu koncentraciju:

$$c = \frac{A}{N_A \cdot \frac{ln\,2}{t_{1/2}}} \tag{42}$$

$$c = \frac{A \cdot t_{1/2}}{N_A \cdot ln\,2} \tag{43}$$

Tablica 2. Rezultati mjerenja pH vrijednosti uzorka, mase adsorbensa i koncentracije radona u otopini prije i nakon adsorpcije na magnetitu u kiseloj otopini.

ma	pH PRIJE	pH POSLIJE	m_A	A_p	c_p	A_r	c_r
			$[g]$	$\left[\frac{Bq}{dm^3}\right]$	$\left[\frac{mol}{dm^3}\right]$	$\left[\frac{Bq}{dm^3}\right]$	$\left[\frac{mol}{dm^3}\right]$
1.	1,563	1,593	0,03	467,64	$3{,}6960 \cdot 10^{-16}$	245,09	$1{,}9371 \cdot 10^{-16}$
2.	1,970	1,966	0,03	170,18	$1{,}3450 \cdot 10^{-16}$	104,00	$8{,}2197 \cdot 10^{-17}$
3.	2,158	2,191	0,03	115,27	$9{,}1105 \cdot 10^{-17}$	65,09	$5{,}1444 \cdot 10^{-17}$
4.	2,461	2,491	0,03	54,91	$4{,}3399 \cdot 10^{-17}$	33,82	$2{,}6730 \cdot 10^{-17}$
5.	2,767	2,820	0,03	27,27	$2{,}1553 \cdot 10^{-17}$	15,27	$1{,}2069 \cdot 10^{-17}$

Tablica 3. Rezultati mjerenja pH vrijednosti uzorka, mase adsorbensa i koncentracije radona u otopini prije i nakon adsorpcije na magnetitu u kiseloj otopini (nastavak Tablice 2.).

	c_r^{-1}	$\log c_r$	q_r	q_r^{-1}	$\log q_r$
	$\left[\frac{dm^3}{mol}\right]$		$\left[\frac{mol}{g}\right]$	$\left[\frac{g}{mol}\right]$	
1.	$5{,}1624 \cdot 10^{15}$	-15,7128	$1{,}1726 \cdot 10^{-16}$	$8{,}5281 \cdot 10^{15}$	-15,9309
2.	$1{,}2166 \cdot 10^{16}$	-16,0851	$3{,}4869{,} \cdot 10^{-17}$	$2{,}8679 \cdot 10^{16}$	-16,4576
3.	$1{,}9439 \cdot 10^{16}$	-16,2887	$2{,}6640 \cdot 10^{-17}$	$3{,}7821 \cdot 10^{16}$	-16,5777
4.	$3{,}7411 \cdot 10^{16}$	-16,5730	$1{,}1113 \cdot 10^{-17}$	$8{,}9985 \cdot 10^{16}$	-16,9542
5.	$8{,}2857 \cdot 10^{16}$	-16,9183	$6{,}3227 \cdot 10^{-18}$	$1{,}5816 \cdot 10^{17}$	-17,1991

Tablica 4. Rezultati mjerenja pH vrijednosti uzorka, mase adsorbensa i koncentracije radona u otopini prije i nakon adsorpcije na magnetitu u neutralnoj otopini.

	pH PRIJE	m_A $[g]$	A_p $\left[\frac{Bq}{dm^3}\right]$	c_p $\left[\frac{mol}{dm^3}\right]$	A_r $\left[\frac{Bq}{dm^3}\right]$	c_r $\left[\frac{mol}{dm^3}\right]$
1.	6,56	0,03	244,36	$1{,}9313 \cdot 10^{-16}$	108,36	$8{,}5643 \cdot 10^{-17}$
2.	7,17	0,03	299,64	$2{,}3682 \cdot 10^{-16}$	114,18	$9{,}0243 \cdot 10^{-17}$
3.	6,65	0,03	189,82	$1{,}5003 \cdot 10^{-16}$	68,36	$5{,}4029 \cdot 10^{-17}$
4.	6,22	0,03	85,82	$6{,}7828 \cdot 10^{-17}$	22,91	$1{,}8107 \cdot 10^{-17}$
5.	6,50	0,03	42,18	$3{,}3337 \cdot 10^{-17}$	10,91	$8{,}6228 \cdot 10^{-18}$

Tablica 5. Rezultati mjerenja pH vrijednosti uzorka, mase adsorbensa i koncentracije radona u otopini prije i nakon adsorpcije na magnetitu u neutralnoj otopini (nastavak Tablice 4.).

