

**UNIVERSITATEA DIN BUCUREȘTI
FACULTATEA DE CHIMIE
ȘCOALA DOCTORALĂ ÎN CHIMIE**

REZUMAT TEZĂ DE DOCTORAT

**CONTRIBUȚII LA STUDIUL RADIOACTIVITĂȚII
MEDIULUI AMBIANT**

Doctorand:
Elena SIMION

Conducător doctorat:
Prof. Dr. Ion MIHALCEA

2013

Mulțumiri

Doresc să adresez sincere mulțumiri și recunoștința mea domnului prof. dr. Ion MIHALCEA, conducătorul științific al lucrării, pentru îndrumarea atentă pe tot parcursul stagiului doctoral, fără de care această lucrare nu ar fi existat.

De asemenea doresc să adresez mulțumiri referenților pentru această teză de doctorat, domnului prof. dr. Corneliu PODINĂ, domnului prof. dr. Alexandru CECAL și domnului C.s.I dr. Traian ZAHARESCU, care au contribuit prin rigoare, exigență și competență la finalizarea tezei.

Mulțumesc Agenției Naționale pentru Protecția Mediului, prin serviciul Laborator Radioactivitate, pentru susținerea cu date prelucrate măsurate în cadrul Rețelei Naționale de Supraveghere a Radioactivității Mediului.

De asemenea mulțumesc doamnei Luminița COJOCARU, domnului Ion CHIOSILĂ și domnului Vasile CUCULEANU pentru sugestiile și comentariile care mi-au fost de mare ajutor la elaborarea tezei.

Nu în ultimul rând mulțumesc familiei mele pentru încrederea, susținerea și înțelegerea de care au dat dovadă pe parcursul acestor ani de studiu.

CUPRINS

PARTEA I - STUDIU DOCUMENTAR (LITERATURA DE SPECIALITATE)

INTRODUCERE	1
CAPITOLUL 1	
SURSE DE RADIAȚII ÎN MEDIU	4
1.1. RADIOACTIVITATEA NATURALĂ	6
1.1.1 Radiația cosmică	8
1.1.2 Radiația terestră	10
1.1.3 Radioactivitatea apelor și sedimentelor	13
1.1.4 Radioactivitatea naturală a atmosferei. Radonul	16
1.1.5 Radionuclizi în alimente	17
1.2 RADIOACTIVITATEA ANTROPICĂ	19
1.2.1 Testarea de armament nuclear	19
1.2.2 Centrale nucleare-electrice	21
CAPITOLUL 2	
CIRCUITUL IZOTOPILOR RADIOACTIVI ÎN MEDIU	25
2.1 PRINCIPALELE CĂI DE ACCES AL RADIONUCLIZILOR CĂTRE OM	30
2.2 FACTORI DE CONCENTRARE ȘI DE TRANSFER AI RADIONUCLIZILOR ÎN MEDIU	32
2.3 TRANSPORTUL RADIONUCLIZILOR PRIN MEDIU	32
2.3.1 Transportul radionuclizilor prin atmosferă	33
2.3.2 Transportul radionuclizilor în ecosisteme acvatice	37
2.3.3 Transportul radionuclizilor în ecosisteme terestre	39
CAPITOLUL 3	
DETECTAREA ȘI MĂSURAREA ACTIVITĂȚII RADIOACTIVITĂȚII	43
3.1 PRINCIPII FIZICE ALE MĂSURĂRII RADIOACTIVITĂȚII	43
3.1.1 Detectori bazați pe ionizarea în gaze	43
3.1.2 Detectori cu scintilație	47
3.1.3 Detectori cu semiconductori	51
3.1.4 Detectori bazați pe impresionarea emulsiilor fotografice	52
3.1.5 Detectori bazați pe fenomenul de termoluminiscentă și fotoluminiscentă	52
3.2 METODE DE DETECȚIE ȘI MĂSURARE A RADONULUI	53
3.2.1 Detectarea și determinarea concentrației de radon în atmosferă și încăperi	53
3.2.2 Determinarea concentrației radonului din apă și soluții apoase	54
3.3 METODE DE DETECȚIE ȘI MĂSURARE A TRITIULUI	55
3.4 METODE DE DETECȚIE ȘI MĂSURĂ A CESIULUI	55

CAPITOLUL 4	
EFECTELE EXPUNERII LA RADIAȚII	56
4.1 METABOLIZAREA RADIONUCLIZILOR	58
4.1.1 Metabolizarea radionuclizilor de către organismele vii	58

PARTEA A -II -A STUDIU EXPERIMENTAL ȘI CONTRIBUȚII ORIGINALE

CAPITOLUL 5	
STUDIUL PRIVIND OPTIMIZAREA PREGĂTIRII PROBELOR DE APĂ ÎN VEDEREA DETERMINĂRII ACTIVITĂȚII VOLUMICE A TRITIULUI	65
5.1 PRELEVAREA PROBELOR	66
5.2 MATERIALE ȘI METODE – METODA STANDARDIZATĂ	67
5.2.1 Materiale	67
5.2.2 Pregătirea probelor	68
5.2.3 Măsurarea probei	69
5.3 MATERIALE ȘI METODE – METODA NESTANDARDIZATĂ	70
5.3.1 Materiale	70
5.3.2 Pregătirea probelor	71
5.3.3 Măsurarea probei	72
5.4 REZULTATE ȘI DISCUȚII	73
5.4.1 Valori măsurate	73
5.4.2 Evaluarea criteriilor de performanță ale metodelor	77
5.5 CONCLUZII	83

CAPITOL 6	
STUDIUL DINAMICII TRITIULUI DIN PRECIPITAȚII	84
6.1 MATERIALE ȘI METODE	85
6.1.1 Metoda de prelevare	85
6.2 REZULTATE ȘI DISCUȚII	85
6.3 CONCLUZII	99

CAPITOLUL 7	
DETERMINAREA ACTIVITĂȚII SPECIFICE A TRITIULUI DIN SOL	99
7.1 DESCRIEREA ZONEI INVESTIGATE	99
7.2 MATERIALE ȘI METODE	101
7.3 REZULTATE ȘI DISCUȚII	102
7.4 CONCLUZII	120

CAPITOLUL 8	
MONITORIZAREA FACTORILOR DE MEDIU ÎN SITUAȚII DE ACCIDENT NUCLEAR SAU URGENȚĂ RADIOLOGICĂ. CAZUL ACCIDENTULUI DE LA FUKUSHIMA	122
8.1 MOD DE LUCRU	123
8.2 REZULTATE ȘI DISCUȚII	124
8.3 CONCLUZII	154

CAPITOLUL 9	
CORELAREA RADIOACTIVITĂȚII ATMOSFEREI CU VARIABILELE METEOROLOGICE	155
9.1 APARATURA ȘI METODELE DE MĂSURARE UTILIZATE	157
9.2 REZULTATE ȘI DISCUȚII	159
9.3 CONCLUZII	167
CAPITOLUL 10	
ESTIMAREA ȘI PREDICȚIA CONCENTRAȚIILOR DE DESCENDENȚI AI ²²²Rn ȘI ²²⁰Rn FOLOSIND VARIABILELE METEOROLOGICE	169
10.1 METODA DE MĂSURARE	170
10.2 REZULTATE ȘI DISCUȚII	170
10.2.1 Modelul regresiei liniare multiple	171
10.2.2 Estimarea și predicția de descendenți ai ²²² Rn și ²²⁰ Rn	171
10.3 CONCLUZII	179
CAPITOLUL 11	
STUDIUL MIGRĂRII ¹³⁷Cs DIN SOL ÎN MUȘCHI	181
11.1 MATERIALE ȘI METODE	182
11.2 Rezultate și discuții	181
11.3 CONCLUZII	191
CONCLUZII ȘI CONTRIBUȚII ORIGINALE	192
BIBLIOGRAFIE	198
Anexa – Contribuții personale care au fost publicate	213
Listă tabele	216
Listă figuri	219

(numerotarea tabelor, figurilor și a trimiterilor bibliografice este cea din teza de doctorat)

REZUMAT

La peste un secol de la descoperirea radioactivității naturale de către Henri Becquerel în 1896, purificarea și identificarea radiului și poloniului de către soții Curie în 1898 și descoperirea de către soții Joliot-Curie a radioactivității artificiale în 1934, radioactivitatea reprezintă un domeniu de avangardă, acoperind un spectru larg de aplicații civile și militare.

Dezvoltarea energiei nucleare și implicit a radioprotecției, prin studiul radiotoxicității elementelor a oferit baze științifice solide pentru reglementarea operațiunilor privind ciclul combustibilului nuclear și emisiile radionuclizilor în mediu [1]

Radiațiile provenite de la surse de radiații ionizante au devenit o parte necesară a vieții de zi cu zi, acoperind domenii precum alimentația, medicina, biologia, agricultura, industria etc. [2].

Acestora li se adaugă radioactivitatea naturală (radiațiile cosmice, radioactivitatea terestră, radonul) și artificială (provenită din testele cu arme nucleare, accidente nucleare, activitatea curentă a centralelor nucleare-electrice și a altor unități nucleare) existente în prezent în natură și care creează un mediu complex pentru organismele vii, inclusiv omul [3], [4].

Având în vedere faptul că radioactivitatea atât naturală, cât și artificială poate fi întâlnită în toate compartimentele de mediu, teza abordează un spectru larg de analize (beta globale, beta spectrometrice și gama spectrometrice, precum și debitul dozei gama absorbite în aer) și tipuri de probe: aer (prin debitul dozei gama absorbite în aer, aerosoli atmosferici, depuneri atmosferice totale și precipitații), apă, sol și vegetație spontană. Teza a fost elaborată prin prisma necesității de a rezolva probleme practice legate de eficientizarea lucrului și interpretarea datelor privind monitorizarea radioactivității factorilor de mediu.

Obiectivul principal al prezentei lucrări a fost studierea dinamicii radioactivității mediului. În acest scop au fost dezvoltate și urmărite mai multe obiective secundare precum: analiza legăturii dintre radioactivitatea factorilor de mediu și variabilele meteorologice pe diferite intervale de timp; estimarea și predicția concentrațiilor radionuclizilor monitorizați pentru seriile de timp analizate, utilizând modelul regresiei liniare multiple; adaptarea și optimizarea strategiei de monitorizare a radioactivității mediului.

Teza este structurată în două secțiuni. **Prima secțiune**, împărțită în patru capitole, conține o prezentare schematică a informațiilor regăsite în literatura de specialitate cu relevanță pentru tema de studiu aleasă, iar **cea de-a doua secțiune**, împărțită în șapte capitole, conține rezultatele originale.

Capitolul 1 cuprinde noțiuni teoretice privind susele de radiații, precum și căile acestora de pătrundere în mediu. De asemenea este prezentată, în funcție de originea acestora, proveniența, conținutul și valorile medii ale radioactivității naturale datorate radiației cosmice, atmosferice, terestre, apei, sedimentelor și alimentelor, precum și radioactivității artificiale, datorate în principal testelor cu armament nuclear din perioada anilor 1940 - 1960 și a operării în mod curent a centralelor nucleare-electrice.

Capitolul 2 prezintă circuitul izotopilor radioactivi în mediu, surse de poluare și principalele căi de acces ale radionuclizilor aflați în diferite medii către om. De asemenea este prezentat transportul radionuclizilor prin mediu, în funcție de ecosistemele străbătute (terestru, acvatic și atmosfera), precum și de factorii de concentrare și de transfer ai radionuclizilor.

Capitolul 3 prezintă principalele metode tehnice folosite pentru detectarea și măsurarea activității elementelor radioactive, clasificând detectorii în funcție de principiile fizice constructive care stau la baza măsurării radiațiilor. De asemenea, în cadrul acestui capitol este făcută și o trecere în revistă a diferitelor metode utilizate pentru detectarea și măsurarea ^{222}Rn , ^{220}Rn , ^3H , ^{137}Cs și ^{131}I .

Capitolul 4 tratează problematică efectelor expunerii la radiații asupra materiei în general și particularizat asupra omului. Sunt prezentate atât efectele produse de radiații când sursa se afla în exteriorul organismului sau în interiorul acestuia. De asemenea este prezentat metabolismul radionuclizilor de către organismele vii în general și de către om în particular, prin prisma toxicității radionuclizilor.

Capitolul 5 este dedicat studiului privind optimizarea pregătirii probelor de apă în vederea determinării activității volumice a tritiului. În cadrul acestui capitol este prezentată o metodă alternativă la cea clasică, dată în literatura de specialitate (ISO 9698:2010 – “Water quality – Determination of tritium activity concentration- Liquid scintillation counting method” [90]), pentru pregătirea probelor de apă în vederea determinării activității volumice a tritiului. În scopul demonstrării faptului că metoda propusă (metoda nestandardizată) optimizează etapa de pregătire a probei, păstrând același nivel de încredere al rezultatelor obținute, testarea rezultatelor obținute s-a făcut în paralel pentru cele două metode, verificând pentru fiecare în parte criteriile de performanță ale metodei (limita de detecție instrumentală, precizia, exactitatea, rata de recuperare și robustețea).

Prelevarea probelor

În scopul efectuării acestui studiu s-au folosit probe sintetice, obținute din apă bidistilată marcată cu T sub formă de HTO.

Testarea omogenității și stabilității probei marcate s-a efectuat în conformitate cu Anexa B a standardului ISO 13528:2005 [91]. Rezultatele obținute în cadrul testelor de omogenitate și stabilitate s-au încadrat în criteriile impuse prin acest standard atât în cadrul unui recipient, cât și între recipiente.

Materiale și metode – metoda standardizată

Reactivi

- Carbonat de sodiu (Na_2CO_3), anhidru,
- Tiosulfat de sodiu ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$), anhidru
- Apă de referință, cu o activitate volumică a tritiului inferioară valorii de 0,5 Bq/L
- Soluție de scintilație, s-a folosit cocktail-ul scintilator Ultima Gold LLT cu eficiența în determinarea tritiului de aproximativ 30% și un nivel foarte scăzut al fondului.
- Material de referință certificat – sursă etalon deschisă de tritiu
- Apă bidistilată

Aparatură

- Pentru pregătirea probei: balanță analitică; plită cuib, termoreglabilă, cu agitator magnetic; etuvă termoreglabilă; bidistilator;
- Pentru analiza probei: analizor cu scintilație lichidă de fond ultra scăzut;

Pregătirea probelor

Într-un balon cu fund rotund se introduc 250 mg de $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$, 500 mg de Na_2CO_3 și 250 mL de probă. În cazul probelor marcate, acestea au o activitatea teoretică de 2,8070 Bq pentru 250 mL. Se montează instalația și se pornește distilarea, care se conduce lent, prin creșterea temperaturii în trepte mici. Se aruncă prima parte a distilatului, se colectează următorii parte de mijloc, iar ultima parte de distilat și reziduul se aruncă. 10 mL din distilatul obținut s-au pus într-un flacon de numărare, peste care s-au adaugat 10 mL cocktail scintilator.

Materiale și metode – metoda nestandardizată

Reactivi

- Carbonat de sodiu (Na_2CO_3), anhidru,
- Tiosulfat de sodiu ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$), anhidru
- Apă de referință, cu o activitate volumică a tritiului inferioară valorii de 0,5 Bq/L
- Soluție de scintilație, s-a folosit cocktail-ul scintilator Ultima Gold LLT cu eficiența în determinarea tritiului de aproximativ 30% și un nivel foarte scăzut al fondului.
- Material de referință certificat – sursă etalon deschisă de tritiu
- Apă bidistilată

Aparatură

- Pentru pregătirea probei: balanță analitică; rotavapor; etuvă termoreglabilă; bidistilator;
- Pentru analiza probei: analizor cu scintilație lichidă de fond ultra scăzut;

Pregătirea probelor

Într-un balon cu fund rotund s-a introdus 250 mg de $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$, 500 mg de Na_2CO_3 și 250 mL de probă. În cazul probelor marcate, acestea au o activitatea teoretică de 2,8070 Bq pentru 250 mL. Se montează instalația și se începe distilarea, prin pornirea agitării, încălzirii și a pompei de vid a rotavaporului. Se colectează 150 – 200 mL, iar ultima parte de distilat și reziduul se aruncă. 10 mL din distilatul obținut se pun într-un flacon de numărare, peste care se adaugă 10 mL cocktail scintilator.

Rezultate și discuții

Au fost pregătite, măsurate beta spetrometric și analizate 40 de probe, împărțite astfel: 10 probe de apă distilată și 10 probe marcate au fost pregătite și măsurate prin metoda standardizată, respectiv 10 probe de apă distilată și 10 probe marcate au fost pregătite și măsurate prin metoda nestandardizată.

Din analiza datelor obținute pentru setul de probe nemarcate se remarcă următoarele:

- rezultatele obținute prin ambele metode sunt comparabile și foarte aproape de limita de detecție a echipamentului
- în cazul probelor pregătite prin metoda standardizată

- 60% din probele pregătite prin metoda standardizată s-au situat sub limita de detecție a echipamentului
- incertitudinea de măsurare variază între 35,9% și 45,1%.
- valoarea medie a activității specifice a tritiului, obținută pentru valorile a căror activitate s-a situat peste limita de detecție este de 0,555 Bq/L
- în cazul probelor pregătite prin metoda nestandardizată
 - 50% din din probele pregătite prin metoda nestandardizată s-au situat sub limita de detecție a echipamentului
 - incertitudinea de măsurare variază între 35,3% și 44,3%.
 - valoarea medie a activității specifice a tritiului, obținută pentru valorile a căror activitate s-a situat peste limita de detecție este de 0,531 Bq/L

Din analiza datelor obținute pentru setul de probe marcate se remarcă următoarele:

- rezultatele obținute prin ambele metode sunt foarte aproape de limita de detecție a echipamentului
- în cazul probelor pregătite prin metoda standardizată
 - procentual, incertitudinea extinsă de măsurare variază între 3,2% și 3,3%.
 - valoarea medie măsurată a activității volumice a tritiului este de 11,860 Bq/L
- în cazul probelor pregătite prin metoda nestandardizată
 - procentual, incertitudinea extinsă de măsurare variază între 3,3% și 3,6%.
 - valoarea medie măsurată a activității volumice a tritiului este de 11,795 Bq/L

Distribuția valorilor obținute pentru cele două metode, în cazul probelor marcate este prezentată grafic în figura 5.3.

