









# UNIVERSITATEA "BABEŞ-BOLYAI" CLUJ-NAPOCA

Facultatea de Știința și Ingineria Mediului



# RADIONUCLIZI UTILIZAȚI PENTRU ESTIMAREA CANTITATIVĂ A REDISTRIBUȚIEI SOLULUI

- REZUMAT -

Conducător de doctorat: Prof. univ. dr. Constantin Cosma

> Doctorand: Andra-Rada Iurian

CLUJ-NAPOCA - 2013



Teza de doctorat a fost realizată cu sprijinul financiar al proiectului "STUDII DOCTORALE PENTRU PERFORMANȚE EUROPENE ÎN CERCETARE ȘI INOVARE (CUANTUMDOC)" POSDRU/107/1.5/S/79407.

Proiectul "STUDII DOCTORALE PENTRU PERFORMANȚE EUROPENE ÎN CERCETARE ȘI INOVARE (CUANTUMDOC)" POSDRU/107/1.5/S/79407, este un proiect strategic care are ca obiectiv general "Aplicarea de strategii manageriale, de cercetare și didactice destinate îmbunătățirii formării inițiale a viitorilor cercetători prin programul de studii universitare de doctorat, conform procesului de la Bologna, prin dezvoltarea unor competențe specifice cercetării științifice, dar și a unor competențe generale: managementul cercetării, competențe lingvistice și de comunicare, abilități de documentare, redactare, publicare și comunicare științifică, utilizarea mijloacelor moderne oferite de TIC, spiritul antreprenorial de transfer al rezultatelor cercetării. Dezvoltarea capitalului uman pentru cercetare și inovare va contribui pe termen lung la formarea doctoranzilor la nivel european cu preocupări interdisciplinare. Sprijinul financiar oferit doctoranzilor va asigura participarea la programe doctorale în țara și la stagii de cercetare în centre de cercetare sau universități din UE. Misiunea proiectului este formarea unui tânăr cercetator adaptat economiei de piață și noilor tehnologii, având cunoștințe teoretice, practice, economice și manageriale la nivel internațional, ce va promova principiile dezvoltării durabile și de protecție a mediului înconjurător."

Proiect finanțat în perioada 2010 - 2013

Finanțare proiect: 16.810.100,00 RON

Beneficiar: Universitatea Tehnică "Gheorghe Asachi" din Iași

Partener: Universitatea "Babeş Bolyai" din Cluj-Napoca

Director proiect: Prof. univ. dr. ing. Mihai BUDESCU

Responsabil proiect partener: Prof. univ. dr. ing. Alexandru OZUNU

# Cuprins

Abstract 1
Capitolul 1. Introducere 2
1.1. Contextul general și motivația cercetării2
1.2. Obiectivele studiului
1.3. Structura tezei 6
Capitolul 2. Radionuclizi (FRN) utilizați ca instrumente în cercetarea
eroziunii solului
2.1. Utilizarea <sup>137</sup> Cs ca și radiotrasor al mișcării solului
2.2. Utilizarea <sup>210</sup> Pb <sub>ex</sub> ca si trasor al solului si sedimentelor14
2.3. Utilizarea <sup>7</sup> Be în studii de eroziune a solului
2.4. Utilizarea radionuclizilor ca și trasori ai eroziunii în România
Capitolul 3. Spectrometria gama – principiile de bază 23
3.1. Emisia gama și dezintegrarea radioactivă23
3.2. Interacțiunile radiațiilor gama cu materia25
3.3. Răspunsul detectorului și forma spectrului gama
3.4. Sistemul gama-spectrometric
3.5. Analiza spectrelor 30
Capitolul 4. Efectul practicilor de cultivare asupra ratelor de eroziune și
sedimentare utilizând <sup>137</sup> Cs și <sup>210</sup> Pb <sub>ex</sub>
4.1. Introducere
4.2. Materiale și metode
4.2.1. Descrierea terenului investigat
4.2.2. Prelevarea probelor din terenul cultivat
4.2.3. Colectarea solului din zonele de referință
4.2.4. Analizele de laborator
4.3. Rezultate și discuții
4.3.1. Inventariile <sup>137</sup> Cs și <sup>210</sup> Pb <sub>ex</sub> în zonele de referință
4.3.2. Inventariile <sup>137</sup> Cs și <sup>210</sup> Pb <sub>ex</sub> în zona de studiu
4.3.3. Corelația dintre inventariile radionuclizilor și parametrii de textură
ai solului
4.3.4. Ratele de redistribuție ale solului prin aplicarea modelelor radiometrice 44
4.4. Concluzii