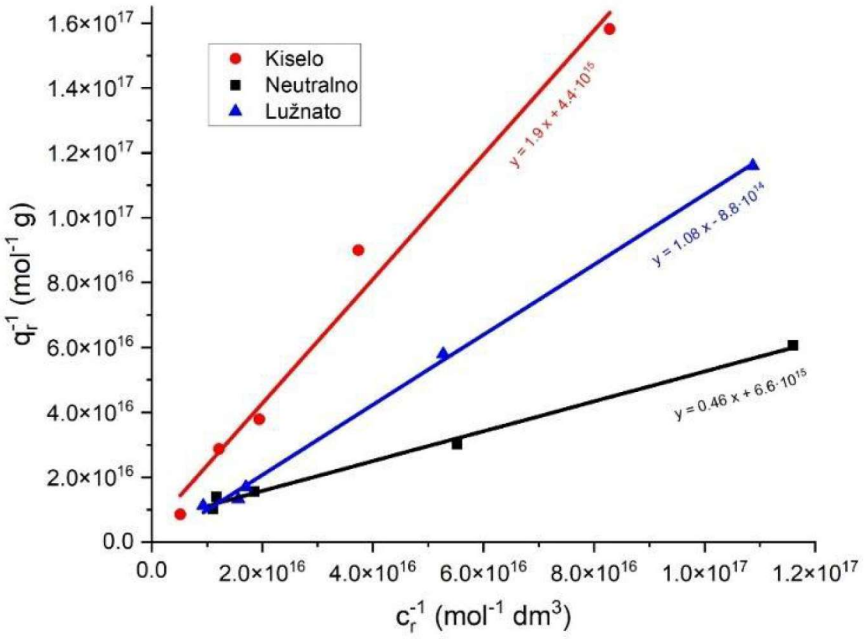
	c_r^{-1} $\left[\frac{dm^3}{mol}\right]$	$\log c_r$	q_r $\left[\frac{mol}{g}\right]$	q_r^{-1} $\left[\frac{g}{mol}\right]$	$\log q_r$
1.	$1{,}1676 \cdot 10^{16}$	-16,0673	$7{,}1658 \cdot 10^{-17}$	$1{,}3955 \cdot 10^{16}$	-16,1447
2.	$1{,}1081 \cdot 10^{16}$	-16,0446	$9{,}7718 \cdot 10^{-17}$	$1{,}0234 \cdot 10^{16}$	-16,0100
3.	$1{,}8509 \cdot 10^{16}$	-16,2674	$6{,}4001 \cdot 10^{-17}$	$1{,}5625 \cdot 10^{16}$	-16,1939
4.	$5{,}5227 \cdot 10^{16}$	-16,7422	$3{,}3147 \cdot 10^{-17}$	$3{,}0169 \cdot 10^{16}$	-16,4796
5.	$1{,}1597 \cdot 10^{17}$	-17,0644	$1{,}6476 \cdot 10^{-17}$	$6{,}0694 \cdot 10^{16}$	-16,7831

Tablica 6. Rezultati mjerenja pH vrijednosti uzorka, mase adsorbensa i koncentracije radona u otopini prije i nakon adsorpcije na magnetitu u lužnatoj otopini.