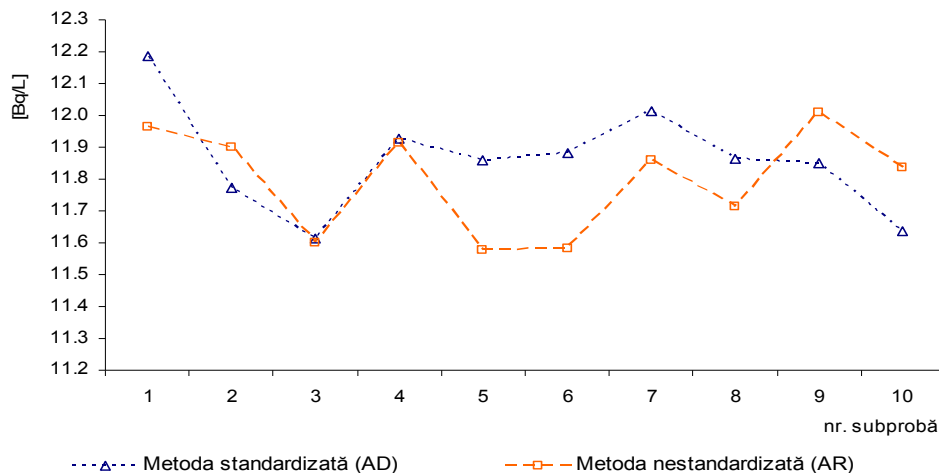


Figura 5.3 – Comparație între distribuția activităților volumice ale tritiului în proba de apă bidistilată marcată obținute prin cele două metode

În scopul verificării și validării rezultatelor obținute prin metoda nestandardizată s-a procedat la evaluarea criteriilor de performanță, conform prevederilor referențialului ISO 9698:2010 – “Water quality – Determination of tritium activity concentration - Liquid scintillation counting method”, ISO CEI 17025:2005, respectiv GUM, atât pentru setul de date obținute prin metoda standardizată, cât și pentru cel obținut prin metoda nestandardizată.

Capitolul 6 cuprinde **studiul dinamicii tritiului din precipitații** prelevate din trei locații din România. În acest sens s-au analizat rezultatele obținute pe parcursul a patru ani (2003 – 2006) pentru probele prelevate din localitatea Slobozia. Valorile concentrațiilor de tritium determinate în precipitații s-au comparat cu valorile din alte două locații (Craiova și Călărași) pentru care s-au calculat și analizat coeficienții de corelație dintre concentrația tritiului și volumul de precipitații medii lunare prelevate pe parcursul a doi ani (2003 - 2004). S-a analizat evoluția temporară (lunară, sezonieră și anuală) a activității tritiului din probele prelevate, precum și influența parametrilor meteorologici asupra concentrațiilor din probe [33], [34], [35].

Materiale și metode

Metoda de pregătire și analiză a probelor folosită respectă prevederile referențialului ISO 9698:2010 [90] și a fost prezentată în cadrul capitolului 5.

Probele prelevate de diferite laboratoare au fost pregătite și analizate beta spectrometric în Laboratorul Național de Referință Radioactivitate din cadrul Agenției Naționale pentru Protecția Mediului.

Rezultate și discuții

În scopul caracterizării evoluției în timp a tritiului, s-au parcurs următoarele etape:

- a fost studiată dinamica tritiului pe parcursul a 4 ani (2003 - 2006) în probele de precipitații prelevate de la Slobozia. Prin intermediul acestui set de date s-au analizat variațiile lunare, sezoniere și anuale.
- a fost studiată influența parametrilor meteorologici asupra concentrațiilor de tritium pe parcursul a de 2 ani (2003 și 2004), în două locații: Călărași și Craiova.
- s-au comparat rezultatele obținute pentru Slobozia, cu cele obținute pentru Călărași și Craiova, pentru perioada 2003-2004.

În vederea descrierii dinamicii în atmosferă și evidențierii tendinței de variație a tritiului în probe de precipitații, au fost analizate probele prelevate din localitatea Slobozia, în perioada 2003 – 2006.

Variația medie lunară multianuală

Probele de precipitații au fost prelevate și analizate individual. Pentru a putea fi evidențiată legătura dintre concentrațiile de tritium și volumul de precipitații prelevat s-au calculat coeficienții de corelație multianuali, aferenți fiecărei luni.

Următoarele criterii au fost utilizate pentru interpretarea coeficientului de corelație Pearson: necorelate (pentru o valoare care este între -0,09 și 0,09), slab corelate (pentru o valoare care este între -0,3 și -0,1 sau între 0,1 și 0,3), mediu corelate (pentru o valoare care este între -0,5 și -0,3 sau între 0,3 și 0,5) și puternic corelate (pentru o valoare care este între -1,0 și -0,5 sau între 0,5 și 1,0) [92].

Practic, dintre cele 12 luni, pentru 7 valoare coeficientului de corelație lunară multianuală s-a situat în clasa de corelație puternică, ceea ce indică faptul că peste 58% din datele analizate confirmă legătura strânsă dintre cei doi parametri analizați.

Din valorile corelațiilor obținute pentru anotimpul cald se poate trage concluzia că alți factor importanți în determinarea concentrațiilor de tritium ar putea fi temperatura aerului și viteza vântului, în special pentru lunile care se caracterizează prin o cantitate redusă de precipitații, cu temperaturi ale aerului ridicate și o viteză a vântului moderată.

Pentru lunile martie și aprilie s-au obținut valori slabe ale corelației, iar pentru luna septembrie valorile sunt necorelate. Acest aspect se poate explica prin faptul că în general

primăvara și toamna sunt marcate de o instabilitate atmosferică pronunțată, caracterizate de căderi de cantități relativ mari de precipitații, intensificarea semnificativă a vitezei vântului, precum și fluctuații de temperatură.

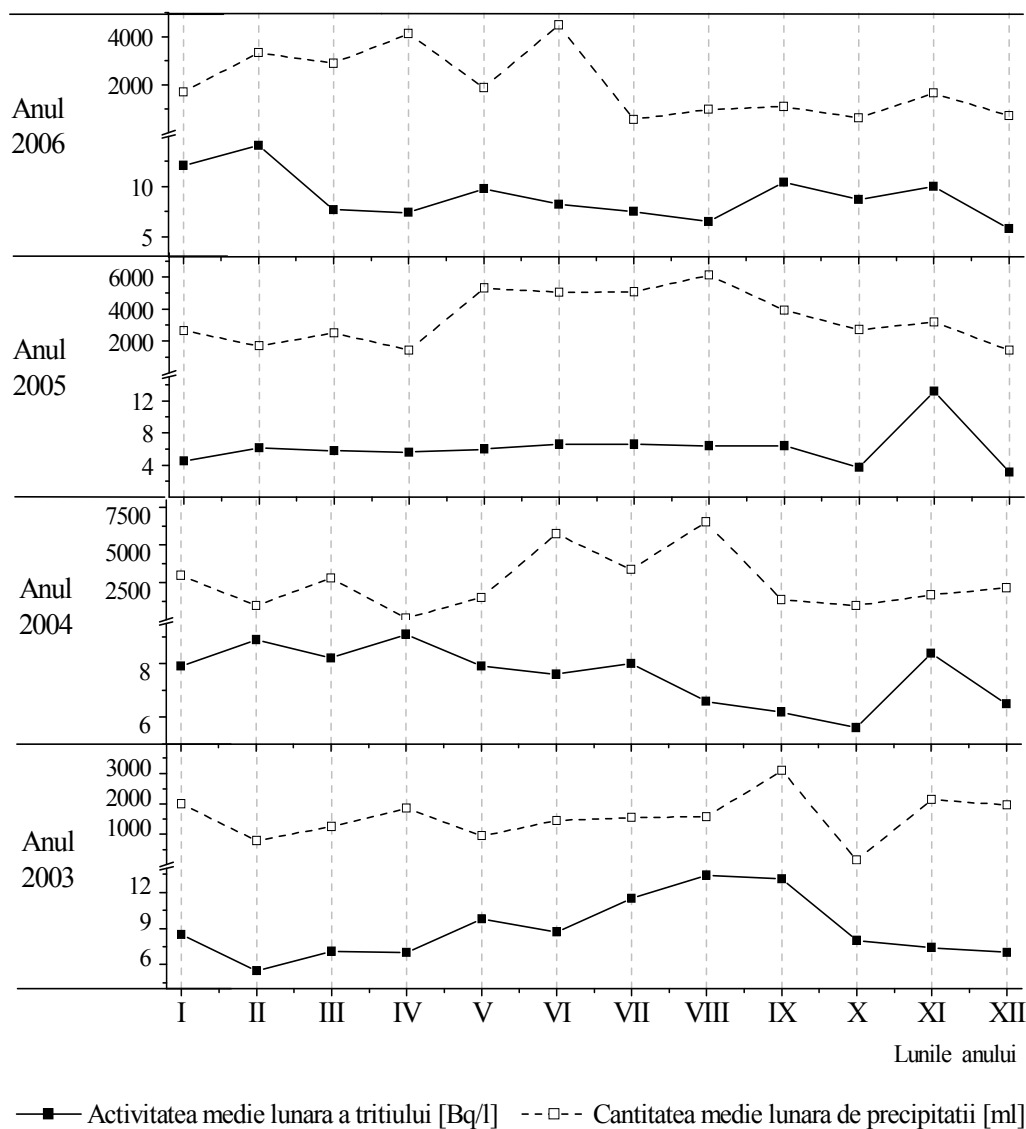


Figura 6.1 - Variația multianuală a concentrațiilor medii lunare ale tritiului din precipitații

Se poate spune că precipitațiile au un rol important, alături de ceilalți parametrii meteorologici ai atmosferei, în determinarea concentrațiilor de tritium.

Variația sezonieră multianuală a tritiului

Pe baza datelor obținute se poate remarca tendința de concentrare a tritiului atmosferic în volume mici de precipitații, survenite după perioade prelungite în care nu s-au înregistrat precipitații. De asemenea, volumul mare de precipitații duce la o scădere a concentrației de tritium din acestea (figura 6.2).

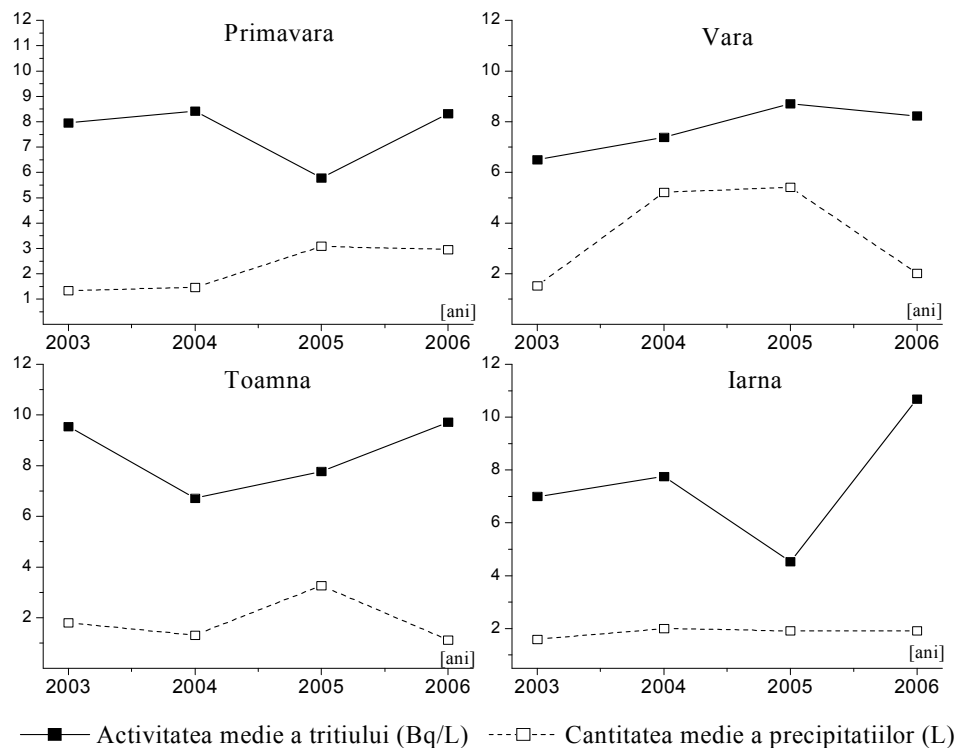


Figura 6.2 – Variația multianuală a concentrațiilor sezoniere ale tritiului din precipitații

Variația anuală a tritiului

Variația tritiului atmosferic, comparativ cu volumul de precipitații prelevate pe parcursul a 4 ani este prezentată în tabelul 6.3.

Distribuția anuală a valorilor reiterează observația demonstrată anterior cu privire la corelația negativă dintre volumul de precipitații și concentrația tritiului în probele măsurate (tabelul 6.3). Acest fapt poate fi explicat și de valorile coeficienților de corelație, care arată dependența concentrațiilor de tritiu medii lunare de cantitatea de precipitații, unde pentru majoritatea lunilor s-a obținut o valoare negativă.

Tabel 6.3 - Variația anuală a concentrației tritiului din precipitații

Anul	Activitatea tritiului (Bq/L)			Volum de precipitații prelevat (L)		
	minima	media	maxima	minima	media	maxima
2003	5,55	8,92	13,38	0,16	1,57	3,10
2004	5,59	7,57	9,11	0,12	2,50	6,53
2005	3,05	6,15	13,16	1,42	3,42	6,13
2006	5,77	9,03	14,13	0,55	2,00	4,49

Influența parametrilor meteorologici asupra concentrațiilor de tritii din precipitații

În scopul analizei influenței parametrilor meteorologici asupra concentrațiilor de tritii, au fost alese două locații, poziționate pe același tip de relief, câmpia: Călărași și Craiova. Diferențele dintre cele două puncte de prelevare alese constau în distanța față de Marea Neagră, a căror curenți pot afecta localitatea Călărași, dar sunt complet estompați la Craiova.

Parametrii meteorologici folosiți în cadrul acestui subcapitol au fost preluați de pe web-site-ul www.freemeteo.com [93].

Din analiza datelor prezentate grafic în figura 6.3 se remarcă faptul că deși datele sunt coerente, apar particularități specifice fiecărei locații, care conduc în final la obținerea unei tendințe a concentrației de tritii, caracteristice fiecărei locații.

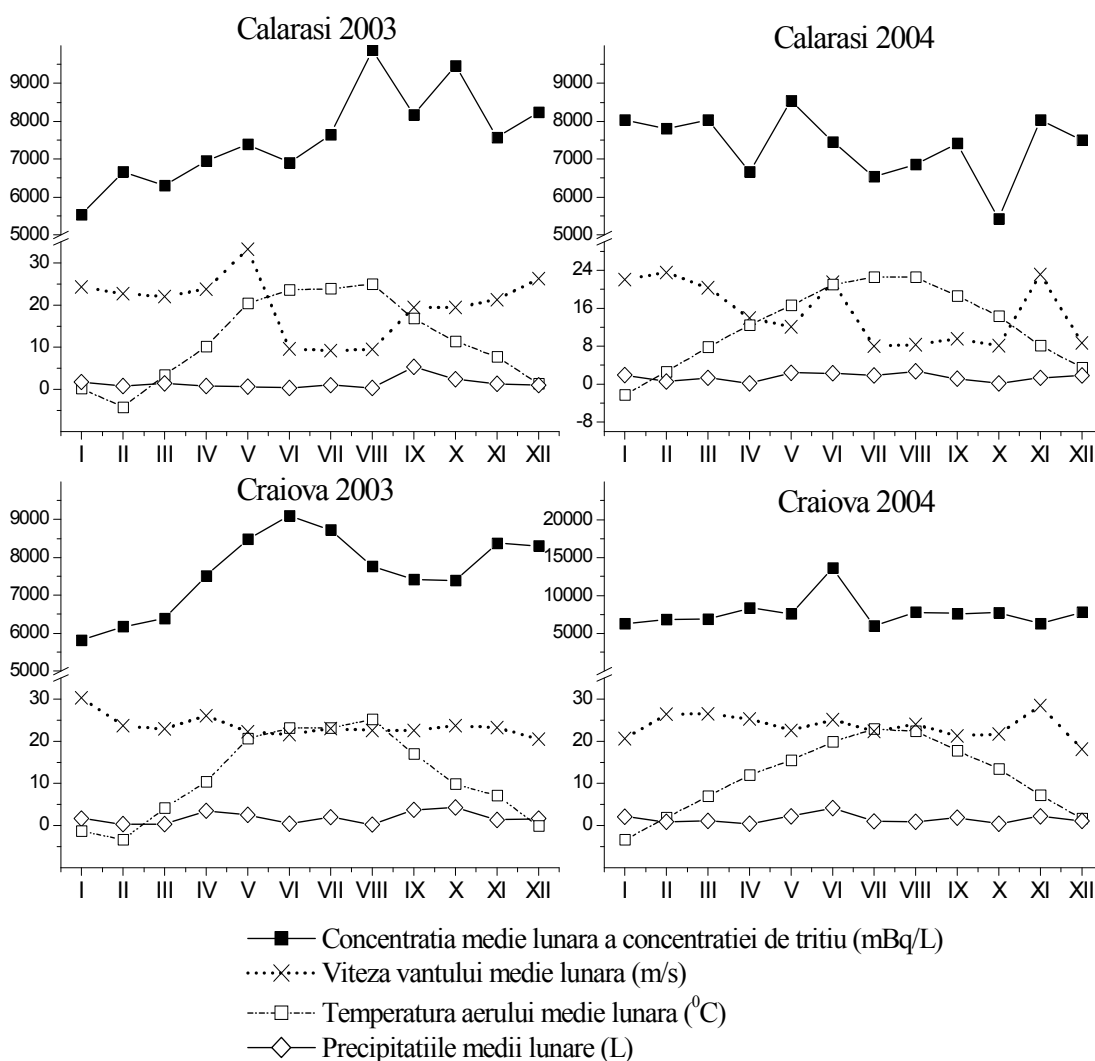


Figura 6.3 - Variația medie anuală a concentrațiilor tritiului din precipitații

S-a calculat și prezentat analiza corelației dintre valorile medii lunare ale parametrilor meteorologici și concentrația medie lunară a tritiului din precipitații, în funcție de locul de prelevare. Valorile obținute indică faptul că valoarea concentrației tritiului atmosferic la un moment dat este în egală măsură influențată de parametrii meteorologici analizați.

Analiza datelor prezentate indică faptul că, locațiile Slobozia și Călărași (aflate la cca. 40 km în linie dreaptă una de alta și la cca. 59 km, respectiv 58 km, în linie dreaptă de Cernavodă [94]) nu au fost influențate de funcționarea centralei nucleare-electrice (CNE) Cernavodă, având valori cuprinse în același domeniu de variație ca și cele obținute la Craiova (aflată la cca. 336 km, în linie dreaptă, de Cernavodă [94]), respectiv sunt situate în domeniul de variație al fondului natural al tritiului din precipitații. Urmare a celor prezentate anterior, se poate concluziona faptul că localitățile Slobozia și Călărași pot fi utilizate ca puncte de control pentru monitorizarea funcționării CNE Cernavodă [95].