Capitolul 5. Incertitudinile legate de parametrii de intrare în modelul	
radiometric al ratelor de redistribuție a solului: Cazul	
solurilor nedisturbate	50
5.1. Introducere	50
5.2. Materiale și metode	51
5.2.1. Zona studiată și planul prelevării probelor	51
5.2.2. Analizele de laborator	53
5.2.3. Modelul de Eroziune al Difuziei și Migrației pentru terenuri necultivate	54
5.3. Rezultate și discuții	55
5.3.1. Aplicarea ecuației difuziei-convecției pentru profilul vertical al <sup>137</sup> Cs	
în zona de referință	55
5.3.2. Estimarea ratelor de eroziune și sedimentare și incertitudinile asociate cu	
parametrii de intrare ai modelului radiometric	58
5.3.2.1. Estimarea ratelor de redistribuție a solului în zona Jucu	
utilizând DMM	60
5.3.2.2. Valoarea inventarului de referință	61
5.3.2.3. Contribuția cesiului de la Chernobyl	62
5.3.2.4. Coeficientul de difuzie, D și viteza de convecție, v	63
5.3.2.5. Factorii de corecție ai mărimii particulelor	64
5.3.3. Aplicarea modelului ROMSEM	65
5.3.4. Corelația între <sup>137</sup> Cs și proprietățile fizico-chimice ale solului	66
5.4. Concluzii	68
	-
Capitolul 6. Distribuția spațiala a 'Be în soluri după ploi abundente	70
6.1. Introducere	70
6.2. Materiale și metode	71
6.2.1. Zona investigata și prelevarea probelor	71
6.2.2. Masuratorile gama-spectrometrice	74
6.3. Rezultate și discuții	/5
<b>6.3.1.</b> Profilul vertical al Be	75
6.5.2. Variabilitatea spațială a Be	/ /
6.4. Concluzi	79
Capitolul 7. Probleme specifice spectrometriei gama	80
7.1. Validarea măsurătorilor prin intercomparare	80
7.1.1. Introducere	80
7.1.2. Prepararea probelor de sol utilizate în intercomparare	82
7.1.3. Rezultate și discuții	83