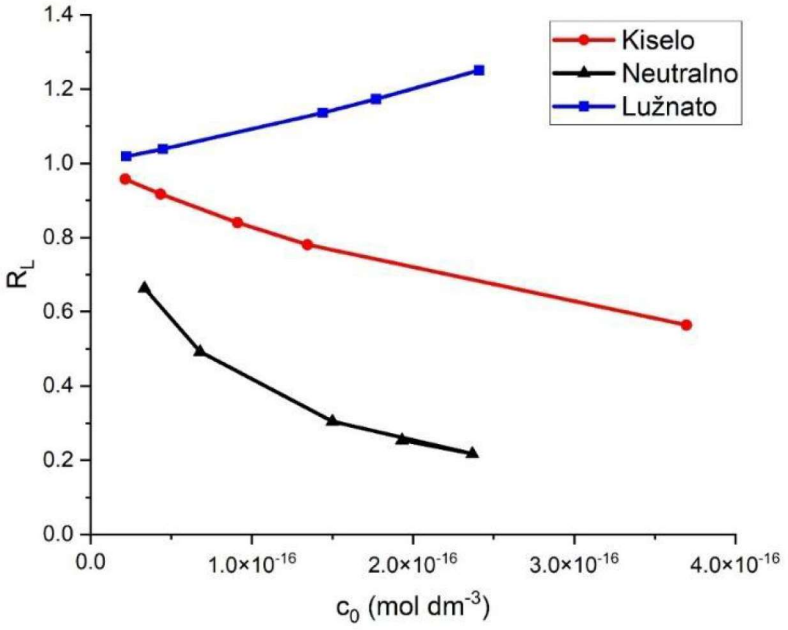
	pH PRIJE	**pH POSLIJE**	m_A	A_p	c_p	A_r	c_r
			$[g]$	$\left[\frac{Bq}{dm^3}\right]$	$\left[\frac{mol}{dm^3}\right]$	$\left[\frac{Bq}{dm^3}\right]$	$\left[\frac{mol}{dm^3}\right]$
1.	10,999	8,87	0,03	28,00	$2{,}2130 \cdot 10^{-17}$	11,64	$9{,}2000 \cdot 10^{-18}$
2.	11,125	10,46	0,03	56,73	$4{,}4837 \cdot 10^{-17}$	24,00	$1{,}8969 \cdot 10^{-17}$
3.	11,042	8,54	0,03	182,18	$1{,}4399 \cdot 10^{-16}$	70,55	$5{,}5760 \cdot 10^{-17}$
4.	10,966	7,97	0,03	224,00	$1{,}7704 \cdot 10^{-16}$	80,73	$6{,}3806 \cdot 10^{-17}$
5.	10,878	7,80	0,03	305,09	$2{,}4113 \cdot 10^{-16}$	136,00	$1{,}0749 \cdot 10^{-16}$

Tablica 7. Rezultati mjerenja pH vrijednosti uzorka, mase adsorbensa i koncentracije radona u otopini prije i nakon adsorpcije na magnetitu u lužnatoj otopini (nastavak Tablice 6.).

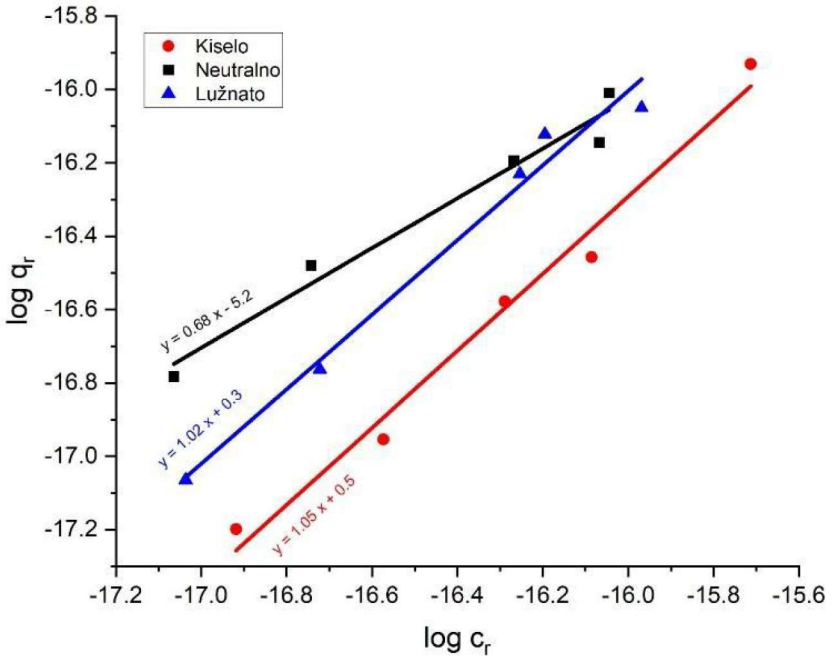
	c_r^{-1}	$\log c_r$	q_r	q_r^{-1}	$\log q_r$
	$\left[\frac{dm^3}{mol}\right]$		$\left[\frac{mol}{g}\right]$	$\left[\frac{g}{mol}\right]$	
1.	$1{,}0870 \cdot 10^{17}$	-17,0362	$8{,}6200 \cdot 10^{-18}$	$1{,}1601 \cdot 10^{17}$	-17,0645
2.	$5{,}2718 \cdot 10^{16}$	-16,7220	$1{,}7245 \cdot 10^{-17}$	$5{,}7988 \cdot 10^{16}$	-16,7633
3.	$1{,}7034 \cdot 10^{16}$	-16,2537	$5{,}8820 \cdot 10^{-17}$	$1{,}7001 \cdot 10^{16}$	-16,2305
4.	$1{,}5673 \cdot 10^{16}$	-16,1951	$7{,}5489 \cdot 10^{-17}$	$1{,}3247 \cdot 10^{16}$	-16,1221
5.	$9{,}3032 \cdot 10^{15}$	-15,9686	$8{,}9093 \cdot 10^{-17}$	$1{,}1224 \cdot 10^{16}$	-16,0502