Tabel 6.6 – Corelația dintre valorile medii lunare ale parametrilor meteorologici și concentrația medie anuală a tritiului din precipitații

Anul	Loc prelevare	Corelația cu temperatura	Corelația cu viteza vântului	Corelația cu precipitațiile
2003	Călărași	0,475	-0,334	0,126
	Craiova	0,685	-0,645	0,062
2004	Călărași	-0,410	0,589	0,425
	Craiova	0,365	0,071	0,650

Alegerea celor trei puncte de prelevare aflate în aceeași structură de relief, Câmpia Română, a permis analiza dinamicii tritiului din precipitații și totodată a demonstrat faptul că parametrii meteorologici influențează semnificativ variația în timp a concentrației tritiului din precipitații.

Determinarea activității specifice a tritiului din sol este prezentată în **Capitolul 7**. Studiul de caz din acest capitol prezintă analiza interdisciplinară a unor probe de sol prelevate din parcul dendrologic al Institutului Național de Fizică și Inginerie Nucleară “Horia Hulubei” (IFIN-HH), situat la circa 2 km depărtare de institut și la câțiva kilometri de municipiul București.

În scopul investigării au fost selectate trei zone din parc. Alegerea punctelor de prelevare a avut la bază următoarele considerente, care au îmbinat criteriile de prelevare din trei domenii de activitate: istorie, geologie/geofizică și nuclear:

- Punctul de prelevare F1 a fost ales în câmp deschis, la baza treptelor actuale de acces dinspre Castelul Oteteleşanu, și care corespunde unei zone deschise, fără copaci, acoperită de vegetație spontană, crescută la poalele mării ce urcă spre castel. Conform datelor deținute de noi, terenul și-a menținut acest aspect aproximativ 160 de ani.
- Punctul de prelevare F2 a fost ales într-o zonă semi-închisă, situată în perimetrul copacilor seculari crescuți pe malurile lacului interior, care se caracterizează printr-o vegetație săracă la sol și prezența sporadică a copacilor.
- Punctul de prelevare F3 a fost ales într-o zonă de vegetație bogată și densă la sol, situată într-un perimetru arborifer definit prin dezvoltarea simbiotică a speciilor de copaci autohtoni și exotici, situați la proximitatea unuia dintre canalele colectoare a apelor din lacuri.

Cele trei zone sunt caracterizate de un strat de pământ de umplură, cu grosime variabilă, în funcție de adâncimea față de fundul de baltă, strat ce a fost adăugat la momentul asanării oglinzilor de apă.

Materiale și metode

Probele aduse în laborator au fost pregătite în scopul determinării activității specifice a tritiului. Astfel, în prima etapă s-a efectuat determinarea umidității conținute de fiecare subprobă în parte, pentru care s-a folosit câte 2 g. În paralel subprobele au fost supuse operației de extragere a apei conținute în porii solului prin antrenare ca amestec azeotrop toluen – apă [31], [98], [99], [100].

Eșantioane de apă ale aceleiași subprobe au fost amestecate cu cocktail-uri de scintilație în fiolele de măsurare din polipropilenă cu capacitate 20 mL și capac cu inserție din teflon (model Packard) și măsurate beta spectrometric.

Determinările s-au făcut folosind spectrometria beta cu scintilatori lichizi și tehnica intercomparării rezultatelor pe trei spectrometre diferite. În plus, pentru certificarea rezultatelor s-au folosit două tipuri de amestecuri scintilatoare (Insta Gel Plus, în combinație 8:12 (v:v) și Ultima Gold LLT în combinație 10:10 (v:v).

Analizele spectrometrice au fost efectuate în cadrul a două laboratoare astfel: Laboratorul Radiochimie pentru Probe de Mediu (LRPM) din cadrul IFIN-HH, utilizând un Tri-Carb, model 1600 TR și de către Laboratorul Național de Referință Radioactivitate (LNRR) din cadrul Agenției Naționale pentru Protecția Mediului (ANPM), utilizând un Tri-Carb, model 2770 SL/TR și un Quantulus, model 1220.

Rezultate și discuții

Prelevarea probelor a fost limitată până la nivelul pânzei de apă freatică deoarece, datorită tehnicii de forare utilizate probabilitatea de contaminarea a straturilor inferioare cu apă din zonele de deasupra era foarte mare, analiza devenind irelevantă.

Peste 77% din valorile obținute pe echipamentul Tri-Carb 1600 TR prin utilizarea Insta-Gel Plus ca scintilator lichid au fost plasate sub limita de detecție a echipamentului.

Pentru măsurătorile efectuate pe Tri-Carb 2770 TR/SL, prin utilizarea cocktail-ului scintilator Ultima Gold, valorile s-au plasat peste LD, dar incertitudinea standard compusă pentru $k = 1$ [90], [101], [102] a depășit valoarea medie de 20%.

Rezultatele măsurate cu ajutorul echipamentului Quantulus 1220 au fost mult mai bune decât cele efectuate cu celelalte spectrometre, deoarece acestea iau în considerare toate erorile introduse în etapa de măsurare.

Din analiza datelor se remarcă faptul că majoritatea valorilor citirilor efectuate folosind Ultima Gold LLT s-au situat peste limita de detecție a echipamentelor, cu o statistică bună de numărare și că nu este necesară îmbogățirea electrolytică sau măsurarea la nivele foarte joase de radioactivitate, ceea ce certifică încă odată în plus fiabilitatea acestui tip de cocktail pentru măsurarea probelor cu activități mici.

Rezultatele obținute au dus la concluzia că utilizarea Insta Gel plus nu este adecvată pentru determinarea activităților mici din probe.

Variația în adâncime a activității specifice a tritiului în sol, până la nivelul apei freactice, în cele trei puncte de prelevare din parcul dendrologic al IFIN-HH este reprezentată grafic în figura 7.2.

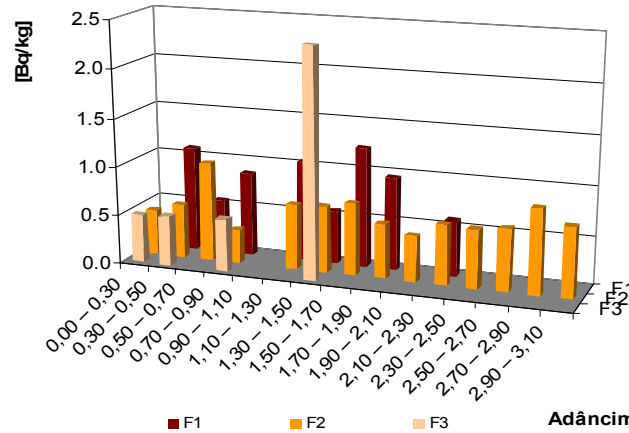


Figura 7.2 - Variația în adâncime a activității specifice a tritiului în sol, în cele trei foraje din parcul dendrologic al IFIN-HH

Reprezentarea grafică a variației activității specifice a tritiului în sol, la diferite adâncimi, este prezentată în figurile 7.3, 7.4 și 7.5 în funcție de umiditatea absolută.

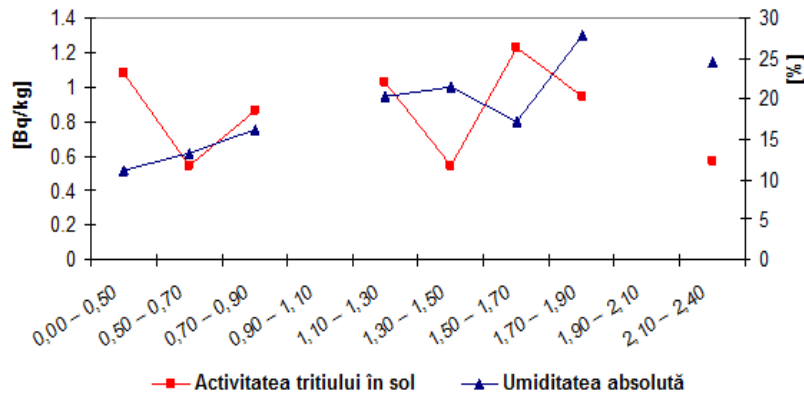


Figura 7.3 – Variația activității specifice a tritiului în sol din forajul F1, la diferite adâncimi, în funcție de umiditate

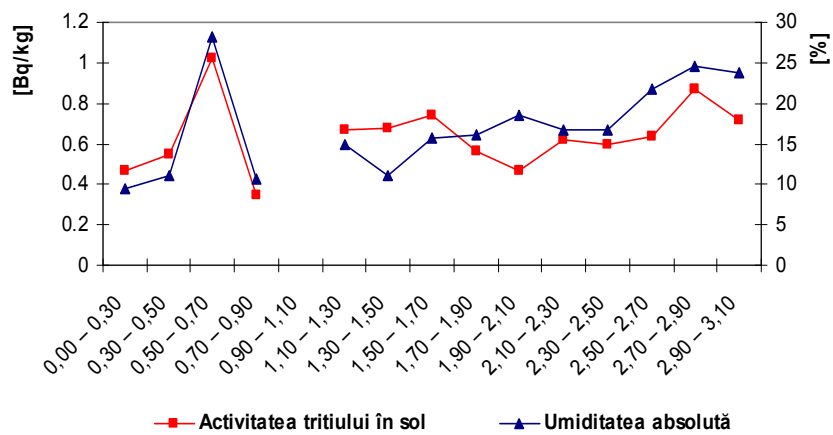


Figura 7.4 – Variația activității specifice a tritiului în sol din forajul F2, la diferite adâncimi, în funcție de umiditate

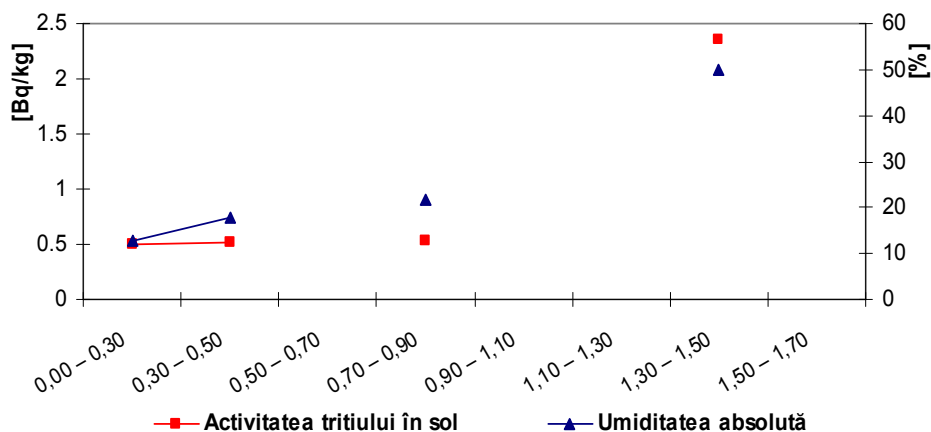


Figura 7.5 – Variația activității specifice a tritiului în sol din forajul F3, la diferite adâncimi, în funcție de umiditate

Prezența valorii de maxim înregistrată pentru forajul F3, aflat în pădure, față de F1, care se află poziționat în imediata apropiere a clădirii care a fost utilizată ca laborator, indică clar faptul că tritiul înregistrat se datorează preponderent activității curente derulate de IFIN-HH.

Analizând valorile activității specifice ale tritiului obținute pentru cele trei foraje se remarcă următoarele aspecte:

- tendințe generale de acumulare a tritiului asemănătoare în profilele forajelor analizate: pe prima porțiune, asociată cu pământul de umplură, există o acumulare de suprafață, după care aceasta scade brusc la apropierea de stratul de argilă; urmează o acumulare maximă pe prima porțiune a stratului de argilă (cu excepția F3), urmată de o primă zonă unde valoarea tritiului scade vizibil; se continuă cu un profil de concentrație variabilă și periodică în argilă și se încheie cu scăderea constantă în stratul de argilă nisipoasă ceea ce marchează ieșirea din zona fundului de baltă și intrarea pe porțiunea aferentă pânzei de apă freatică;
- existența unei diferențe pe înălțime între cele trei foraje ale succesiunii zonelor menționate anterior;
- existența unei diferențe valorice între foraje; F1 este cel mai afectat de prezența tritiului atmosferic și din precipitații, urmează F2 și ultimul valoric, cel mai protejat, este F3;
- o acumulare a tritiului pe adâncimea 150 – 170 cm în toate cele trei foraje, la partea superioară a stratului de argilă; în cazul F3, porțiunea se învecinează cu stratul de nisip argilos și este ultima din profilul de argilă;
- din datele oferite de forajele F1 și F2 se poate vedea că acumularea este fixată pe stratul superior de argilă măloasă, deci uşoara contaminare provine din apele de infiltrație de la suprafață și nu din pânza freatică, așa cum apare la F3;
- profilele urmăresc foarte bine distribuția apei în sol, datorată atât profilului litologic, cât și modului de repartizare a rădăcinilor plantelor și copacilor pe adâncime;
- profilele forajelor, exprimate în Bq/L apă, nu sunt identice cu cele exprimate în Bq/kg sol. Primele exprimă mai bine proprietățile de reținere în timp a apei în porii solului, față de setul al doilea, în care este exprimată doar activitatea conținută într-un kg de sol, la un moment-dat, în funcție de regimul de precipitații la momentul prelevării probelor.

Studiul de caz prezentat în cadrul **Capitolului 8** conține **monitorizarea factorilor de mediu în situații de accident nuclear sau urgență radiologică, particularizat pe accidentul de la Fukushima**. În cadrul acestui capitol este analizată variația concentrației radionuclidului artificial ^{131}I în probe de aerosoli atmosferici și depuneri atmosferice, prelevate de Stațiile de Supraveghere a Radioactivității Mediului, alături de strategia de monitorizare aplicată.

La data de 11 martie 2011, în Japonia, la CNE Dai-ichi din Prefectura Fukushima a avut loc un accident nuclear major, clasificat de nivel 7 pe scara INES (după Nuclear and Industrial Safety Agency (NISA)).

Accidentul, al doilea ca severitate după Cernobîl, cu consecințe civile, a produs dispersarea în atmosferă între $(1,3-1,6) \cdot 10^{17}$ Bq de ^{131}I și $(6,1-15) \cdot 10^{15}$ Bq de ^{137}Cs [106]. Particulele conținând radionuclizi de ^{131}I și ^{137}Cs au ajuns în câteva săptămâni în întreaga emisferă nordică. Numeroase laboratoare de profil din lume s-au mobilizat și au detectat și informat autoritățile și opinia publică referitor la concentrațiile măsurate pe teritoriile statelor lor. Au fost date publicității de către institutele meteo (Meteo France) hărți probabile cu dispersia norului radioactiv.

În România monitorizarea radioactivității mediului este realizată de către Rețeaua Națională de Supraveghere a Radioactivității Mediului (RNSRM) aflată în subordinea Ministerului Mediului și Schimbărilor Climatice. RNSRM a monitorizat continuu dispersia norului de poluant în atmosferă prin intermediul aerosolilor atmosferici și a depunerilor atmosferice.

Studiul de caz tratat în acest capitol prezintă strategia de monitorizare aplicată în scopul detectării și urmăririi norului de poluant, provenit de la accidentul de la CNE Dai-ichi, Fukushima, pe teritoriul României [108], [109] particularizat pentru radionuclidul artificial ^{131}I .

Mod de lucru

Calitatea aerului din punct de vedere al radioactivității pe teritoriul României este urmărită permanent în cadrul RNSRM, în cadrul Programului Standard de Monitorizare (PSM), prin intermediul căruia sunt efectuate determinări ale debitului dozei gama absorbite în aer (cu frecvență orară), ale aerosolilor atmosferici și depuneri atmosferice totale (umede și uscate), analize beta globale, cu rol de verificare, precum și analize gama spectrometrice, cu rol de decelare calitativă și cantitativă a radionuclizilor prezenți în probă.

Metodologia de amplasare, prelevare și analiză este unică în cadrul RNSRM și are ca scop asigurarea uniformității informațiilor furnizate într-un anumit moment de timp.

Punctele de prelevare a aerosolilor atmosferici și depunerilor atmosferice sunt permanente, asigurând trasabilitatea în timp a datelor.

Amplasarea în teren a dispozitivelor de prelevare s-a făcut în baza unei metodologii unice, care prevede următoarele condiții minime și obligatorii:

- Amplasarea dispozitivelor de prelevare în spații deschise, în afara aglomerărilor urbane, ferite de surse de poluare (circulație rutieră, coșuri, furnale etc).
- Distanța minimă dintre dispozitiv și alte obiecte / obstacole (clădiri, garduri, arbori etc.) din teren trebuie să fie de dublul înălțimii obstacolului.
- Nu este permisă prezența vegetației luxuriante în zonă.

Prelevarea probelor de aerosoli atmosferici s-a efectuat pe filtre din fibră de sticlă, cu un coeficient de retenție de 98%, amplasate la 2 m de la sol și legate de pompe de aspirare cu un debit de $5 \text{ m}^3/\text{h}$. Perioada de prelevare a fost de 5 ore, în intervalul orar 02:07 (A1), 08:13 (A2), 14:19 (A3), 20:01 (A4). Laboratoarele cu program de lucru de 24 ore au efectuat toate cele patru prelevări, iar laboratoarele cu program de lucru de 11 ore au efectuat doar primele două prelevări.

Prelevarea probelor de depuneri atmosferice totale s-a efectuat în colectoare de depuneri atmosferice, acoperite în interior cu polipropilenă, cu suprafața de 0,3m². Perioada de prelevare a fost de 24 de ore, iar ora de prelevare a fost 09:00.

Pentru analizele gama spectrometrice s-a folosit rețeaua de spectrometre gama cu detectori de germaniu (HPGe) de înaltă puritate și rezoluție din cadrul RNSRM, marca Canberra, model BE 3820, care acoperă o plajă de la 3 keV la 3MeV, cu eficacitatea nominală de 35%. Rezoluția energetică la 5,9 KeV de 450 eV, la 122 Kev de 750 eV, iar la 1332,5 KeV de 2100 eV. Pentru analiză a fost folosit *soft-ul* Genie 2000. Calibrarea în energie a fost efectuată cu ajutorul *peak-urilor* din spectru, iar pentru calibrarea în eficacitate s-a folosit *soft-ul* ISOCS produs de firma Canberra. Verificarea calibrării în eficacitate s-a făcut cu ajutorul materialelor de referință achiziționate de la AIEA. Au fost efectuate corecții de geometrie, densitate, matrice și însumare.

Rezultate și discuții

În scopul investigării s-au luat în considerație următoarele premise: distanța foarte mare dintre locul accidentului și România (peste 8000 km), evoluția condițiilor meteorologice la nivel global din acea perioadă, direcția și înălțimea curenților de aer și implicit a norului de poluant, predicțiile la nivel mondial prezentate de diferite organizații naționale și internaționale abilitate și nu în ultimul rând rezultatele raportate de țările aflate în calea norului, disponibilitățile tehnice și metodologice existente în cadrul RNSRM.