laboratorului radiometric din Cluj-Napoca	
7.1.3.1.1. Metodologie și echipament	
7.1.3.1.2. Determinarea activității masice a probelor de sol	
7.1.3.1.3. Procedura de validare internă	
7.1.3.1.4. Metodă experimentală pentru corecția absorbției în probă	
la energia gama joasă a <sup>210</sup> Pb	
7.1.3.2. Măsurătorile gama-spectrometrice în cadrul IAEA Terrestrial	
Environment Laboratory din Seibersdorf (Austria)	
7.1.3.2.1. Determinarea activității masice a probelor de sol	
7.1.3.2.2. Determinarea compoziției elementale a solului	
7.1.3.2.3. Corecții aplicate în măsurătorile gama-spectrometrice	
7.1.3.3. Determinarea <sup>210</sup> Pb și <sup>226</sup> Ra în probele de sol utilizând	
spectrometria alfa și metoda scintilatorului lichid	
7.1.3.3.1. Materiale și metode	
7.1.3.3.2. Analiza <sup>226</sup> Ra prin spectrometrie alfa	105
7.1.3.3.3. Analiza <sup>210</sup> Pb prin metoda scintilatorului lichid	107
7.1.3.4. Evaluarea rezultatelor intercomparării	110
7.1.4. Concluzii și recomandări	116
2.2. Calibrarea detectorilor HPGe din laboratorul radiometric din Cluj-Napoca. 7.2.1. Introducere	117
7.2.2. Rezultate și discuții	
7.2.2.1. Calibrarea în energie și în rezoluție	118
	<b> 118</b>
7.2.2.2. Calibrarea în eficientă	<b> 118</b> 118 119
7.2.2.2. Calibrarea în eficiență 7.2.2.2.1. Calibrarea în eficientă a detectorului Ortec GEM	<b> 118</b> 118 119 123
<ul> <li>7.2.2.2. Calibrarea în eficiență</li> <li>7.2.2.2.1. Calibrarea în eficiență a detectorului Ortec GEM</li> <li>7.2.2.2.2. Calibrarea în eficientă a detectorului Ortec GMX</li> </ul>	<b> 118</b> 118 119 123 125
<ul> <li>7.2.2.2. Calibrarea în eficiență</li> <li>7.2.2.2.1. Calibrarea în eficiență a detectorului Ortec GEM</li> <li>7.2.2.2.2. Calibrarea în eficiență a detectorului Ortec GMX</li> <li>7.2.2.3. Verificarea fondului natural</li> </ul>	<b> 118</b> 118 119 123 125 130
<ul> <li>7.2.2.2. Calibrarea în eficiență</li> <li>7.2.2.2.1. Calibrarea în eficiență a detectorului Ortec GEM</li> <li>7.2.2.2.2. Calibrarea în eficiență a detectorului Ortec GMX</li> <li>7.2.2.3. Verificarea fondului natural</li> <li>7.2.2.4. Validarea externă prin participare la Testul Global</li> </ul>	<b>118 118 119 123 125 130</b>
<ul> <li>7.2.2.2. Calibrarea în eficiență</li> <li>7.2.2.2.1. Calibrarea în eficiență a detectorului Ortec GEM</li> <li>7.2.2.2.2. Calibrarea în eficiență a detectorului Ortec GMX</li> <li>7.2.2.3. Verificarea fondului natural</li> <li>7.2.2.4. Validarea externă prin participare la Testul Global de Competentă (PT) al AIEA</li> </ul>	118
<ul> <li>7.2.2.2. Calibrarea în eficiență</li> <li>7.2.2.2.1. Calibrarea în eficiență a detectorului Ortec GEM</li> <li>7.2.2.2.2. Calibrarea în eficiență a detectorului Ortec GMX</li> <li>7.2.2.3. Verificarea fondului natural</li> <li>7.2.2.4. Validarea externă prin participare la Testul Global de Competență (PT) al AIEA</li> <li>7.2.3. Concluzii și recomandări</li> </ul>	118
<ul> <li>7.2.2.2. Calibrarea în eficiență</li> <li>7.2.2.2.1. Calibrarea în eficiență a detectorului Ortec GEM</li> <li>7.2.2.2.2. Calibrarea în eficiență a detectorului Ortec GMX</li> <li>7.2.2.3. Verificarea fondului natural</li> <li>7.2.2.4. Validarea externă prin participare la Testul Global de Competență (PT) al AIEA</li> <li>7.2.3. Concluzii și recomandări</li> </ul>	118
<ul> <li>7.2.2.2. Calibrarea în eficiență</li> <li>7.2.2.2.1. Calibrarea în eficiență a detectorului Ortec GEM</li> <li>7.2.2.2.2. Calibrarea în eficiență a detectorului Ortec GMX</li> <li>7.2.2.3. Verificarea fondului natural</li> <li>7.2.2.4. Validarea externă prin participare la Testul Global de Competență (PT) al AIEA</li> <li>7.2.3. Concluzii și recomandări</li> <li>apitolul 8. Concluzii generale și direcții viitoare</li> </ul>	118         118         119         123         125         130         133         135         137
<ul> <li>7.2.2.2. Calibrarea în eficiență</li> <li>7.2.2.2.1. Calibrarea în eficiență a detectorului Ortec GEM</li> <li>7.2.2.2.2. Calibrarea în eficiență a detectorului Ortec GMX</li> <li>7.2.2.3. Verificarea fondului natural</li></ul>	118 118 119 123 125 130 133 135 137
<ul> <li>7.2.2.2. Calibrarea în eficiență</li> <li>7.2.2.2.1. Calibrarea în eficiență a detectorului Ortec GEM</li> <li>7.2.2.2.2. Calibrarea în eficiență a detectorului Ortec GMX</li> <li>7.2.2.3. Verificarea fondului natural</li></ul>	118 118 119 123 125 130 133 135 137 137 141
<ul> <li>7.2.2.2. Calibrarea în eficiență</li></ul>	118 118 119 123 125 130 133 135 137 137 141