Slika 35. Ovisnost recipročne vrijednosti adsorpcijskog molaliteta o recipročnoj vrijednosti ravnotežne koncentracije (Langmuirova izoterma)**.**



Slika 36. Ovisnost ravnotežnog parametra R_L o početnoj koncentraciji.



Slika 37. Ovisnost logaritma adsorpcijskog molaliteta o logaritmu ravnotežne koncentracije (Freundlichova izoterma).

Tablica 8. Parametri Freundlichove i Langmuirove izoterme.

IZOTERMA	PARAMETRI		KISELO	NEUTRALNO	LUŽNATO
Langmuirova izoterma	q_{max}	$\left[\frac{mol}{g}\right]$	$2{,}5000 \cdot 10^{-16}$	$1{,}4286 \cdot 10^{-16}$	$-1{,}1111 \cdot 10^{-15}$
	K_L	$\left[\frac{dm^3}{mol}\right]$	$2{,}0863 \cdot 10^{15}$	$1{,}5201 \cdot 10^{16}$	$-8{,}3263 \cdot 10^{14}$
	R_L		0,9570 − 0,5646	0,6637 − 0,2174	1,0188 − 1,2512
	R^2		0,9816	0,9940	0,9980
	R		0,9908	0,9970	0,9990
Freundlichova izoterma	$\frac{1}{n}$		1,0499	0,6786	1,0167
	K_F	$\left[\frac{mol}{g}\right]$	3,2100	$6{,}7952 \cdot 10^{-6}$	1,8310
	R^2		0,9825	0,9703	0,9820
	R		0,9912	0,9850	0,9910

Langmuirova izoterma služi za prikazivanje monoslojne adsorpcije na površini s ograničenim brojem mjesta. Prema ranije izvedenom izrazu Langmuirove jednadžbe (31), prikazana je linearna ovisnost recipročne vrijednosti adsorpcijskog molaliteta (q_r^{-1}) o recipročnoj vrijednosti koncentracije adsorbata u ravnoteži (c_r^{-1}) (Slika 35.) te su iz nagiba pravca i odsječka izračunati parametri izoterme.

U kiselom maksimalni adsorpcijski molalitet q_{max} iznosi $2{,}5000 \cdot 10^{-16}\,\frac{mol}{g}$, dok konstanta ravnoteže za adsorpciju K_L iznosi $2{,}0863 \cdot 10^{15}\,\frac{dm^3}{mol}$. Nadalje, u neutralnom q_{max} $1{,}4286 \cdot 10^{-16}\,\frac{mol}{g}$, a K_L $1{,}5201 \cdot 10^{16}\,\frac{dm^3}{mol}$. U kiselom i neutralnom okruženju oba parametra imaju podjednake vrijednosti, no K_L je ipak veći u neutralnom. Budući da u oba slučaja konstanta ima veliku vrijednost, to nam govori da je adsorpcija u takvim okruženjima favorizirana.

U lužnatom, zbog negativnog sjecišta y-osi, q_{max} iznosi $-1{,}1111 \cdot 10^{-15}\,\frac{mol}{g}$, a K_L $-8{,}3263 \cdot 10^{14}\,\frac{dm^3}{mol}$ te oni nemaju realno značenje.