Monitorizarea orară a debitului dozei gama absorbite în aer prin intermediul stațiilor automate, alături de analizele beta globale imediate ale aerosolilor atmosferici și depunerilor atmosferice totale nu au evidențiat variații decelabile ale fondului natural de radiații.

Dispersia poluantului în mediu a fost suficient de mare pentru a nu putea fi pusă în evidență prin analizele beta globale, fiind necesară o investigare amănunțită, pe intervale de timp cât mai reduse. Drept urmare s-a recurs la analize gama spectrometrice pe intervale scurte de timp, care au variat de la 24h la câteva zile.

La nivelul RNSRM există 37 Stații de Supraveghere a Radioactivității Mediului (SSRM) care asigură prelevarea continuă a probelor, care sunt apoi analizate gama spectrometric de o rețea de 6 spectrometre gama de înaltă rezoluție aflate la București, Craiova, Constanța, Iași, Arad și Baia Mare. În situații normale PSM prevede prelevarea zilnică și cumularea lunară în vederea efectuării analizelor gama spectrometrice.

Având în vedere timpul de înjumătățire relativ scurt al ¹³¹I (8,0233 ± 19 zile [15], precum și activitățile mici vizate, strategia de măsurare a probelor a fost modificată astfel [108]:

- S-a alocat un timp minim de măsurare individuală de 40000s, timp suficient de mare pentru a putea decela activități de ordinul 10⁻³Bq,
- Pentru aerosolii atmosferici probele prioritare au fost cele prelevate de către Stațiile de Supraveghere a Radioactivității Mediului (SSRM) aflate în zona de munte, deoarece, având în vedere distanța față de punctul de emisie, norul de poluant deja antrenat de curenții de aer de mare altitudine, urmate de laboratoarele care efectuau analize gama spectrometrice și abia apoi restul SSRM.
- Pentru depunerile atmosferice, probele prioritare au fost cele din locațiile în care s-au înregistrat depuneri umede (precipitații).

Situarea punctului de prelevare la 1850m a permis analiza nivelului de contaminare a curenților de aer aflați la mare altitudine, care sunt responsabili de transportul și dispersia atmosferică la scară globală a radionuclizilor emiși în atmosferă ca urmare a accidentului de la Fukushima.

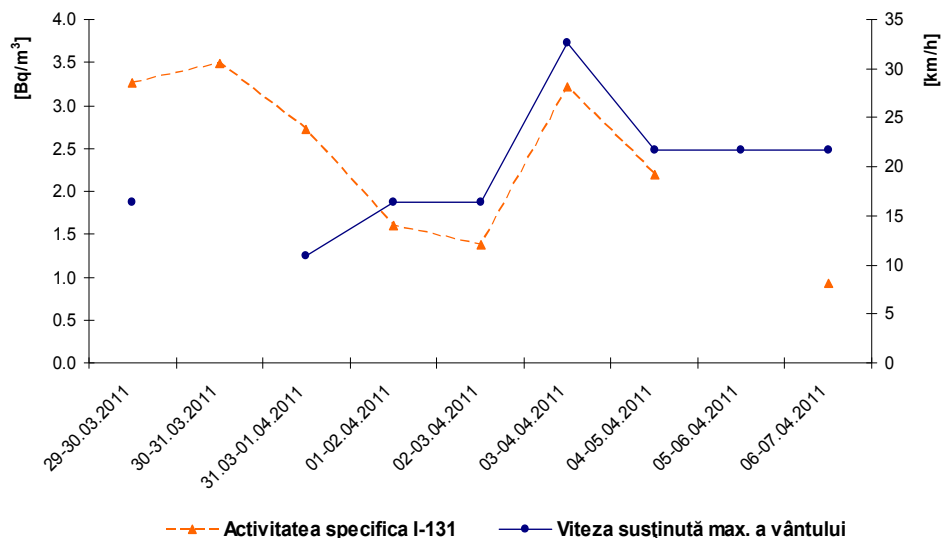


Figura 8.1 – Variația activității ^{131}I în probele de aerosoli atmosferici prelevate de SSRM Toaca, în intervalul 29.03-07.04.2011, comparativ cu viteza maximă a vântului [93]

Valoarea maximă a concentrației ^{131}I din aerosoli atmosferici s-a înregistrat în intervalul 30 – 31.04.2011, pentru o probă cumulată, formată din patru filtre, prelevate de pe Vârful Toaca din Masivul Ceahlău și a fost de $3,494 \pm 0,247 \text{ mBq/m}^3$.

Datele prezentate în figura 8.1 indică, cum era de așteptat, prezența unei corelări între activitatea specifică a ^{131}I prelevat pe aerosolii atmosferici și viteza vântului, pe perioada prelevării. Valoarea obținută ca urmare a corelației Pearson este de $-0,240$, indicând faptul că acestea sunt slab corelate. Motivul fiind apariția în același interval de timp și a altor fenomene meteorologice, în paralel sau intermitent față de viteza circulației curenților de aer, cum este cazul ceții, care indică condiții de staționaritate atmosferică.

Din informațiile prezentate se remarcă faptul că din perioada monitorizată intensiv, punctul de prelevare s-a aflat sub norul contaminat radioactiv doar două săptămâni, în intervalul 29.03.2011 – 07.04.2011. În această perioadă valorile înregistrate s-au situat în domeniul cuprins între $0,925 \pm 0,107 \text{ mBq/m}^3$ (înregistrat în perioada 06 – 07.04.2011) și $3,257 \pm 0,260 \text{ mBq/m}^3$ (înregistrat în perioada 29 – 30.03.2011).

Se remarcă faptul că începutul și sfârșitul intervalului de timp în care s-a pus în evidență prezența ^{131}I în aerosolii atmosferici este clar delimitat de valorile extreme înregistrate. Exceptând maxima intermediară înregistrată în intervalul 03 – 04.04.2011 ($3,210 \pm 0,200 \text{ mBq/m}^3$), tendința predominantă este una descrescătoare.

În tabelul 8.2 sunt prezentate valorile activității specifice a ^{131}I alături de locațiile în care au fost prelevate probele de aerosoli atmosferici contaminate cu ^{131}I în perioada martie - aprilie 2011.

Datorită concentrațiilor foarte mici existente în atmosferă, doar în patru locații s-au pus în evidență concentrații peste limita de detecție a echipamentelor pentru probe cumulate pe un interval de prelevare scurt (24-72h). În restul cazurilor a fost pusă în evidență prezența radionuclidului artificial ^{131}I în probe cumulate lunar.

După cum se poate observa din figura 8.3 valorile activității specifice înregistrate pentru ^{131}I sunt direct corelate cu altitudinea, până la 1850 m, peste această altitudine valorile obținute s-au situat sub limita de detecție (SSRM Babele, 2500 m). O posibilă cauză a acestui fenomen poate fi poziția celor două puncte de prelevare față de direcția curenților de aer.

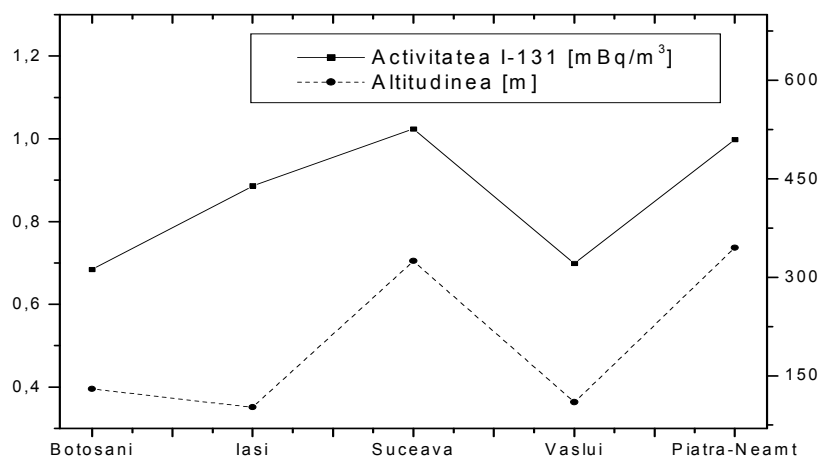


Figura 8.3 – Variația concentrației ¹³¹I funcție de altitudine, în aerosoli atmosferici

Din analiza valorilor situate peste limita de detecție a echipamentelor, se remarcă faptul că acestea se încadrează în domeniul cuprins între $0,225 \pm 0,036$ mBq/m³ (înregistrat în perioada 26-27.03.2011 la Constanța) și $2,300 \pm 0,110$ mBq/m³ (înregistrat în perioada 03-04.04.2011 la Constanța).

Înregistrarea valorilor extreme în aceeași locație este explicată de faptul că direcția curenților de aer în perioada monitorizată, la nivel național a fost dinspre VNV spre ESE. Atât prezența, cât și forma munților Carpați joacă un rol important în devierea curenților de aer de la traseul inițial, justificând astfel motivul pentru care majoritatea zonelor în care a fost pus în evidență ¹³¹I sunt în partea de NE a Moldovei și respectiv în Dobrogea (Constanța).

Considerând alături de locație, perioada de prelevare, se remarcă faptul că distribuția spațio-temporară a probelor de aerosoli atmosferici în care s-a pus în evidență prezența radionuclidului artificial ¹³¹I provenit de la accidental nuclear de la Fukushima, s-a concentrat în luna martie preponderent în partea de NE a țării, în timp ce în luna aprilie se remarcă o ușoară deplasare spre zona centrală.

În plus, numărul de probe cumulate pe un interval scurt, în care s-a pus în evidență ¹³¹I s-a redus la jumătate în luna aprilie, iar numărul probelor cumulate lunar a crescut cu 20% față de luna precedentă, ceea ce indică o scădere a activității iodului dispersat în atmosferă.

În cazul probelor de depuneri atmosferice se observă prezența ¹³¹I doar în depunerile umede (precipitații) care au spălat norul radioactiv în momentul în care era deasupra localităților de unde s-a făcut prelevarea.

Absența radioiodului din unele dintre precipitații se explică prin faptul că cele două momente de timp nu coincid, norul nu s-a aflat deasupra localității în momentul ploilor.

Primele valori ale ¹³¹I au fost înregistrate pe data de 27.03.2013, în multe puncte din țară, dar mai ales situate în jumătatea de est a ei. ¹³¹I a fost detectat în probele de depuneri înaintea celor de aerosoli atmosferici. Aceasta conduce la concluzia că depunerile atmosferice sunt un indicator mai bun decât aerosolii atmosferici.

Valoarea maximă a concentrației de ¹³¹I a fost de $3,572 \pm 0,127$ Bq/m² pe zi (Figura 8.4) și s-a înregistrat la Constanța, în intervalul de prelevare 02-03.04.2011, explicația fiind dată de condițiile meteo din aceasta zonă, care au generat precipitații abundente. Valoarea obținută la Constanța corelată cu lipsa altor valori peste limita de detecție a echipamentelor, în alte zone din

țară, în aceeași perioadă sugerează că norul a ajuns în zona Constanța dinspre mare (Marea Neagră), fiind blocat o perioadă de timp deasupra acestei zone. Aceasta ar putea fi asociată cu un al doilea val de pătrundere a norului radioactiv pe teritoriul țării noastre, care după ce staționează o perioadă de timp deasupra Mării Negre, se dispersează în zilele următoare aproape peste tot teritoriul țării (zilele 07-09.04.2013), când se regăsesc valori semnificative în depunerile atmosferice din mai multe puncte de prelevare. Putem concluziona că teritoriul țării a fost străbătut cel puțin de două ori de norul radioactiv, prima dată în jurul datei de 27.03.2011 și a doua oară începând cu 02-03.04.2011.

Din analiza datelor prezentate se remarcă faptul că majoritatea probelor de depuneri atmosferice individuale pentru care s-a pus în evidență prezența ^{131}I au fost prelevate din sudul și centrul țării.

Comparând perioadele în care a fost identificat ^{131}I în probele de aerosoli atmosferici, cu cele în care a fost evidențiat în probele de depuneri atmosferice se remarcă faptul că acestea se completează reciproc, creând o imagine de ansamblu asupra perioadei în care norul contaminat radioactiv s-a aflat deasupra fiecărei locații.

Ultimele trei probe de depuneri atmosferice în care s-a găsit iod au fost prelevate după perioade intermitente de precipitații, extinse pe mai multe zile, ceea ce confirmă faptul că punctul de prelevare nu s-a aflat în permanență sub norul radioactiv.

În figurile 8.7 și 8.8 este prezentată dependența activității specifice a radionuclidului artificial ^{131}I provenit de la Fukushima, identificat în probe de depuneri atmosferice, de volumul de precipitații prelevat în intervalul de 24h, de perioada prelevării, precum și de altitudinea la care se găsește punctul de prelevare.

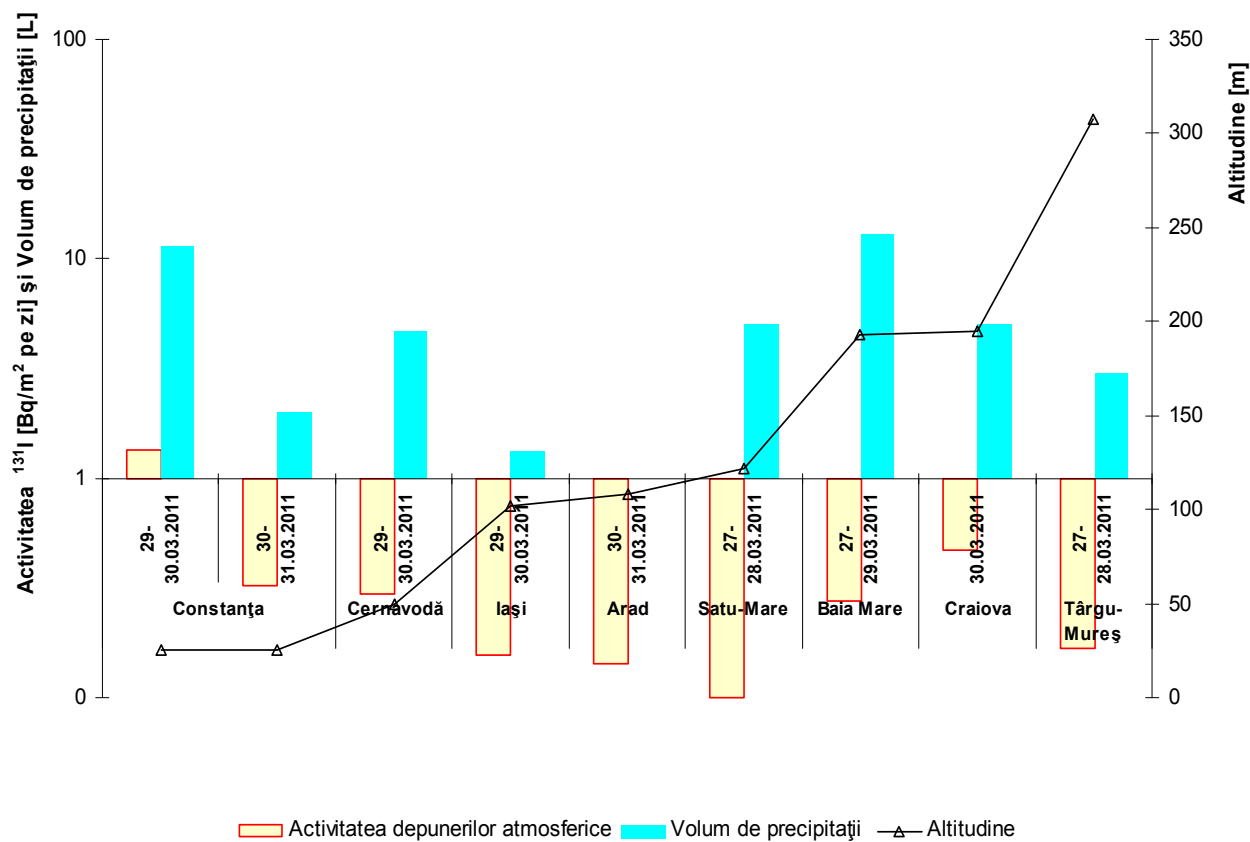


Figura 8.7 - Detectarea ^{131}I în depuneri atmosferice – martie 2011

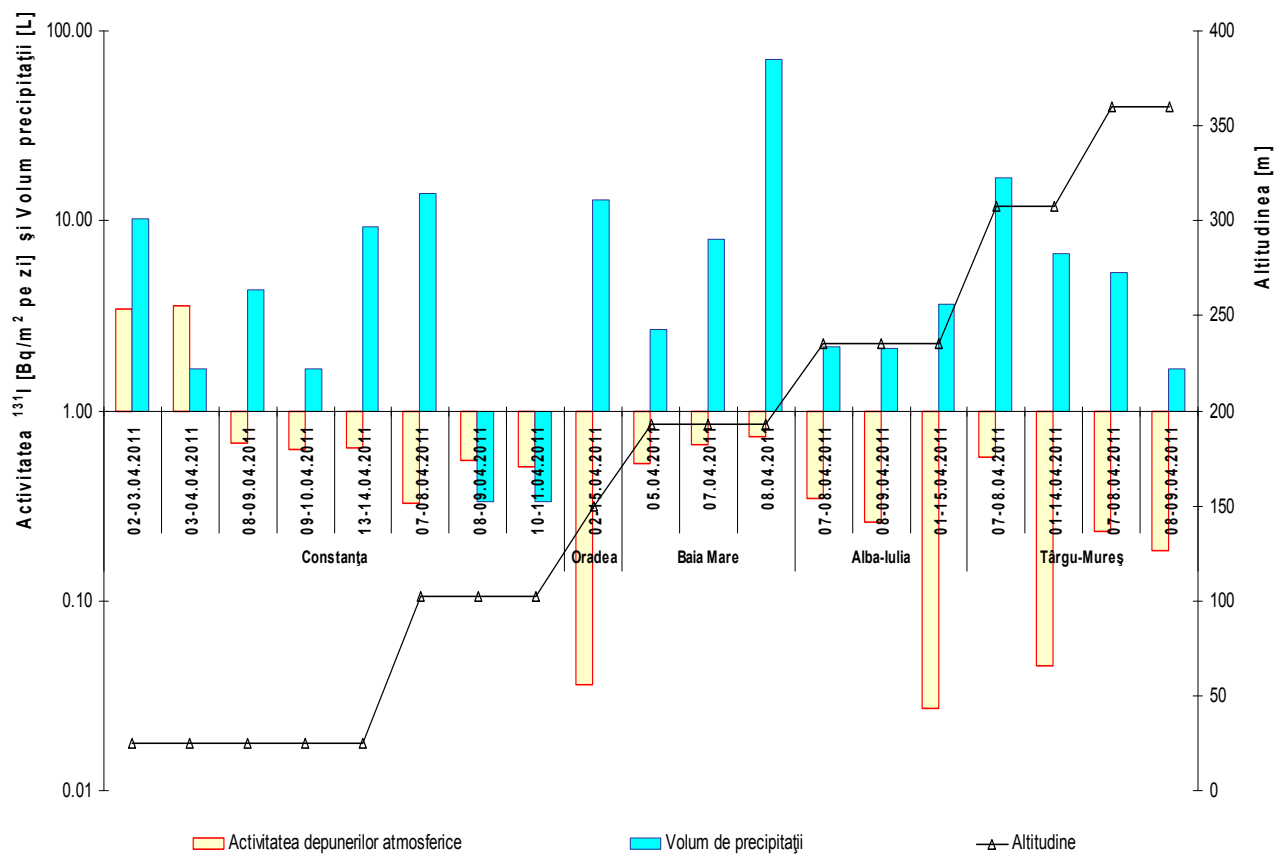


Figura 8.8 - Detectarea ^{131}I în depuneri atmosferice – aprilie 2011

Capitolul 9 este dedicat **studiului corelării radioactivității atmosferei cu variabilele meteorologice**. Este analizată variația medie lunară a probelor de depuneri atmosferice, aerosolilor atmosferici și debitului de doză gama absorbită în aer, prelevate pe parcursul unui an de către Stația de Supraveghere a Radioactivității Mediului Botoșani în funcție de variabilele meteorologice (precipitații atmosferice, presiunea atmosferică, viteza vântului, temperatura aerului și umiditatea relativă a aerului).