**Cuvinte cheie:** eroziunea solului, radionuclizi, cesiu-137, plumb-210, beriliu-7, rata netă de eroziune, modele de conversie, inventar de referință, spectrometrie gama de rezoluție ridicată, validarea măsurătorilor

# **Rezumatul tezei**

#### **Capitolul 1. Introducere**

Conservarea resurselor solului este critică pentru omenire ca urmare a creșterii cererii pentru producția de alimente în contextul creșterii continue a populației și a schimbărilor climatice (*Nguyen et al., 2012*). Prezentul studiu interdisciplinar se impune cu scopul aplicării și dezvoltării tehnicilor nucleare pentru estimarea cantitativă a proceselor de eroziune și sedimentare a solului pentru terenurile degradate din România.

#### **Obiectivele studiului**

Teza atinge atât aspecte ale aplicațiilor radiotrasorilor ( $^{137}$ Cs,  $^{210}$ Pb<sub>ex</sub> și  $^{7}$ Be) în estimarea eroziunii și sedimentării solurilor, cât și probleme specifice legate de principala tehnică spectrometrică utilizată la determinarea radionuclizilor în probele de sol.

**Primul obiectiv major** al lucrării îl constituie testarea și îmbunătățirea metodologiilor radionuclizilor cu depunere pe suprafața solului (FRN) pentru estimarea redistribuției acestora pe terenurile cultivate și necultivate din NV României. Obiectivele specifice ale cercetării asupra aplicării radionuclizilor în studiul eroziunii solurilor pot fi rezumate astfel:

(i) utilizarea simultană a inventariilor  $^{137}$ Cs și  $^{210}$ Pb<sub>ex</sub> pentru estimarea ratelor de eroziune și sedimentare a solului pentru terenurile cultivate din Romania și în scopul determinării efectelor schimbărilor proceselor de cultivare asupra magnitudinii eroziunii solurilor în țara noastră;

(ii) estimarea ratelor de eroziune și sedimentare care afectează pășunile din România, utilizând metoda <sup>137</sup>Cs și evidențierea impactului parametrilor de intrare (ex. inventarul de referință, contribuția depunerilor de la Chernobyl, coeficientul de difuzie și viteza de convecție a <sup>137</sup>Cs, factorul de corecție pentru mărimea particulelor) utilizați în cadrul Modelului Difuziei și al Migrației (DMM) pentru terenuri necultivate asupra estimărilor eroziunii solului;

(iii) verificarea uneia dintre presupunerile cheie pe care se bazează aplicarea tehnicii <sup>7</sup>Be, legată de uniformitatea depunerii radionuclidului în asociere cu evenimentul eroziv (ploi abundente).

Al doilea obiectiv major al tezei face referire la problemele specifice tehnicii radiometrice utilizate pentru determinarea radionuclizilor în probele de sol, și anume spectrometria gama. Deși multe tehnici spectrometrice (spectrometria gama, spectrometria alfa și metoda scintilatorului lichid) sunt disponibile pentru determinarea <sup>210</sup>Pb și <sup>226</sup>Ra total (necesar pentru estimarea <sup>210</sup>Pb în exces), <sup>137</sup>Cs și <sup>7</sup>Be sunt în general măsurați în probe de mediu numai prin spectrometrie gama. Unul dintre cele mai mari avantaje ale acestei tehnici este că toți radionuclizii de interes pot fi determinați cu ajutorul unui singur spectru, făcând astfel posibilă determinarea rapidă a radiotrasorilor pentru un număr mare de probe necesare în studii de eroziune. Totuși, certitudinea, acuratețea și precizia măsurătorilor este de mare importanță în cadrul comunității științifice, iar rezultate eronate ale activității radionuclizilor pot conduce la discrepanțe majore ale ratelor de eroziune estimate. Din acest considerent, următoarele obiective specifice sunt de mare relevanță pentru acest studiu:

(i) verificarea internă și validarea externă a măsurătorilor gama efectuate în cadrul laboratorului radiometric din cadrul Facultății de Știința și Ingineria Mediului (FSIM) prin intercompararea activității radionuclizilor determinați prin spectrometrie gama și/sau alte metode alternative (spectrometrie alfa și beta) pentru aceleași probe de sol, între 5 laboratoare internaționale;

(ii) calibrarea în eficiență a detectorilor gama cu cristal de germaniu hiperpur (HPGe) din laboratorul facultății și validarea ulterioară a rezultatelor prin participare la Testul de Competență organizat de Agenția Internațională pentru Energie Atomică (AIEA) de la Viena.

Teza este structurată în 8 capitole: un capitol introductiv, două capitole care prezintă date din literatură privind utilizarea radioizotopilor în studii de eroziune și principiile de bază ale spectrometriei gama, patru capitole care descriu contribuțiile originale ale tezei și un capitol care sumarizează cele mai importante concluzii, prezentând totodată aspecte ale unor viitoare cercetări în domeniu. Analizele de spectrometrie alfa și beta și parte din măsurătorile gama au fost realizate de către autoare într-un stagiu de cercetare de 7 luni în cadrul Laboratoarelor AIEA din Seibersdorf, Austria.

# Capitolul 4. Efectul practicilor de cultivare asupra ratelor de eroziune și sedimentare utilizând <sup>137</sup>Cs și <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub>

În urma schimbării politicii de guvernare la începutul anilor 1990, terenurile din România au fost redate vechilor proprietari, rezultând un număr mare de ferme mici cu teren agricol împărțit în parcele înguste și favorizând astfel creșterea extinderii și a magnitudinii eroziunii solurilor în multe zone din țară. Obiectivele prezentei cercetări sunt: (i) estimarea eroziunii solurilor și a ratelor de sedimentare pentru terenurile cultivate din România utilizând simultan inventariile <sup>137</sup>Cs și <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> (plumb în exces) din profile de sol, (ii) studierea efectelor practicilor agricole asupra caracteristicilor redistribuției solului, și (iii) determinarea potențialului <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> ca și trasor (complementar metodei <sup>137</sup>Cs) în estimarea magnitudinii redistribuției solului.

Zona agricolă investigată este localizată în partea centrală a Câmpiei Transilvaniei, în bazinul râului Mureş (N46°36', E24°06'). În această zonă solul este Cernoziom Cambic cu textură argiloasă-nisipoasă și o pantă medie de 10%. Conform informațiilor obținute de la farmierii locali, acest teren a fost cultivat de-a lungul pantei de către proprietarii privați în perioada 1946 - 1959. Din 1959 până în 1991, după instituirea Cooperativei Agricole Locale (CAP), toate parcelele agricole au fost arate într-un singur lot, de sus în jos, favorizând accelerarea proceselor de eroziune.

Metoda radiotrasorului se bazează pe comparația dintre inventariile radionuclidului în zona studiată și inventarul mediu dintr-o "zonă de referință" plană, neafectată de procese de redistribuție a solului. Colectarea probelor de sol s-a efectuat la începutul lunii octombrie 2011, în două campanii de colectare, urmărind traseul a două linii transversale în zona cultivată. Prima zonă de referință a fost selectată în curtea unei case abandonate, terenul fiind acoperit de vegetație abundentă și tufișuri, iar un al doilea teren de referință s-a ales într-o zonă relativ plană a unui drum de câmp înierbat, situat pe coama dealului. Activitățile <sup>137</sup>Cs și <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> în probele de

sol s-au determinat prin spectrometrie gama nedistructivă, utilizând un detector Ortec HPGe de tip N (eficiență relativă 34%). Factorul de corecție pentru absorbția în probă s-a determinat experimental și a fost aplicat pentru <sup>210</sup>Pb total, considerând energia joasă de măsurare de la 46.5 keV. <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> s-a determinat prin diferența dintre activitatea <sup>210</sup>Pb total și cea a <sup>226</sup>Ra din sol. Pentru caracterizarea fizico-chimică s-au colectat probe de sol suplimentare.