Ravnotežni parametar R_L možemo izračunati prema izrazu (32). Iz tablice vidimo da u kiselom okruženju iznosi $0{,}9570 - 0{,}5646$, a u neutralnom $0{,}6637 - 0{,}2174$, odnosno ima vrijednost između 0 i 1 što govori da je u tim okruženjima adsorpcija radona u vodi na magnetitu favorizirana. U lužnatom ravnotežni parametar iznosi $1{,}0188 - 1{,}2512$, što je veće od 1, a to nam govori da je adsorpcija radona u lužnatom okruženju na magnetitu nefavorizirana. Uzimajući u obzir prethodne parametre, možemo reći da su u skladu s ravnotežnim parametrom.

Usporedimo li dobivene koeficijente determinacije (R^2) kod Langmuirove izoterme, vidimo da je on najveći za lužnate (0,9980), zatim za neutralne otopine (0,9940), a najmanji je za kisele otopine (0,9816). Unatoč velikoj vrijednosti koeficijenta u lužnatoj otopini, izoterma ima negativno sjecište y-osi što se može objasniti desorpcijom pri nižim koncentracijama radona [26].

Koeficijent korelacije R možemo dobiti korjenovanjem koeficijenta determinacije (R^2). Kod Langmuirove izoterme za kisele otopine on iznosi 0,9908, za neutralne otopine 0,9970, a za lužnate 0,9980. Možemo vidjeti da je za svako područje pH vrijednosti koeficijent korelacije između $0{,}8 \leq R < 1$ što nam govori da je korelacija između c_r^{-1} i q_r^{-1} pozitivna i vrlo jaka. U programu SPSS analizirana je značajnost na razini 1% za koeficijente korelacije u svim

područjima pH vrijednosti. Rezultati analize (Tablice 9. - 11.) su pokazali da na razini 1% značajnosti postoji veza između q_r^{-1} *i* c_r^{-1}.

Correlations

		cr_1	qr_1
cr_1	Pearson Correlation	1	,991**
	Sig. (2-tailed)		,001
	N	5	5
qr_1	Pearson Correlation	,991**	1
	Sig. (2-tailed)	,001	
	N	5	5

**. Correlation is significant at the 0.01 level (2-tailed).

Tablica 9. Rezultati testa značajnosti za korelacijski koeficijent u kiselom okruženju na razini 1% značajnosti.

Tablica 10. Rezultati testa značajnosti za korelacijski koeficijent u neutralnom okruženju na razini 1% značajnosti.

Correlations

		cr_1	qr_1
cr_1	Pearson Correlation	1	,997**
	Sig. (2-tailed)		,000
	N	5	5
qr_1	Pearson Correlation	,997**	1
	Sig. (2-tailed)	,000	
	N	5	5

**. Correlation is significant at the 0.01 level (2-tailed).

Tablica 11. Rezultati testa značajnosti za korelacijski koeficijent u lužnatom okruženju na razini 1% značajnosti.

Correlations

		cr_1	qr_1
cr_1	Pearson Correlation	1	,999**
	Sig. (2-tailed)		,000
	N	5	5
qr_1	Pearson Correlation	,999**	1
	Sig. (2-tailed)	,000	
	N	5	5

**. Correlation is significant at the 0.01 level (2-tailed).

Freundlichova adsorpcijska izoterma se koristi za prikaz višeslojnih adsorpcija kod heterogenih površina. Parametri Freundlichove izoterme dobivaju se iz nagiba pravca i odsječka grafičkog prikaza ovisnosti $\log q_r$ o $\log c_r$ (Slika 36.) čija jednadžba pravca dana izrazom (34).

Rezultati pokazuju da je faktor $\frac{1}{n}$ za kisela i lužnata područja veći od 1 što nam govori da je u takvim područjima ukazuje na to da se odvija fizisorpcija, dok u neutralnom kemisorpcija jer je faktor manji od 1.

Nadalje, koeficijent K_F u kiselim otopinama iznosi $3{,}2100\frac{mol}{g}$, u neutralnim otopinama $6{,}7952 \cdot 10^{-6}\frac{mol}{g}$, dok u lužnatim otopinama $1{,}8310\frac{mol}{g}$ stoga možemo zaključiti da se najviše radona vezalo za magnetit u kiselim otopinama. Budući da Freundlichova izoterma nema maksimume, velike vrijednosti koeficijenta u kiselom i lužnatom okruženju nisu iznenađenje [27].

Usporedimo li koeficijent K_F sa koeficijentom K_L možemo reći da je adsorpcija radona višeslojna u svim područjima pH vrijednosti bez obzira što u neutralnom K_F ima značajno manju, ali realniju vrijednost.