Sursele de radiație naturală sunt responsabile de 85% din doza medie de radiații încasată de populație și se datorează în principal: radiației cosmice, radiației terestre și cea datorată radonului [3]. Radonul este un gaz nobil, care este emis permanent de sol, cu viteză de emisie diferită, în funcție de tipul de sol. Cei trei izotopi radioactivi ai radonului ^{222}Rn (timp de înjumătățire de 3,824 zile), ^{220}Rn (timp de înjumătățire de 55,6 e) și ^{219}Rn (timp de înjumătățire de 3,96 s), apar în lanțurile de dezintegrare ale ^{238}U , ^{232}Th și ^{235}U , respectiv, existente în urme în scoarța terestră [9]. Expunerea populației la elementul radioactiv radon este privită acum ca cea mai semnificativă sursă de iradiere umană dintre sursele naturale [3], [18].

Condițiile meteorologice influențează nivelul de radiații care este direct legat de sănătatea oamenilor. Acest capitol prezintă efectele variabilelor meteorologice asupra radioactivității naturale atmosferice, folosind debitul de doză gama absorbită în aer și activitatea beta globală a aerosolilor atmosferici și al depunerilor totale.

Aparatura și metodele de măsurare utilizate

Valorile prezentate sunt valori medii lunare obținute de-a lungul unui an în urma măsurătorilor efectuate asupra probelor de mediu de către Stația de Supraveghere a Radioactivității Mediului (SSRM), din orașul Botoșani, România.

Principiul de măsurare a activității beta globale a aerosolilor atmosferici este bazat pe acumularea aerosolilor pe filtre din fibră de sticlă cu un coeficient ridicat de retenție (96 - 99%). Capul de aspirație este montat la 2 m deasupra solului și este conectat la un prelevator de aerosoli.

Timpul de prelevare a fost de 5 ore, de patru ori pe zi, după cum urmează: 2:00 - 07:00 (aspirația A1), 8:00 - 3:00 (aspirația A2), 14:00 - 19:00 (aspirația A3) și 20:00 - 01:00 (aspirația A4). Filtrele au fost măsurate după 3 minute de la prelevare, timp de 1000s, după 20 de ore, timp de 3000s și după 5 zile, timp de 3000s [118], [119]. Primele două măsurători furnizează informațiile necesare pentru determinarea concentrațiilor de descendenți ai radonului și toronului iar ultima măsurătoare este utilizată pentru identificarea prezenței în atmosferă a radioactivității artificiale. Erorile de determinare ale debitului de doză gama, eficiența filtrului și a sursei etalon au o valoare maximă estimată de 20%.

Probele de depuneri atmosferice totale au fost obținute zilnic prin colectarea depunerilor atmosferice uscate și a precipitațiilor cu ajutorul unui colector standard, situat la 1 m deasupra solului. Colectorul standard a fost acoperit în interior cu un strat de polietilenă.

Pentru determinarea activității beta globale a probelor de depuneri umede și uscate, timpul de prelevare a fost de 24 ore, iar măsurătorile au fost zilnice, pe un timp de 1000s.

Tabel 9.2 - Distribuția lunară a variabilelor meteorologice

Luna	Variabilele meteorologice				
	Precipitații (l)	Umiditatea relativă (%)	Presiunea (hPa)	Temperatura (°C)	Viteza vântului (m/s)
Ianuarie	0.33	92.61	1008.8	-6.89	2.70
Februarie	0.21	93.45	992.6	-6.23	2.52
Martie	0.30	93.42	1004.1	-2.74	2.29
Aprilie	0.65	75.87	1001.0	9.43	3.24
Mai	0.29	71.20	996.5	18.77	4.00
Iunie	0.63	67.33	1001.9	20.26	2.68
Iulie	0.81	79.00	1000.5	19.12	2.52
August	0.64	81.06	1001.3	18.72	2.19
Septembrie	1.24	87.17	995.4	11.82	3.15
Octombrie	0.34	87.90	1003.3	9.46	2.39
Noiembrie	0.57	88.63	999.8	7.27	2.06
Decembrie	0.72	96.29	1002.5	-3.99	1.79

În scopul determinării dependenței radioactivității atmosferice naturale de variabilele meteorologice, a fost folosit coeficientul de corelație Pearson [120]. Coeficientul de corelație Pearson cuantifică gradul de dependență a unei variabile de altă variabilă indicând intensitatea și sensul legăturii dintre cele două variabile prin o relație liniară, cu valoarea cuprinsă între 1 și -1. Semnul coeficientului de corelație indică modul de variație dintre cele două variabile: valorile pozitive indică faptul că atunci când valorile pentru un set cresc, valorile pentru alt set cresc de asemenea; valorile negative indică faptul că atunci când valorile pentru un set cresc, valorile pentru alt set scad; valorile apropiate de zero indică faptul că există o relație aleatorie, neliniară între cele două seturi de variabile.

Următoarele criterii au fost utilizate pentru interpretarea coeficientului de corelație Pearson: necorelate (pentru o valoare care este între -0,09 și 0,09), slab corelate (pentru o valoare care este între -0,3 și -0,1 sau între 0,1 și 0,3), mediu corelate (pentru o valoare care este între -0,5 și -0,3 sau între 0,3 și 0,5) și puternic corelate (pentru o valoare care este între -1,0 și -0,5 sau între 0,5 și 1,0) [92]. Coeficienții de corelație au fost calculați cu ajutorul Microsoft Office Excel, funcția "PEARSON".

Rezultate și discuții

Variația valorilor medii lunare ale variabilelor meteorologice (precipitații atmosferice, presiunea atmosferică, viteza vântului, temperatura aerului și umiditatea relativă a aerului) și depuneri atmosferice, aerosolii atmosferici și debitul de doză gama absorbită în aer sunt prezentate în figura 9.1.

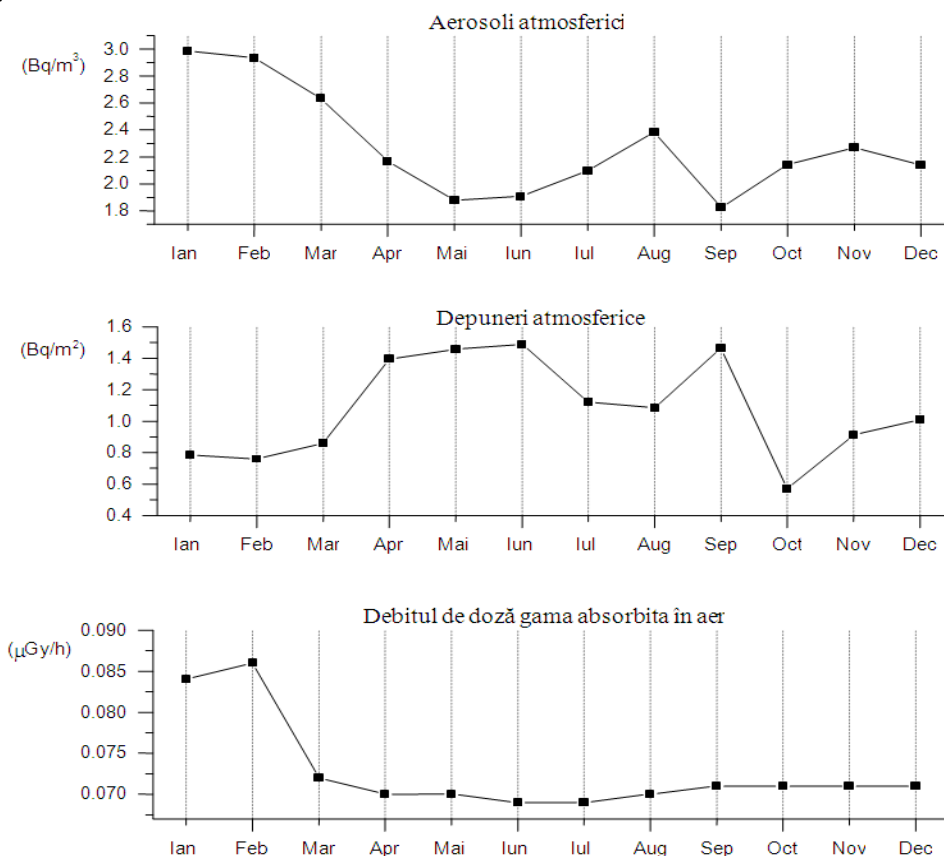


Figura 9.1 - Distribuția lunară a radioactivității aerului

În cazul lunilor de iarnă se poate observa că precipitațiile, temperatura aerului și viteza vântului au valori medii scăzute, în timp ce debitul de doză gama absorbită în aer și activitățile beta globale pentru aerosoli atmosferici au valori maxime, datorită stabilității atmosferei, în consecință concentrațiile activităților beta globale pentru depunerile atmosferice sunt minime, datorită conținutului mai redus de precipitații.

În lunile de vară, când au loc creșteri ale temperaturii, valorile pentru debitul de doză gama absorbite în aer și pentru concentrațiile beta globale ale aerosolilor atmosferici sunt minime datorită curenților de convecție dominanți de aer cald cu valori scăzute pentru viteza vântului.

Valoarea minimă pentru măsurătorile beta globale a aerosolilor atmosferici și valoarea maximă pentru măsurătorile beta globale a depunerilor atmosferice din toamnă, mai ales din luna septembrie, poate fi explicată prin valorile maxime obținute pentru precipitații (având ca rezultat o atmosferă fără praf), o creștere a vitezei vântului (factorul dominant pentru transportul de praf) și valori scăzute ale umidității relative și presiunii atmosferice.

Din analiza de corelație a activităților beta globale medii lunare a aerosolilor atmosferici cu variabilele meteorologice, s-a constatat că acestea sunt bine corelate cu temperatura aerului și viteza vântului, ambele fiind factorul determinant în circulația maselor de aer [92], [122]. Din același tabel se poate observa că umiditatea relativă, presiunea atmosferică și precipitațiile sunt în general slab corelate cu activitatea beta globală a aerosolilor atmosferici.

În ceea ce privește corelarea cu precipitațiile atmosferice, octombrie este singura luna în care a fost înregistrată o corelație medie, acest lucru fiind justificat de volumul mare de precipitații înregistrate, comparativ cu celelalte luni ale anului, și de faptul că a fost luna în care au avut loc cele mai multe zile de precipitații atmosferice consecutive.

Legătura dintre concentrațiile activității beta globale medii lunare ale depunerilor atmosferice totale și variabilele meteorologice este prezentată prin analiza corelațiilor dintre cei doi parametri, evidențiind o bună corelație cu precipitațiile atmosferice și umiditatea relativă, ambele influențând direct viteza de depunere a particulelor de praf din atmosferă pe sol. Depunerile atmosferice sunt slab corelate cu presiunea atmosferică și temperatura aerului și, în general, necorelate cu viteza vântului.

Din analiza de corelație se vede clar influența condițiilor meteorologice asupra radioactivității atmosferice. Variabilele cele mai importante privind evoluția în timp a radioactivității naturale sunt temperatura aerului și umiditatea relativă, cu un impact moderat, viteza vântului și precipitațiile și cu o influență slabă presiunea atmosferică.

Din analiza coeficienților de corelație dintre mediile lunare ale debitului de doză gama absorbită în aer și variabilele meteorologice, a fost găsită o corelație puternică cu temperatura aerului și umiditatea relativă, corelație medie cu precipitațiile atmosferice, din cauza cantității de precipitații atmosferice (spălarea atmosferei), un micro-strat de depunere atmosferică este depus pe suprafața detectoare (implicit conduce la o mică creștere a valorilor măsurate), în timp ce presiunea și viteza vântului sunt slab corelate.

Capitolul 10 prezintă aplicațiile modelului regresiei liniare multiple pentru estimarea și predicția concentrațiilor descendenților ^{222}Rn și ^{220}Rn , folosind valorile concentrațiilor și valorile variabilelor meteorologice de la stația Botoșani. În vederea implementării modelului, au fost studiate coliniaritatea, prin calcularea coeficientului de corelație Pearson și a nivelului de semnificație, precum și multicoliniaritatea, prin calcularea factorului de inflație a varianței.

Pentru realizarea expresiilor analitice ale ecuațiilor de regresie s-au folosit exclusiv variabilele curente. Performanțele modelului pentru predicția concentrațiilor descendenților s-au pus în evidență folosind coeficientul de corelație dintre valorile măsurate și cele generate de modelul de regresie liniară multiplă.

Gaze inerte chimic, radonul (^{222}Rn) și toronul (^{220}Rn) sunt produșii de dezintegrare ale ^{226}Ra și ^{224}Ra , elemente ale seriilor naturale de dezintegrare, al căror cap de serie este ^{238}U , respectiv ^{234}Th și care sunt prezente în toate materialele terestre. Datorită toxicității ridicate, determinarea concentrației lor este o preocupare importantă a specialiștilor din radioprotecție și mediu.

Având în vedere procesul de exhalție din sol, gazele radioactive ^{222}Rn , ^{220}Rn și descendenții (fiicele) lor intră în atmosferă, unde concentrația lor este influențată de dinamica parametrilor meteorologici specifici stratului limită planetar: temperatura aerului (Ta), presiunea atmosferică (Pa), viteza vântului (V), precipitațiile (Pr) și umiditatea relativă (Urel) [123], [124], [125], [126], [127].

Principalul scop al acestui capitol a fost completarea valorilor lipsă din seriile de date privind indicatorii de interes pentru caracterizarea radioactivității mediului. Pentru aceasta s-a aplicat modelul regresiei liniare multiple, pe un set de date istorice, validate.

S-a analizat coliniaritatea și multicoliniaritatea variabilelor independente (predictori) în scopul obținerii de rezultate de încredere prin aplicarea modelului de regresie liniară multiplă. Studiul coliniarității se bazează pe analiza matricei de corelație a variabilelor predictor, iar pentru multicoliniaritate s-au analizat gradul de corelație dintre două sau mai multe variabile predictor.

În scopul efectuării de estimări și predicții ale concentrațiilor descendenților ^{222}Rn și ^{220}Rn , a fost utilizat modelul regresiei liniare multiple fiind folosite ca variabile independente parametrii meteorologici [128], [129]: temperatura aerului, umiditatea relativă, presiunea atmosferică, precipitații și viteza vântului.

Performanțele modelului de regresie pentru estimarea valorilor seriilor de timp sunt cuantificate prin următoarele statistici de regresie: coeficientul de corelație Pearson (R), coeficientul de determinare a regresiei (R^2), nivelul de semnificație (p), raportul F, suma de pătrate specifică regresiei (SSR). În cazul predicției, performanța modelului a fost cuantificată prin intermediul coeficientului de corelație R, valoarea p și SSR [130]; [131].

Datele prelucrate referitoare la concentrațiile de descendenți ai radonului și toronului au fost măsurate în anul 1996 în cadrul programului de monitorizare a radioactivității mediului al Stației de Supraveghere a Radioactivității (SSRM) Botoșani, România.

Datele meteorologice au fost măsurate în același domeniu. Alegerea acestui an este justificată de existența unor serii de date complete atât pentru concentrațiile descendenților radonului și toronului, cât și pentru date meteorologice corespunzătoare.

Metoda de măsurare

Metoda de măsurare a activității concentrațiilor de descendenți ai radonului și ai toronului se bazează pe măsurări succesive beta globale efectuate asupra aerosolilor atmosferici reținuți pe filtre din fibră de sticlă, cu eficiență ridicată de filtrare (96-99%). Pentru prelevare a fost folosită o pompă de aerosoli de volum mare, cu capul de aspirare situat la 2 metri deasupra solului. Prelevarea și măsurarea aerosolilor au fost efectuate conform celor descrise la capitolul 9, subcapitol 1.

Concentrațiile de descendenți ai radonului și toronului utilizate pentru acest studiu sunt valori medii zilnice, obținute de la 4 aspirații. Seria de timp de date zilnice a fost folosită pentru a dezvolta modelul de regresie liniară multiplă în scopul estimării și predicției acestor concentrații.

Rezultate și discuții

În figura 10.1 este prezentată variația medie lunară a paramerilor meteorologici (volumul de precipitații, presiunea atmosferică, viteza vântului, umiditatea relativă, temperatura aerului) și concentrațiile descendenților ^{222}Rn și ^{220}Rn .