Koeficijent korelacije kod Freundlichove izoterme je najveći u kiselom (0,9912), nešto manji u lužnatom (0,9910), a najmanji u neutralnim otopinama (0,9850). Možemo vidjeti da je za svako područje pH vrijednosti koeficijent korelacije između $0{,}8 \leq R < 1$ što nam govori da je korelacija između $\log c_r$ i $\log q_r$ pozitivna i vrlo jaka. U programu SPSS analizirana je značajnost na razini 1% za koeficijente korelacije u svim područjima pH vrijednosti. Rezultati analize (Tablice 12. - 14.) su pokazali da na razini 1% značajnosti postoji veza između $\log q_r$ i $\log c_r$.

Tablica 12. Rezultati testa značajnosti za korelacijski koeficijent u kiselom okruženju na razini 1% značajnosti.

Correlations

		log_cr	log_qr
log_cr	Pearson Correlation	1	,991**
	Sig. (2-tailed)		,001
	N	5	5
log_qr	Pearson Correlation	,991**	1
	Sig. (2-tailed)	,001	
	N	5	5

**. Correlation is significant at the 0.01 level (2-tailed).

Tablica 13. Rezultati testa značajnosti za korelacijski koeficijent u neutralnom okruženju na razini 1% značajnosti.

Correlations

		log_cr	log_qr
log_cr	Pearson Correlation	1	,985**
	Sig. (2-tailed)		,002
	N	5	5
log_qr	Pearson Correlation	,985**	1
	Sig. (2-tailed)	,002	
	N	5	5

**. Correlation is significant at the 0.01 level (2-tailed).

Tablica 14. Rezultati testa značajnosti za korelacijski koeficijent u lužnatom okruženju na razini 1% značajnosti.

Correlations

		log_cr	log_qr
log_cr	Pearson Correlation	1	,991**
	Sig. (2-tailed)		,001
	N	5	5
log_qr	Pearson Correlation	,991**	1
	Sig. (2-tailed)	,001	
	N	5	5

**. Correlation is significant at the 0.01 level (2-tailed).

Usporedimo li koeficijent korelacije Langmuirove i Freundlichove izoterme za područja različitih pH vrijednosti, vidimo da je u kiselom on veći kod Freundlichove izoterme. U neutralnom i lužnatom okruženju je veći kod Langmuirove izoterme nego li kod Freundlichove.

S obzirom da nanočestice željezovih oksida mijenjaju naboj pod utjecajem pH vrijednosti, teško je pretpostaviti kakva je priroda veza između magnetita i radona u vodi. Magnetit ima površinske $-OH$ grupe koje mogu postati pozitivno ili negativno nabijene. U kiselom okruženju odvija se vezivanje protona (protoniranje), a te grupe postaju pozitivno nabijene kao $-OH_2^+$

dok u neutralnom i lužnatom okruženju $-OH$ grupe ionizacijom odbacuju H^+ ione i postaju negativno nabijene kao $-O^-$ [28].

Radon može, kao i magnetit, biti u ionskom obliku u vodi ovisno o pH vrijednosti otopine jer pri $pH > 5$ mogu nastati pozitivni i negativni ioni kao što su $[HRnO_3]^+$ i $[HRnO_3]^-$ [29].

Porast pH vrijednosti na kraju adsorpcije u kiselom je u rasponu od 0,01 do 0,05 pH jedinica što nam govori da H^+ ioni ne sudjeluju u adsorpciji radona na magnetitu u ovim uvjetima jer mu se koncentracija neznatno smanjuje. Slično je opaženo i pri adsorpciji boje metilensko modrilo na magnetične nanočestice oksida željeza [30].

S druge strane, na kraju adsorpcije u lužnatom imamo pad pH vrijednosti u rasponu od 0,67 do 3,08 pH jedinice pa se može zaključiti da OH^- ioni sudjeluju u adsorpciji pri ovakvim uvjetima, a posebice pri višim koncentracijama kada im se koncentracija značajnije smanjuje.

6. ZAKLJUČAK

U ovome diplomskom radu je proučavana adsorpcija ^{222}Rn iz vode na magnetitu. Iz standarda ^{226}Ra ,čijim raspadom nastaje ^{222}Rn, pomoću destilirane vode dobiveni su uzorci različitih koncentracija aktivnosti. Nakon 28 dana postignuta je sekularna ravnoteža između jezgre potomka (radona) i jezgre majke (radija). Od svake koncentracije je napravljen po jedan kiseli, neutralni i lužnati uzorak.

Budući da su parametri Langmuirove izoterme (q_{max} i K_L) pozitivni i vrlo veliki za kisela i neutralna okruženja, možemo reći da je u njima adsorpcija favorizirana. Nasuprot tome, vrijednosti parametara u lužnatom okruženju su negativne pa nemaju realno značenje. Osim toga, vrijednost ravnotežnog parametra R_L je za neutralna i kisela okruženja između 0 i 1 što potvrđuje da je u tim otopinama adsorpcija favorizirana, dok je u lužnatom okruženju on veći od 1 što ukazuje na nefavoriziranost adsorpcije.

Budući da je Freundlichov parametar koeficijent K_F najveći u kiselom, možemo zaključiti da se najviše radona vezalo za magnetit u kiselom okruženju, zatim u lužnatom okruženju i na kraju u neutralnom. Faktor $1/n$ u kiselom i lužnatom je veći od 1 što nam govori da se u takvim

područjima pH vrijednosti odvija fizisorpcija, a kod neutralnih otopina je manji od 1 što ukazuje na kemisorpciju.

Osim toga, možemo primijetiti da je sudjelovanje OH^- iona značajno, osobito kod velikih koncentracija, dok H^+ ioni neznatno sudjeluju u adsorpciji.

Analiziranjem podataka možemo zaključiti da se magnetit može koristiti kao adsorbens za adsorpciju radona iz vode te da je adsorpcija radona u vodi na magnetitu bila višeslojna uspoređujući parametre Langmuirove (q_{max}) i Freundlichove (K_F), a tome u prilog idu i koeficijenti korelacije za oba modela koji su veći od 0,8.

7. LITERATURA

[1] B. Chen, T. W. Yuan, A. Q. Wang, H. Zhang, L. J. Fang, Q. Q. WU, H. B. Zhang, S. S. Tao i H. L. Tian, »Exposure to Radon and Kidney Cancer: A Systematic Review and Meta-analysis of Observational Epidemiological Studies,« *Biomedical and Environmental Sciences,* pp. 805-818, 2018..

[2] A. V. Nero, A. J. Gadgil, W. W. Nazaroff i K. L. Revzan, »Indoor Radon and Decay Products: Concentrations, Causes, and Control Strategies,« Lawrence Berkeley National Lab. (LBNL), Berkeley, CA (United States), 1990..

[3] U. K. Saha, M. E. Kitto, D. R. Lynch, A. Bangar, P. R. Turner, G. Dean i L. S. Sonon, »Optimizing Sampling, Sample Processing, and Analysis Methods for Radon (222Rn) in Water By Liquid Scintillation, Counting,« *American Journal of Analytical Chemistry,* pp. 27-45, 2018.

[4] M. Plavšić, »Zašto moramo čuvati podzemne vode?,« *Hrvatska vodoprivreda,* pp. 24-29, 2022..

[5] Z. Nakić, »Zakonska regulativa na području zaštite izvora i zaliha pitke vode u RH,« u *Regionalno savjetovanje o pitkoj vodi*, 2007..

[6] World Health Organization (WHO), Management of radioactivity in drinking-water, GENEVA: WHO, 2018..

[7] A. I. Alabdula'aly i H. B. Maghrawy, »Comparative study of different types of granular activated carbon,« *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry,* pp. 77-85, 2010.

[8] D. S. Jastaniah, B. Z. Shakhreet, H. Y. Abbas, A. M. Elkhadir i S. M. Bafaraj, »Treatment of Radon Rich Bottled Water by Granular Activated Carbon Adsorption Method,« *Open Journal of Biophysics,* pp. 7-12, 2014.

[9] World Health Organization (WHO), Handbook on Indoor Radon: A Public Health Perspective, WHO, 2009..

[10] J. E. Martin, Physics for Radiation Protection, Wiley, 2013.

[11] D. Halliday, R. Resnick i J. Walker, Fundametals of Physics 9th edition, John Wiley & Sons, Inc., 2011.

[12] Z. Faj, Pregled povijesti fizike, Osijek: Sveučilište Josipa Jurja Strossmayera, Pedagoški fakultet, 1999..