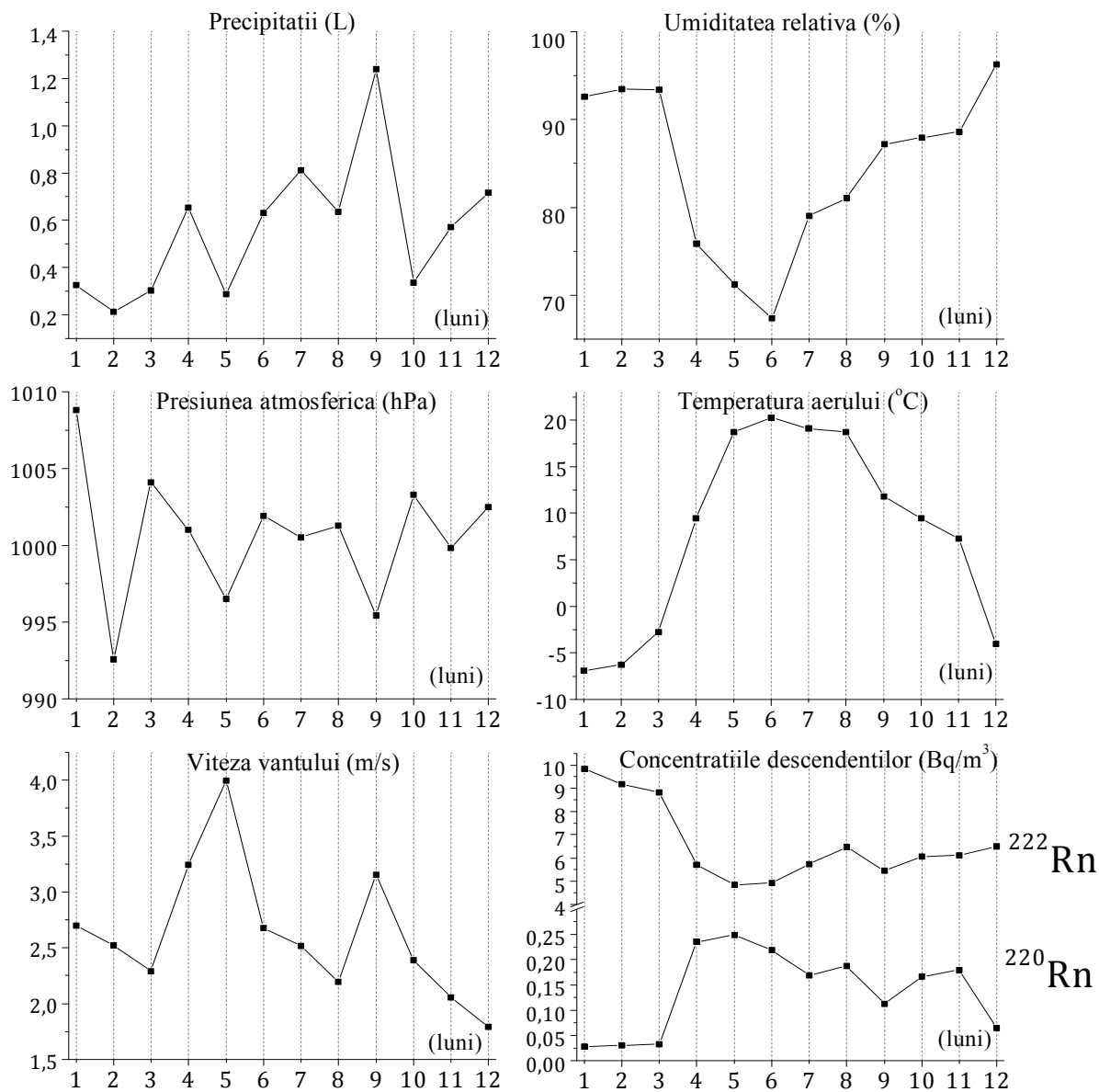


Figura 10.1 – Variația valorilor medii lunare ale concentrațiilor de descendenți ai ^{222}Rn , ^{220}Rn și variabile meteorologice

După cum se poate observa din figura 10.1, atât descendenții ^{222}Rn , cât și cei ai ^{220}Rn depind de parametrii meteorologici. În cazul concentrațiilor maxime ale descendenților ^{222}Rn au fost înregistrate în timpul iernii - luna ianuarie, cauza o constituie cantitățile pronunțate de precipitații, sub formă de ninsoare, căzute în acea perioadă. Concentrația mai mică a ^{220}Rn este datorată timpului scurt de înjumătățire, care survine înainte ca acesta să strabată stratul de zăpadă. De asemenea, atunci când au fost cantități mari de precipitații în luna septembrie, s-a observat o scădere a concentrației de descendenți ai ^{222}Rn și ^{220}Rn , datorită în special creșterii cantității de apă din porii solului, de unde cele două gaze nobile sunt emanate în atmosferă [118], [128], [129], [132].

Temperatura aerului este parametrul cu cea mai mare influență asupra concentrațiilor de descendenți ai celor două gaze radioactive.

În cazul descendenților toronului, din cauza timpului mic de înjumătățire (56s), nu au existat modificări semnificative ale concentrațiilor în timpul iernii, restul de concentrații fiind similare cu cea de radon.

Modelul regresiei liniare multiple

În scopul de a găsi relația liniară dintre o variabilă dependentă și mai multe variabile independente (sau predictor), utilizând modelul de regresie liniară multiplă au fost studiate performanțele de estimări și predicții ale concentrațiilor de descendenți ai radonului și toronului, luând în considerare datele meteorologice [133], [134].

Modelul de regresie liniară multiplă poate fi utilizat pentru estimări și predicții cu semnificație statistică, numai în cazul în care variabilele independente nu sunt într-o relație de colinearitate (coeficienți de corelație de 0,99 sau mai mare) sau multicolaritate (factorul de inflație a varianței - VIF trebuie să fie <10) [133], [135], [136].

Modelul de regresie liniară multiplă presupune o relație liniară între concentrația descendenților ca variabilă dependentă și datele meteorologice ca variabile predictor [128], [133]:

$$y(t) = \beta_0 + \beta_1 x_1(t) + \beta_2 x_2(t) + \dots + \beta_n x_n(t) + \varepsilon_c \quad (10.1)$$

unde:

- | | |
|---------------------------------|---|
| $y(t)$ | – valoarea variabilei dependente |
| $x_1(t), x_2(t), \dots, x_n(t)$ | – variabile curente, adică valoarea variabilei dependente la un moment t este dată de valorile variabilelor independente la același moment (timpul corespunzător valorii din seria de timp) |
| β_0 | – constanta regresiei |
| β_n | – coeficientul predictorului $x_n(t)$ |
| ε_c | – termenul de eroare |

Estimarea și predicția de descendenți ai ^{222}Rn și ^{220}Rn

Estimarea concentrațiilor descendenților ai ^{222}Rn și ^{220}Rn se face utilizând expresia analitică de regresie liniară multiplă cu variabilele meteorologice corespunzătoare din perioada de timp în care este definită ecuația de regresie.

Modelul de regresie liniară multiplă presupune o relație liniară între concentrația descendenților ca variabilă dependentă și datele meteorologice ca variabile predictor.

Din figura 10.2, conținând luni reprezentative pentru fiecare anotimp, se poate vedea clar, că valorile de estimare generate de modelul de regresie multiplă, sunt foarte apropiate de valorile măsurate. Acest lucru înseamnă că variabilele predictor luate în considerare ar putea descrie bine dinamica concentrațiilor de descendenți ai radonului și toronului în lunile respective.

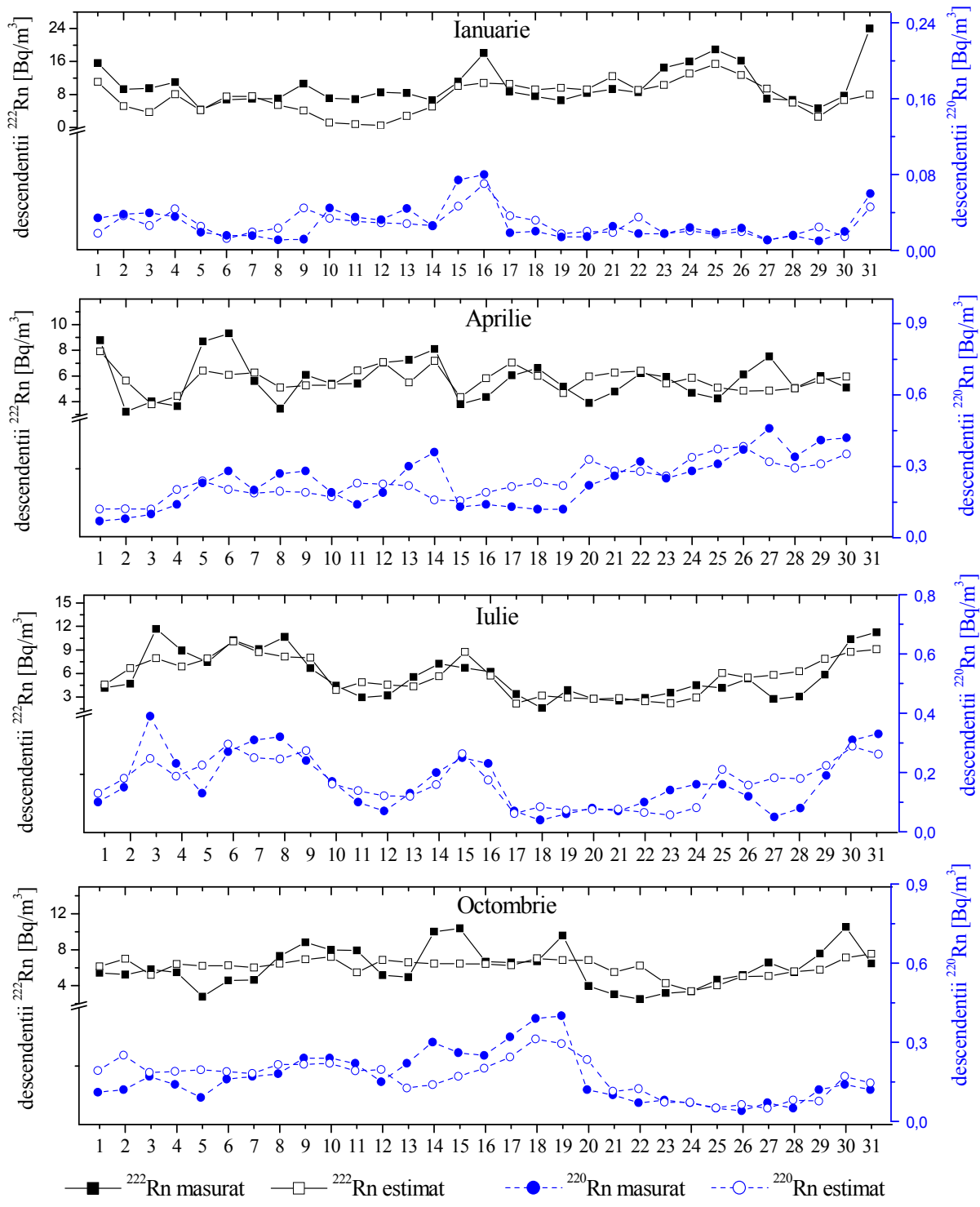


Figura 10.2 – Estimarea concentrațiilor de descendenți ai ^{222}Rn și ^{220}Rn

Prin utilizarea software-ului dedicat [137], [138] și Excel, coeficienții de regresie sunt determinați prin metoda celor mai mici pătrate. În tabelul 10.3 sunt prezentate statisticile ecuației de regresie pentru estimarea concentrațiilor de descendenți ai ^{222}Rn și ^{220}Rn pentru o lună reprezentativă din fiecare sezon.

Tabel 10.3 - Statistici utilizate pentru estimarea descendenților de ^{222}Rn and ^{220}Rn

Luna	Statisticile ecuației pentru descendenții ^{222}Rn					Statisticile ecuației pentru descendenții ^{220}Rn				
	R-multiplu	R ²	p	F	SSR	R-multiplu	R ²	p	F	SSR
Ian '96	0,730	0,534	1,2e ⁻³	5,730	298,63	0,731	0,534	1,1e ⁻³	5,753	0,004
Apr '96	0,559	0,313	8,9e ⁻²	2,188	54,139	0,690	0,476	5,6e ⁻³	4,375	0,175
Iul '96	0,809	0,655	3,6e ⁻⁵	9,495	89,407	0,781	0,611	1,4e ⁻⁴	7,867	0,107
Oct '96	0,434	0,188	3,6e ⁻¹	1,162	121,93	0,772	0,521	1,5e ⁻³	5,453	0,134

Se poate observa că coeficienții de corelare cei mai mari au fost obținuți în iulie, cu valoarea lui R de 0,809 cu un nivel foarte ridicat de semnificație ($p < 0,01$), atât pentru concentrațiile de descendenți ai radonului cât și ai toronului. Acest lucru dovedește că variabilele predictor descriu destul de bine variabilitatea descendenților radonului și toronului în această lună.

Statisticile regresie din tabelul 10.3 arată că pentru estimarea concentrațiilor de descendenți ai radonului și toronului, cele mai mari valori ale R multiplu cu nivel ridicat de importanță, au fost obținute în luna iulie ca urmare a faptului că radonul, având durata de viață comparabilă cu timpul de ventilare a întregului strat limită planetar, este foarte sensibil la temperatura aerului care induce transportul pe verticală a maselor de aer. Predicția este obținută utilizând expresia analitică de regresie pentru o perioadă de timp anterioară, cu variabilele predictor din intervalul de timp la care se face predicția [128], [138].

Predicțiile concentrațiilor descendenței $[y]_{N+1}$ pe intervalul de timp $N+1$, au fost efectuate utilizând următoarea expresi analitică [128]:

$$[Y]_{N+1} = \beta_0 + \beta_1 [x_1]_{N+1} + \beta_2 [x_2]_{N+1} + \dots + \beta_n [x_n]_{N+1} \quad (10.2)$$

$[x_1]_{N+1}, [x_2]_{N+1}, \dots, [x_n]_{N+1}$ sunt valorile variabilelor independente în intervalul de timp $N+1$.

În figura 10.3 sunt reprezentate rezultatele predicției concentrațiilor de descendenți ai radonului și toronului utilizând modelul regresiei liniare multiple. În comparație cu valorile măsurate se poate vedea clar faptul că din cauza schimbării condițiilor meteorologice din perioada de predicție, având în vedere faptul că constantele ecuației sunt calculate luând în considerare datele meteorologice din luna precedentă, rezultatele sunt mai bune pentru prima parte a lunilor reprezentative ale anotimpurilor, ceea ce înseamnă că modelul considerat de estimare și predicție poate descrie bine dinamica concentrațiilor de descendenți ai radonului și toronului în lunile respective.

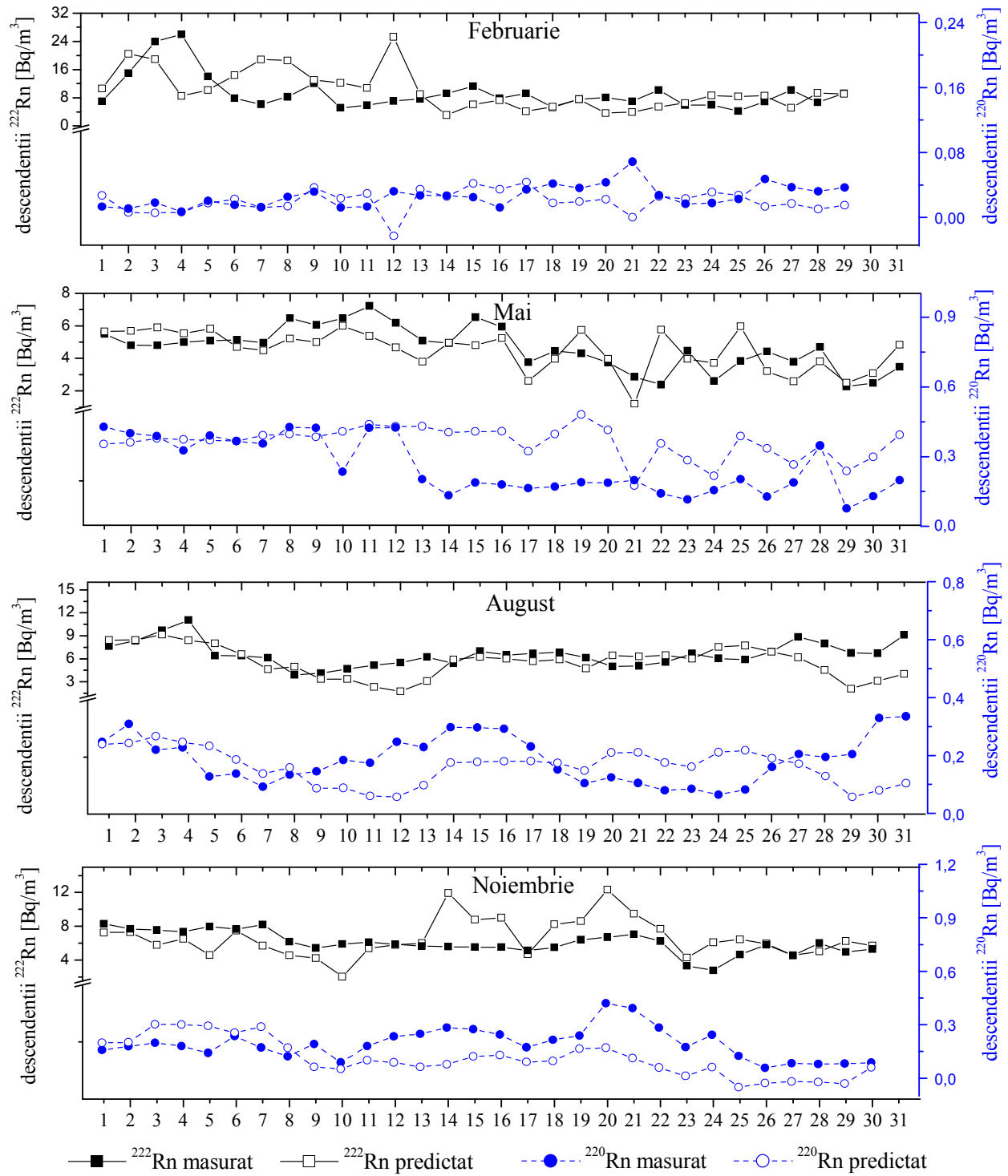


Figura 10.3 – Predicția concentrațiilor de descendenți ai ^{222}Rn și ^{220}Rn

În cadrul **Capitolului 11** a fost studiată **migrarea ^{137}Cs din sol în mușchi**, sol în diferite zone din România, precum și calcularea factorului de transfer al acestui radionuclid din sol în mușchi. S-a analizat distribuția spațială și temporală a probelor, corelată cu cantitatea medie lunară de precipitații înregistrată în perioada de prelevare și activitatea specifică obținută ca urmare a analizelor gama spectrometrice. De asemenea a fost studiată dependența factorului de transfer al ^{137}Cs din sol în mușchi de altitudine și de mediul pe care se dezvoltă mușchii.

Principalele surse antropice de poluare a mediului cu radionuclizi artificiali sunt depunerile atmosferice contaminate ca urmare a testării în atmosferă a armelor nucleare și accidente de la centralele nucleare. Acestea au introdus printre altele în mediu și ^{137}Cs , pentru care căile de distribuție și de transport au fost inegale, situație întâlnită de altfel și în cazul altor radionuclizi.

Studiul din cadrul prezentului capitol a avut ca obiectiv principal analiza concentrației radionuclidului ^{137}Cs din mușchi și sol în diferite zone din România, precum și calcularea factorului de transfer al ^{137}Cs din sol în mușchi.