[13] R. Chang i J. Overby, General Chemistry: The Essential Concepts, Sixth Edition, New York: The McGraw-Hill Companies, Inc., 2011.

[14] J. E. Turner, Atoms, Radiation, and Radiation Protection, Third, Completely Revised and Enlarged Edition, Weinheim: WILEY-VCH Verlag GmbH & Co., 2007..

[15] E. Etkina, G. Planinsc i A. Van Heuvelen, College Physics: Explore and Apply, New York: Pearson Education, Inc., 2019..

[16] H. D. Young, R. A. Freedman i L. A. Ford, University Physics with Modern Physics, 13th Edition, San Francisco: Pearson Education Inc., 2012..

[17] J. Magill i J. Galy, Radioactivity, Radionuclides, Radiation, New York: Springer, 2005..

[18] N. H. Chairman, R. G. McGregor, J. H. Harley, A. V. Nero i M. H. Wilkening, »Measurement of Radon and Radon Daughters in Air,« National Council on Radiation Protection and Measurements, 1988..

[19] IAEA; WHO, »Protection of the Public against Exposure Indoors due to Radon and Other Natural Sources of Radiation,« International Atomic Energy Agency (IAEA), Vienna, 2015..

[20] C. University, »Liquid Scintillation Counter User Manual,« u *Columbia University Environmental Health & Safety, Radiation Safety Program*, New York, 2021..

[21] P. Atkins i J. de Paula, Atkins' Physical Chemistry, New York: W. H. Freeman and Company, 2006..

[22] I. Filipović i S. Lipanović, Opća i anorganska kemija, I dio, Zagreb: Školska knjiga, 1985..

[23] M. Iram, C. Guo, Y. Guan, A. Ishfaq i H. Liu, »Adsorption and magnetic removal of neutral red dye from aqueous soluting using Fe3O4 hollow nanospheres,« *Journal of Hazardous Materials 181,* pp. 1039.-1050., 2010..

[24] I. J. Idan, L. C. Abdullah, D. S. Mahdi, M. K. Obaid i S. Md. Jamil, »Adsorption of Anionic Dye Using Cationic Surfactant - Modified Kenaf,« *Open Access Library Journal,* 2017..

[25] U. Schwertmann i R. M. Cornell, Iron Oxides in the Laboratory: Preparation and Characterization, Weinheim: VCH, 1991., p. 112..

[26] A. E. Boekhold, E. J. M. Temminghoff i S. E. A. T. M. Van der Zee, *Journal of Soil Science 44,* pp. 85.-96., 1993..

[27] G. D. Halsey, Advances in Catalysis 4, 1952..

[28] N. T. V. Hoan, N. A. Thu, H. V. Duc, N. D. Cuong, D. Q. Kheiu i V. VO, *Journal of Chemistry ,* pp. 1-10, 2016..

[29] J. H. Holloway i E. G. Hope, Advances in Inorganic Chemistry 46, 1998..

[30] X. Zhang, P. Zhang, L. Wu, L. Zhang, G. Zheng i C. Zhou, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects 435, 2013..

[31] S. N. Ahmed, Physics and Engineering of Radiation Detection, Elsevier, 2007..

[32] C. Anyika, N. A. M. Asri, Z. A. Majid, J. Jaafar i A. Yahya, *Applied Water Science 7,* pp. 4573.-4591., 2017..

[33] M. Kumar i R. Tamilarasan, »Modeling of experimental data for the adsorption of methyl orange from aqueous solution using a low cost activated carbon prepared from Prosopis juliflora,« *Polish Journal of Chemical Technology 15,* pp. 29.-39., 2013..

8. ŽIVOTOPIS

Josipa Namestnik, rođena u Đakovu 24. travnja 1997. godine. U razdoblju od 2004. do 2012. godine pohađala je OŠ Ivana Gorana Kovačića Đakovo gdje je stekla osnovnoškolsko obrazovanje. Srednjoškolsko obrazovanje stekla je u Gimnaziji Antuna Gustava Matoša Đakovo, jezični smjer u razdoblju od 2012. do 2016. godine. Preddiplomski studij fizike na Odjelu za fiziku u Osijeku je pohađala od 2016. godine do 2020. godine. Nakon završetka preddiplomskog studija upisuje Diplomski studij fizike i informatike nastavničkog smjera na Odjelu za fiziku u Osijeku.