Analiza sistematică a factorului de transfer al radionuclizilor din sol în plante este deosebit de importantă în cadrul evaluării dozei cu diverse modele matematice.

Materiale și metode

Prelevarea probelor de sol și vegetație s-a făcut în perioada august-septembrie 2009. Alegerea perioadei de prelevare a probelor este importantă, deoarece nivelul activității radionuclidului depinde de diverși factori, inclusiv condițiile meteorologice [142]. Probele de mușchi și solul de sub mușchi au fost prelevate din zone neexpuse poluării industriale și traficului rutier, cât mai depărtate de aglomerările urbane.

Pentru măsurare s-a folosit un spectrometru gama cu detector de germaniu hiperpur (HPGe), de înaltă puritate și rezoluție, marca Canberra, model BE 3820, tip n, planar, care acoperă o plajă de la 3 keV la 3MeV, cu eficacitatea nominală de 35%. Rezoluția energetică la 5,9 KeV de 450 eV, la 122 KeV de 750 eV, iar la 1332,5 KeV de 2100 eV.

Pentru analiza și interpretarea datelor s-a folosit *soft*-ul Genie 2000. Calibrarea în energie a fost efectuată cu ajutorul *peak*-urilor din spectru, iar pentru calibrarea în eficacitate s-a folosit *soft*-ul ISOCS produs de firma Canberra. Verificarea calibrării în eficacitate s-a făcut cu ajutorul materialelor de referință achiziționate de la AIEA. Au fost efectuate corecții de geometrie, densitate, matrice și însumare.

Rezultate și discuții

Pentru efectuarea studiului propus, au fost alese 13 locații de prelevare. Considerând specificul locului de prelevare, acestea se împart în trei medii suport: pădure, pietre/stânci și respectiv copaci.

În scopul calculului factorului de transfer (FT) al ^{137}Cs din sol în mușchi, raportarea rezultatelor pentru ambele tipuri de probe s-a făcut la masă uscată (m.u.).

În probele analizate nivelul de concentrare a ^{137}Cs în mușchi variază de la $8,019 \pm 1,212$ Bq/kg m.u., până la $259,823 \pm 32,146$ Bq/kg m.u., respectiv între $20,985 \pm 2,811$ Bq/kg m.u. și $899,437 \pm 110,387$ Bq/kg m.u. pentru probele de sol de sub mușchi. Rezultatele sunt însoțite de incertitudinea extinsă, exprimată pentru un factor de acoperire $k=2$, aferent unui nivel de încredere de 95% [101], [102].

Din analiza rezultatelor prezentate se remarcă faptul că tendința de creștere a activității ^{137}Cs , în probe este direct influențată de locația în care se găsește punctul de prelevare față de contaminarea originală.

Urmare a monitorizării radioactivității solului necultivat, ca urmare a depunerilor atmosferice, concentrația ^{137}Cs a scăzut semnificativ în cei 23 de ani de la producerea contaminării datorate accidentului de la CNE Cernobîl, din anul 1986.

Scăderea concentrației ^{137}Cs este prezentată grafic în figura 11.3, pe baza datelor obținute de către Rețeaua Națională de Supraveghere a Radioactivității Mediului (RNSRM) în perioada 1985 – 1993 [37], respectiv 2006 – 2010 [144].

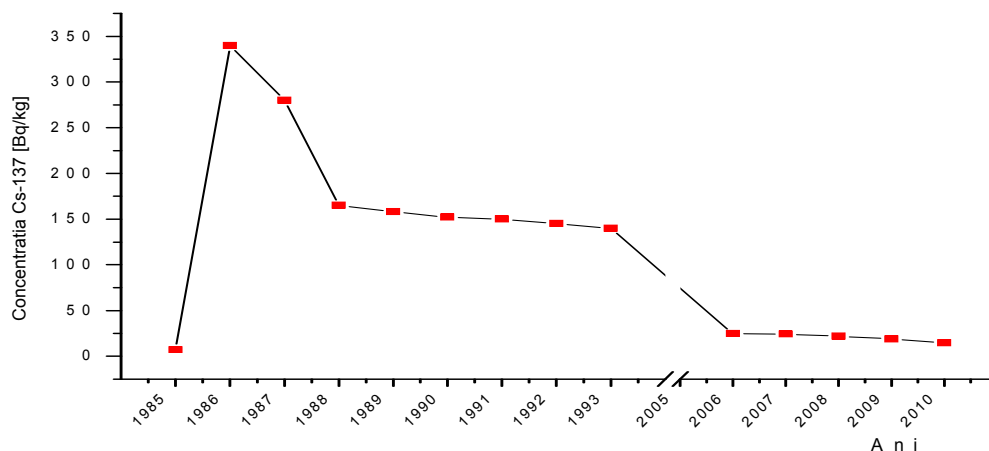


Figura 11.3 - Concentrația ^{137}Cs în probe de sol necultivat, valori medii anuale obținute de RNSRM în perioada 1985 – 1993 [37], respectiv 2006 – 2010 [144], [145]

În figura 11.3 este prezentat rezultatul monitorizării pe termen lung al nivelului ^{137}Cs din probe de sol necultivat. Graficul prezintă o tendință pronunțat descrescătoare înregistrată pentru acest radionuclid, ceea ce atestă faptul că singura sursă majoră de contaminare a mediului cu ^{137}Cs a fost accidentul de la Cernobîl.

Deși corelația dintre mușchi și solul de sub mușchi se menține foarte bună ca și în cazul anterior, corelațiile care iau în considerare altitudinea punctului de prelevare indică o corelație medie. Prezența semnului minus, prezent în ambele cazuri în care este corelată proba cu altitudinea punctului de prelevare, indică faptul că pe măsură ce altitudinea crește, scade concentrația ^{137}Cs din probe, fapt ce se remarcă și din figura 11.5.

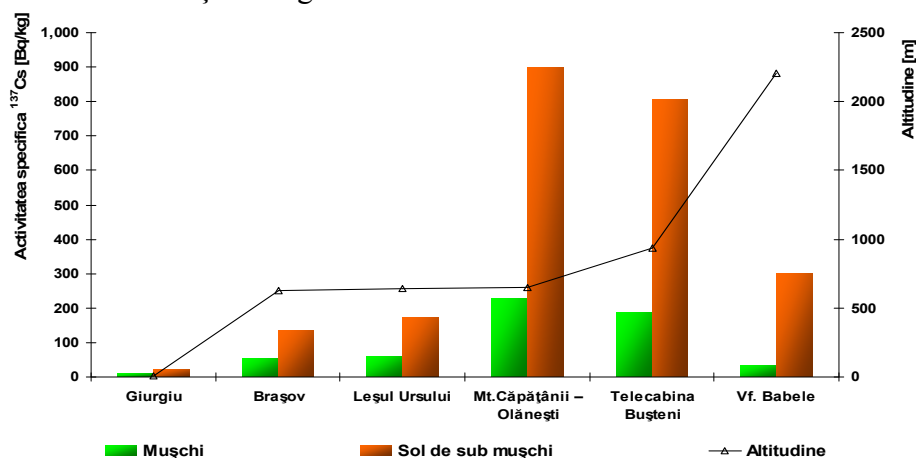


Figura 11.4 – Variația concentrației ^{137}Cs acumulat în mușchi și solul de sub mușchi prelevat de pe pietre/stânci

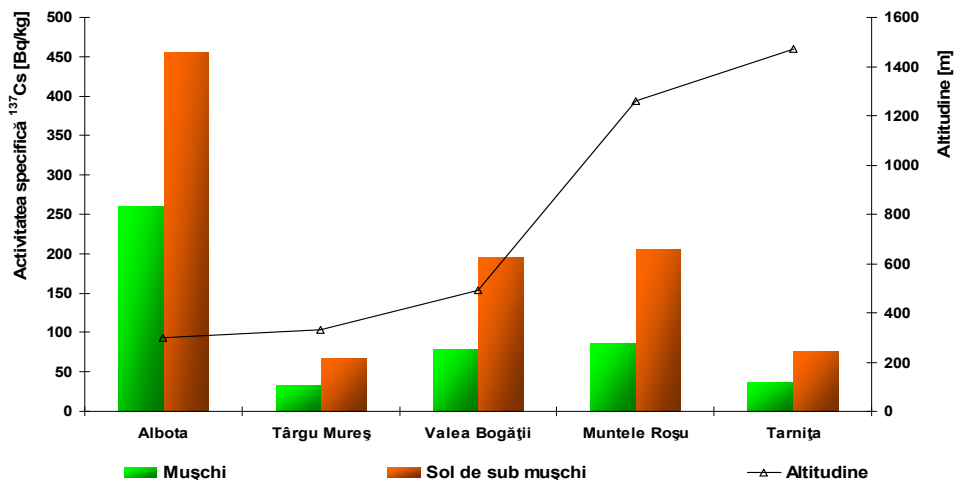


Figura 11.5 – Variația concentrației ^{137}Cs acumulat în mușchi și solul de sub mușchi prelevat din zone de pădure

În scopul evaluării transferului radionuclidului artificial ^{137}Cs din sol la mușchi, s-a calculat factorul de transfer (FT), pe baza activității specifice a ^{137}Cs în probele de sol și mușchi prelevate din același loc. Factorul de transfer al ^{137}Cs din sol în mușchi a fost calculat folosind relația [146], [147], [148]:

$$FT = \frac{\text{activitatea radionuclidului pe unitatea de masa a vegetatiei uscate (Bq/kg)}}{\text{activitatea radionuclidului pe unitatea de masa a solului uscat (Bq/kg)}} \quad (11.1)$$

Rezultatele obținute pentru fiecare locație analizată sunt prezentate în figura 11.6.

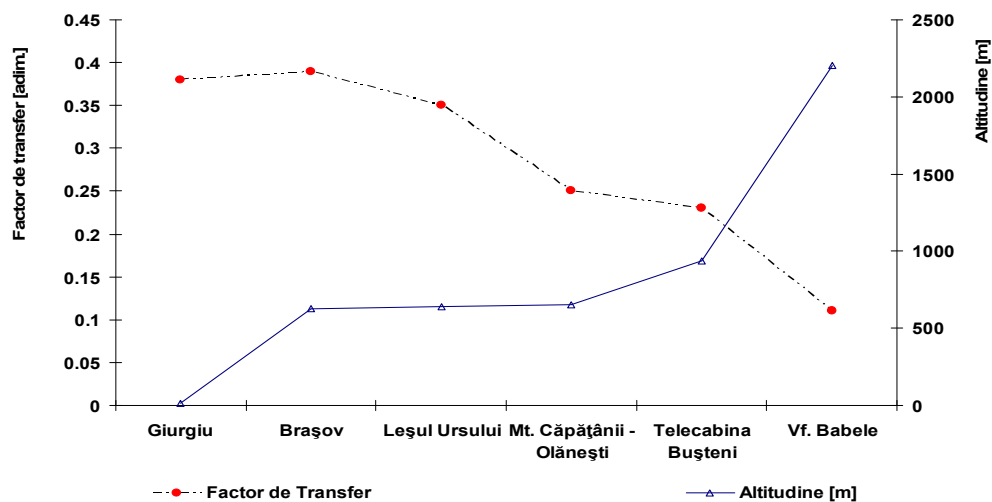


Figura 11.6 - Dependența FT al ^{137}Cs din sol în mușchi de altitudine, pentru probele prelevate de pe pietre/stânci

După cum se poate remarca din figura 11.6, corelația dintre valoarea FT și altitudine este foarte bună (-0,883) pentru toate punctele de prelevare, semnul minus indicând faptul că FT scade pe măsură ce crește altitudinea. Acest aspect confirmă presupunerea anterioară legată de necorelarea valorilor obținute pentru proba prelevată din zona Babele din cauza diferenței prea mari de altitudine.

Concluziile și contribuțiile personale ale tezei sunt expuse în ultima parte a lucrării și pun în evidență principalele rezultate originale analizate în capitolele 5 - 11 și care sunt prezentate în lucrările publicate în reviste de specialitate, precum și în cele susținute în cadrul manifestărilor științifice naționale și internaționale.

Obiectivul științific al prezentei lucrări a fost efectuarea unui studiu al radioactivității factorilor de mediu (apă, aer, sol și vegetație) prin determinări de concentrații ale unor izotopi radioactivi (^3H , ^{222}Rn , ^{131}I , ^{137}Cs) utilizând aparatură performantă și proceduri de prelevare și analiză standardizate sau în unele cazuri originale.

Concluziile și contribuțiile originale sunt următoarele:

În domeniul studiului privind optimizarea pregătirii probelor de apă în vederea determinării activității specifice a tritiului

- Pregătirea probelor de apă a fost studiată prin două metode. Metoda propusă de standard are în vedere evaporarea probei într-o plită cuib și utilizarea între balon și refrigerent a unei coloane de distilare de tip Vigreux, care duce la un timp de distilare la aproximativ 3 ore, în timp ce metoda nestandardizată dezvoltată are în vedere utilizarea unui rotavapor și îndepărtează coloana Vigreux. Timpul necesar distilării în acest caz este de aproximativ 30 min. pentru o probă de 250 mL. Reducerea timpului de distilare se datorează vidului prezent în instalație, care favorizează scăderea temperaturii de fierbere a apei.
- Din studiul elaborat în scopul validării metodei propuse reiese faptul că varianta propusă prezintă un nivel de încredere ridicat, încadrându-se în parametrii exemplificați în standard și permite totodată reducerea timpului de pregătire a probelor.
- Metoda propusă de pregătire a probelor poate deveni extrem de utilă atât în cazul analizelor efectuate pentru monitorizarea de rutină, cât și în situații de urgență, în care obținerea unui rezultat corect și rapid este extrem de importantă.

În domeniul studiului dinamicii tritiului din precipitații

- Având în vedere apropierea locațiilor Călărași și Slobozia de Cernavodă, precum și comportarea acestora similară, pentru condiții meteo similare, se poate concluziona că acestea reprezintă puncte de control ideale pentru monitorizarea activității CNE Cernavodă.
- Deși Craiova este mult mai puternic influențată de condițiile continentale decât Slobozia și Călărași, ea respectă practic aceeași tendință remarcată și în cazul celorlalte două locații, caracterizând practic comportarea tritiului atmosferic la nivelul întregii Câmpii Române.
- Din analiza comparativă a datelor se remarcă o tendință pronunțată de acumulare a tritiului în atmosferă în perioadele de secetă și de preluare a acestuia în primele cantități de precipitații care cad.
- Corelațiile pozitive puternice și medii care s-au remarcat în lunile de iarnă, duc la concluzia că preluarea tritiului în precipitații în perioada rece este mult mai lentă, datorită temperaturilor negative.

În domeniul studiului determinării activității specifice a tritiului din sol

- Studiul de caz din acest capitol prezintă analiza interdisciplinară a unor probe de sol prelevate din parcul dendrologic al Institutului Național de Fizică și Inginerie Nucleară "Horia Hulubei" (IFIN-HH), situat la circa 2 km depărtare de institut și la câțiva kilometri de Municipiul București.

- Studiul prezintă câteva date experimentale, specifice site-ului, legate de apariția tritiului într-o zonă supusă influenței diferitelor activități nucleare printre care se numără și emisia de rutină de efluenți gazoși cu tritiu de la IFIN-HH, În aceste circumstanțe specifice, tritiul eliberat în mod curent de IFIN-HH este o prezență permanentă în zonă, devenind astfel un traser convenabil de mediu.
- Rezultatele experimentale au arătat faptul că, deși concentrația emisiilor de tritiu de la IFIN-HH este scăzută, aceasta poate fi pusă în evidență cu valori mai mari decât cele din aceeași factori de mediu luați ca referință, motiv pentru care s-a analizat distribuția tritiului în trei profile de sol, în scopul acumulării de informații suplimentare pentru reconstituirea "istoriei" zonei. Acest studiu de caz a reprezentat un pas necesar în activitatea complexă dedicată restaurării peisajului din parcul dendrologic.
- Prin utilizarea tritiului ca traser de mediu, investigațiile au vizat atât determinarea concentrației sale în două compartimente de mediu (sol, vegetatie) din zona în cauză, cât și distribuția acesteia în profile de sol, de la suprafață până la adâncimea nivelului apei freactice.
- Activitatea specifică a tritiului asociată apei aflată în porii solului prelevat în cadrul celor trei foraje din parcul dendrologic evidențiază acumularea preponderent a apei în straturile superioare (argilă mâloasă, cenușiu - negricioasă, consistență plastică medie), la cca. 1,5m adâncime, demonstrând astfel mai degrabă o contaminare a apelor de suprafață decât o contribuție a nivelului apei freactice.
- Nivelul ridicat de concentrare a tritiului în intervalul de adâncime 1,50-1,70 m, se datorează "memoriei remanentă" a argilei mâloase, asociată cu adâncimea maximă atinsă de rădăcinile vegetației, permite susținerea unui strat superior de apă extinsă plasat deasupra nivelului apei freactice, favorizând astfel dezvoltarea de specii de arbori cu o distribuție pe orizontală a rădăcinilor și prăbușirea speciilor de arbori cu rădăcini rotative. Argila noroioasă cenușiu-negricioasă de consistență plastică medie amplasată la adâncimi diferite în cele trei puncte de prelevare a probelor în interiorul parcului demonstrează originea mlăștinoasă a terenului și existența unui lanț extins de iazuri în istoria depărtată a acestui loc, la mijlocul secolului al XIX-lea.

În domeniul studiului monitorizării factorilor de mediu în situații de accident nuclear sau urgență radiologică. Cazul accidentului de la Fukushima

- Prezența radionuclidului artificial ^{131}I în atmosferă a fost monitorizată permanent pe întreg teritoriul României în perioada 23.03.2011 – 30.04.2011 de către RNSRM, drept urmare s-a constatat că timpul necesar ajungerii norului deasupra teritoriului țării, a fost de 15 zile.
- Întreruperea monitorizării intensive s-a făcut ca urmare a stabilizării situației la Fukushima și a obținerii a peste două săptămâni de rezultate sub limita de detecție a echipamentelor, pentru ambele tipuri de probe, confirmând astfel afirmațiile autorităților japoneze.
- Concentrațiile de ^{131}I puse în evidență prin analizele gama spectrometrice efectuate au fost comparabile cu cele raportate de restul țărilor [111], [112], [113], [114], atât pentru aerosolii atmosferici, cât și depunerile atmosferice.
- Informațiile furnizate de analiza gama spectrometrică a depunerilor atmosferice totale indică faptul că România nu s-a aflat tot timpul sub nor, fapt confirmat și de rezultatele obținute din analiza aerosolilor atmosferici.
- Condițiile meteorologice, timpul relativ scurt de înjumătățire al radionuclidului artificial ^{131}I , distanța față de locul accidentului, precum și măsurile luate de autoritățile japoneze în scopul limitării efectelor accidentului nuclear de la Fukushima au conlucrat în sensul scăderii

activității specifice a ^{131}I până sub limita de detecție a echipamentelor, atât în probe individuale de aerosoli atmosferici și depuneri atmosferice, cât și în probe cumulate pe diferite intervale de timp, până la maxim o lună.

- În scopul verificării posibilelor efecte pe care prezența ^{131}I le-ar putea produce asupra sănătății populației, s-a calculat estimarea de doză ca urmare a inhalării, pentru cazul cel mai defavorabil posibil: o persoană care ar locui permanent pe Vf. Toaca din Masivul Ceahlău și ar fi expusă timp de un an la valoarea maximă determinată pentru acesta ($3,494 \pm 0,247 \text{ mBq/m}^3$). Conform Normelor de Securitate Radiologică, NSR - 01 [115], calculele pentru populație au pus în evidență o contribuție nesemnificativă, expunerea datorată inhalării ^{131}I , în punctele de prelevare, fiind de peste 1000 de ori mai mică decât cea dată de fondul natural de iradiere.

În domeniul studiului corelării radioactivității atmosferei cu variabilele meteorologice

- Rezultatele experimentale obținute în acest studiu subliniază nevoia de monitorizare permanentă a radioactivității mediului, pentru a determina nivelul fondului natural al fiecărui tip de probă, care este puternic influențat de condițiile meteorologice. Acest tip de informație este vitală în cazul unui potențial accident / incident nuclear când este necesară furnizarea de date prompte și fiabile cu privire la creșterile valorilor de radioactivitate în diferite medii, creșteri care nu pot fi justificate de condițiile meteorologice din zonă și presupun prezența de radionuclizi artificiali în mediul înconjurător.
- Monitorizarea zilnică a radioactivității mediului oferă o indicație asupra schimbărilor în radioactivitatea naturală și permite avertizarea în timp real a factorilor de decizie.
- Gradul de dependență dintre activitățile probelor și variabilele meteorologice a fost dat de coeficientul de corelație Pearson. Practic, în atmosferă, coeficientul de corelație indică gradul de dependență a concentrațiilor de substanțe gazoase sau solide (sub formă aerosoli) de variabilele meteorologice.
- În ceea ce privește radioactivitatea aerului, o mare influență este dată de radioactivitate naturală a solurilor influențată de conținutul de radium din sol respectiv de radon, toron și descendenții acestora.
- Radioactivitate naturală atmosferică este direct influențată de condițiile meteorologice, în special radioactivitatea aerului, în timp ce solul și vegetația sunt mai puțin afectate. Există o creștere a valorilor beta globale ale radioactivității solului și vegetației, atunci când radionuclizii sunt aduși de către precipitațiile atmosferice și viteza vântului. Acest lucru înseamnă că schimbări majore ale nivelului de radioactivitate naturală pot apărea doar în cazul unui accident nuclear sau urgență radiologică.

În domeniul studiului estimării și predicției concentrațiilor de descendenți ai ^{222}Rn și ^{220}Rn folosind variabilele meteorologice

- În ceea ce privește criteriile de evaluare a predicției, au fost utilizate SSR și coeficientul de corelare (R) dintre concentrațiile de descendenți predictate și cele măsurate, nivelul corespunzător de semnificație p și eroarea relativă specifică pentru fiecare valoare a concentrației predictate.
- Performanțele predicțiilor prezentate indică faptul că atât concentrațiile de descendenți ai radonului, cât și ai toronului sunt descrise bine de modelul regresiei liniare multiple, cu excepția cazului de radon din noiembrie ($R = 0,176$). Explicația constă într-o variație mare a condițiilor meteorologice pentru luna în care a fost efectuată predicția - noiembrie și perioada de timp folosită pentru a determina ecuația de predicție - octombrie.

- Analiza de predicție a concentrațiilor de descendenți a arătat că limitările procedurii de predicție sunt mai pronunțate în cazul concentrațiilor de descendenți ai ^{220}Rn , deoarece concentrațiile sunt mult mai mici decât cele ale descendenților ^{222}Rn , precum și datorită unei concentrații mult mai mici în aer. Concentrațiile de descendenți ai toronului sunt mult mai sensibile la variațiile parametrilor dependenți și independenți folosiți pentru estimare și predicție.

În domeniul studiului migrării ^{137}Cs din sol în mușchi

În cadrul acestui studiu s-a analizat distribuția radionuclidului artificial de origine cernobăliană, ^{137}Cs , în probe de mușchi și sol de sub mușchi, prelevate de pe pietre/stânci, zone de pădure și copaci, de pe teritoriul României.

Deși fenomenul de dezintegrare radioactivă primează în toate locațiile de prelevare, au fost identificate alte două fenomene antagonice, care se manifestă în paralel cu acesta: acumularea, respectiv scăderea activității specifice a ^{137}Cs în probe, în funcție de poziția acestora.

Analiza individuală a probelor prelevate de pe cele trei medii suport (pietre/stânci, zone de pădure și copaci) a scos în evidență următoarele aspecte:

- concentrația ^{137}Cs în solul de sub mușchi față de cea din mușchi este maximă pentru pietre/stânci și minimă pentru copaci, fapt justificat de afinitatea Cs de a adera puternic pe carbonații din pietre și sol.
- în cazul probelor prelevate de pe piatră se remarcă o bună corelație pozitivă între altitudine și nivelul de contaminare, în timp ce în cazul probelor prelevate din zone de pădure, corelația este negativă.
- în cazul factorului de transfer tendința descrescătoare funcție de altitudine este clar evidențiată pentru toate probele.
- notă discordantă fac probele prelevate de pe copaci, unde solul (cel mai probabil acumulat din depunerile atmosferice uscate) are un conținut de ^{137}Cs doar cu cca. 9% mai mare decât în mușchi. Acest aspect poate fi explicat prin cantitatea extrem de mică de carbonați din solul existent sub mușchi, care a permis practic plantelor să echilibreze nivelul propriu de cesiu cu cel din sol.

Rezultatele studiilor de caz prezentate în cadrul tezei permit optimizarea sistemului de monitorizare și interpretare a datelor privind radioactivitatea mediului (naturală și artificială).

BIBLIOGRAFIE SELECTIVĂ

1. Chiosilă, I., *Radiațiile și viața*, Ed. PACO, București, 1998
2. International Organization for Standardization, ISO 13528:2005 – *Statistical methods for use in proficiency testing by interlaboratory comparisons*, Geneva, Switzerland
3. Cuculeanu, V.; Simion, F.; **Simion, E.**; Geicu, A., "Dynamics, deterministic nature and correlations of outdoor ^{222}Rn and ^{220}Rn progeny concentrations measured at Bacău", *Journal of Environmental Radioactivity*, vol. 102, 703-712, 2011
4. www.freemeteo.com
5. <http://distanta.ro/linie-dreapta/>
6. **Simion, E.**; Simion, F., *Monitorizarea radioactivității factorilor de mediu în zonele cu fondul natural modificat antropic*, PROTCIV 2009, Sesiunea de comunicări științifice cu tema: "Protecția civilă, apărarea împotriva dezastrelor și gestionarea situațiilor", 19 februarie 2009, Snagov, România, Editura Printech, pp. 370 - 378, ISSN 1843-5343
7. Simion, C. A.; **Simion, E.**; Păunescu, N.; Mocanu, N.; El-Shamali, S.; Burda, Ș.; Manta, T.; Ionescu, D., *The use of tritium resulting from nuclear activities as environmental tracer*, *Journal of Labelled Compounds & Radiopharmaceuticals*, 53 (5-6), pp. 477-480, 2010
8. **Simion, E.**; Simion, F.; Cojocaru, L.; Pușcașu, C.; Tăbăcaru, C., Florea, N.; Neagu, A.; Pop, T., "Detectarea urmelor de I-131 în aerosoli și depuneri atmosferice, provenit de la accidentul de la CNE Fukushima – Japonia pe teritoriul României", *The International Symposium on Nuclear Energy (SIEN)*, 16-20.10.2011, București-România
9. **Simion, E.**, *Monitorizarea mediului la nivel național în situații de urgență radiologică*, Conferința națională "Informarea și educația publicului pentru situații de urgență radiologică" organizată de AREN, SRRp și WiN, București, 2012, România.
10. http://www.anpm.ro/analize_gama_spectrometrice-25857
11. <http://www.meteoromania.ro>
12. <http://eurdep.jrc.ec.europa.eu>
13. Manolopoulou, M.; Vagena, E.; Stoulos, S.; Ioannidou, A.; Papastefanou, C., *Radioiodine and radiocesium in Thessaloniki, Northern Greece due to the Fukushima nuclear accident*, *Journal of Environmental Radioactivity* 102 (2011) 796-797
14. Baci, C.A., *Radon and thoron progeny concentration variability in relation to meteorological conditions at Bucharest (Romania)*, *J. Environ. Radioact.*, 83(2), 171-189, 2005
15. Simion, F.; **Simion, E.**; Mihalcea, I., *Influence of weather conditions over natural radioactivity*, *The International Symposium on Nuclear Energy (SIEN)*, 16-20.10.2011, București, România
16. Porstendörfer, J.; Butterweck, G.; Reineking, A., *Diurnal variation of the concentrations of Radon and its short-lived daughters in the atmosphere near the ground*. *Atmos. Environ.* 25A (3/4), 709-713, 1991

17. **Simion, E.**; Simion, F.; Verbuță D.C.; Leahu, E., *Long-term variation of outdoor radon concentration in Bacău*, IRPA Regional Congress for Central and Eastern Europe, 24-28 September 2007, Braşov, Romania
18. **Simion, E.**; Simion, F., *Outdoor radon variation*, In Situu Nuclear Metrology as a Tool for Radioecology (INSINUME 08), 2008, Rabat, Maroc
19. Simion, F.; Cuculeanu, V.; **Simion, E.**; Geicu, A., *Modeling the ^{222}Rn and ^{220}Rn progeny concentrations in atmosphere using multiple linear regression with meteorological variables as predictors*, Romanian Reports in Physics, vol. 65, nr. 2, pp. 524-544, 2013
20. Simion, F.; **Simion, E.**; Cuculeanu, V.; Frătică, V., *Monitorizarea radonului atmosferic în câteva regiuni din România*, Conferință națională comună "Protecția în expunerea profesională la radiații ionizante" organizată de SRRp și SRMM, 8 octombrie 2010, București, România
21. Cromwell, J.B.; Hannan, M.J.; Labys, W.C.; Terreza, M., *Multivariate tests for time series models*, SAGE Publications, Inc., 1994
22. Hubbard, M.C.; Cobourn, W.G., *Development of a regression model to forecast ground-level ozone concentration in Louisville*", KY. Atmos. Environ. 32, 14/15, 2637-2647, 1998
23. **Simion, E.**; Mihalcea, I.; Simion, F.; Păcurar, C., *Evaluation model of atmospheric natural radioactivity considering meteorological variables*, Revista de chimie, vol. 63, pp. 1251, 2012
24. Wilks, D.S., *Statistical methods in atmospheric sciences: an introduction*. Academic Press., 1995
25. Simion, F.; **Simion, E.**; Geicu, A.; Cuculeanu, V., *Modeling the outdoor radon and thoron progeny concentrations using multiple linear regression*, Summer School on Chemistry, Physics, Mathematics and Computer Science, University of Bucharest, iunie 2009, România
26. Chambers, J. M., *Linear models*, eds. J. M. Chambers and T. J. Hastie, Wadsworth & Brooks/Cole, 1992
27. Rogerson, P.A., *Statistical methods in geography*, London, Sage Publications, Inc., 2001
28. Wessa, P., *Free Statistics Software*, Office for Research Development and Education, version 1.1.23-r7, 2012. URL <http://www.wessa.net/>
29. **Simion, E.**; Mihalcea, I.; Cuculeanu, V.; Simion, F., *Estimation and prediction of the outdoor ^{222}Rn and ^{220}Rn progeny concentrations using meteorological variables*", Rom. Journ. Phys., Vol. 58, Supplement, P. S262–S272, Bucharest, 2013
30. Strebl, F.; Ringer, W.; Gerzabek, M.H., *Radiocaesium contamination of meadow vegetation - time-dependent variability and influence of soil characteristics at grassland sites in Austria*, Journal of Environmental Radioactivity, 58, 143, 2002
31. **Simion, E.**; Chiosilă, I.; Mihalcea, I.; Simion, F., *Contribuții la studiul migrației Cs-137 din sol în mușchi*, The International Symposium on Nuclear Energy (SIEN), 16-20.10.2011, București-România
32. Chiosilă, I.; Gheorghe, R.; **Simion, E.**, *25 de ani de la accidentul de la Cernobîl*, The International Symposium on Nuclear Energy (SIEN), 16-20.10.2011, București-România

CONTRIBUȚII PERSONALE CARE AU FOST PUBLICATE

Considerentele științifice menționate mai sus constituie contribuții personale care au fost publicate:

• în reviste cotate ISI:

1. Simion, C. A.; Simion, E.; Păunescu, N.; Mocanu, N.; El-Shamali, S.; Burda, Ș.; Manta T.; Ionescu, D., *The use of tritium resulting from nuclear activities as environmental tracer*, Journal of Labelled Compounds & Radiopharmaceuticals, 53 (5-6), pp. 477-480, 2010
2. Cuculeanu, V.; Simion, F.; Simion, E.; Geicu, A., *Dynamics, deterministic nature and correlations of outdoor ^{222}Rn and ^{220}Rn progeny concentrations measured at Bacău*, Journal of Environmental Radioactivity, vol. 102, 703-712, 2011, ELSEVIER
3. Simion, E.; Mihalcea, I.; Simion, F.; Păcurar, C., *Evaluation model of atmospheric natural radioactivity considering meteorological variables*, Revista de chimie, vol. 63, pp. 1251, 2012
4. Simion, F.; Cuculeanu, V.; Simion, E.; Geicu, A., *Modeling the ^{222}Rn and ^{220}Rn progeny concentrations in atmosphere using multiple linear regression with meteorological variables as predictors*, Romanian Reports in Physics, vol. 65, nr. 2, pp. 524-544, 2013
5. Simion, E.; Mihalcea, I.; Cuculeanu, V.; Simion, F. "Dynamics of outdoor radon and thoron progeny concentrations in some geographical areas of Romania" Rom. Journ. Phys., Vol. 58, Supplement, P. S251–S261, Bucharest, 2013
6. Simion, E.; Mihalcea, I.; Cuculeanu, V.; Simion, F., "Estimation and prediction of the outdoor ^{222}Rn and ^{220}Rn progeny concentrations using meteorological variables", Rom. Journ. Phys., Vol. 58, Supplement, P. S262–S272, Bucharest, 2013

• în culegeri de lucrări ale conferințelor internaționale:

1. Simion, E.; Simion, F.; Verbuță D.C.; Leahu, E., *Long-term variation of outdoor radon concentration in Bacău*, IRPA Regional Congress for Central and Eastern Europe, 24-28 September 2007, Brașov, Romania
2. Simion, F.; Simion, F., *Outdoor radon variation*, In Situu Nuclear Metrology as a Tool for Radioecology (INSINUME 08), 2008, Rabat, Maroc
3. Simion, E.; Simion, E.; Mihalcea, I., *Influence of weather conditions over natural radioactivity*, The International Symposium on Nuclear Energy (SIEN), 16-20.10.2011, București, România
4. Simion, E.; Simion, F.; Cojocaru, L.; Pușcașu, C.; Tăbăcaru, C.; Florea, N.; Neagu, A.; Pop, T., *Detectarea urmelor de I-131 în aerosoli și depuneri atmosferice, provenit de la accidentul de la CNE Fukushima – Japonia pe teritoriul României*, The International Symposium on Nuclear Energy (SIEN), 16-20.10.2011, București, România

5. Simion, E.; Chiosilă, I.; Mihalcea, I.; Simion, F., *Contribuții la studiul migrației Cs-137 din sol în mușchi*, The International Symposium on Nuclear Energy (SIEN), 16-20.10.2011, București, România
6. Chiosilă, I.; Gheorghe, R.; Simion, E., *25 de ani de la accidentul de la Cernobâl*, The International Symposium on Nuclear Energy (SIEN), 16-20.10.2011, București, România
7. Simion, E.; Mihalcea, I.; Cuculeanu, V.; Simion, F., *Dynamics of outdoor radon and thoron progeny concentrations in some geographical areas of Romania*, First East European Radon Symposium (FERAS) 2012, 2-5 September 2012, Cluj Napoca, România
8. Simion, F.; Simion, E.; Cuculeanu, V.; Mihalcea, I., *Estimation and prediction of the outdoor ^{222}Rn and ^{220}Rn progeny concentrations using meteorological variables*, First East European Radon Symposium (FERAS) 2012, 2-5 September 2012, Cluj Napoca, România

• **în culegeri de lucrări ale conferințelor naționale:**

1. Simion, E.; Simion, F., *Monitorizarea radioactivității factorilor de mediu în zonele cu fondul natural modificat antropic*, PROTCIV 2009, Sesiunea de comunicări științifice cu tema: "Protecția civilă, apărarea împotriva dezastrelor și gestionarea situațiilor", 19 februarie 2009, Snagov, România, Ed. Printech, pp. 370 - 378, ISSN 1843-5343
2. Simion, F.; Simion, E.; Geicu, A.; Cuculeanu, V., *Modeling the outdoor radon and thoron progeny concentrations using multiple linear regression*, Summer School on Chemistry, Physics, Mathematics and Computer Science, University of Bucharest, iunie 2009, România
3. Simion, F.; Cuculeanu, V.; Simion, E., *Outdoor radon concentration in Bacau area*, 2010 Annual Scientific Conference, Faculty of Physics, University of Bucharest, June 2010, Romania
4. Frătică, V.; Simion, E.; Simion, F., *Supravegherea tritiului în râurile din România*, Conferință națională comună "Protecția în expunerea profesională la radiații ionizante" organizată de SRRp și SRMM, 8 octombrie 2010, București, România
5. Simion, F.; Simion, E.; Cuculeanu, V.; Frătică, V., *Monitorizarea radonului atmosferic în câteva regiuni din România*, Conferință națională comună "Protecția în expunerea profesională la radiații ionizante" organizată de SRRp și SRMM, 8 octombrie 2010, București, România
6. Simion, E.; Simion, F.; Frătică, V., *Monitorizarea NORM și TENORM în România*, Conferință națională comună "Protecția în expunerea profesională la radiații ionizante" organizată de SRRp și SRMM, 8 octombrie 2010, București, România
7. Simion, E., *Monitorizarea mediului la nivel național în situații de urgență radiologică*, Conferința națională "Informarea și educația publicului pentru situații de urgență radiologică" organizată de AREN, SRRp și WiN, București, 2012, România.