Profilele în adâncime ale <sup>137</sup>Cs au relevat o caracteristică similară pentru cele două zone de referință selectate. Inventarul <sup>137</sup>Cs pentru profilul de sol incremental din prima zonă de referintă a însumat 6640 Bg m<sup>-2</sup> (Figura 1a). Maioritatea continutului de  $^{137}$ Cs (92%) s-a găsit în primii 15 cm ai profilului de sol, fără ca acesta să fie detectat sub adâncimea de 30 cm. În a doua zonă de referință, inventarul <sup>137</sup>Cs a avut o valoare de 4560 Bq m<sup>-2</sup> (Figura 1b). Inventarul mediu de referință pentru cele 10 profile de sol s-a determinat la  $5460 \pm 880$  Bq m<sup>-2</sup>. Valorile inventariilor profilelor de sol din zonele de referintă au fost cuprinse între 4560 Bg m<sup>-2</sup> și 6950 Bg m<sup>-2</sup>, indicând un grad admisibil de variabilitate spatială pentru <sup>137</sup>Cs (coeficientul de variatie (CV): 16%). S-au efectuat analize și pentru determinarea activității <sup>210</sup>Pbex în profilul de sol incremental din prima zonă de referință, dar valorile <sup>226</sup>Ra (prin care s-a estimat <sup>210</sup>Pb suportat) au fost mai mari sau egale în comparație cu <sup>210</sup>Pb total, rezultând o valoare nesemnificativă a <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub>. Prezența vegetației abundente, lipsa unui aport recent semnificativ a <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> sau prezența unei activități crescute a radiului în sol, și astfel a unor concentrații crescute a <sup>210</sup>Pb suportat, pot cu siguranță să limiteze utilizarea <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> în investigații ale redistribuției solului dacă valoarea inventarului de referință nu poate fi determinată. Inventarul <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> măsurat pentru a doua zonă de referință a fost 9640 Bq m<sup>-2</sup>, 95% interval de încredere.



**Figura 1.** a) Distribuția cu adâncimea a <sup>137</sup>Cs în prima zonă de referință; b) Distribuțiile cu adâncimea a <sup>137</sup>Cs și <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> pentru a doua zonă de referință.

Inventariile <sup>137</sup>Cs și <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> în zona de studiu evidențiază valori diferite pentru cele două linii transversale (Figura 2), în mare măsură din cauza topografiei terenului și a diferitelor practici agricole pentru parcelele de unde s-au colectat probele de sol; totuși acestea au avut o orientare

asemănătoare de-a lungul pantei. Majoritatea inventariilor <sup>137</sup>Cs (cu excepția celor mai înalte puncte de colectare ale fiecărei transversale) sunt mai mari decât valoarea de referință, reflectând o potențială sedimentare a solului și a <sup>137</sup>Cs asociat. Totuși, majoritatea inventariilor <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> sunt mai mici decât valoarea de referință (cu excepția punctelor de prelevare situate la baza terenului), relevând caracteristici temporale diferite ale redistribuției solului comparativ cu <sup>137</sup>Cs. Nivelele inventariilor <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> și <sup>137</sup>Cs măsurate în diferite puncte de prelevare din zona studiată au fost influențate de schimbarea practicilor agricole asociate cu lichidarea CAP-ului local în 1991. În ultimii 21 ani, terenul a fost cultivat în parcele înguste de-a lungul pantei (cu excepția a două parcele situate în partea superioară și inferioară a terenului), reducând astfel pierderea solului.



**Figura 2.** a) Inventariile <sup>137</sup>Cs și <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> (kBq m<sup>-2</sup>) pentru Linia transversală 1; b) Inventariile <sup>137</sup>Cs și <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> (kBq m<sup>-2</sup>) pentru Linia transversală 2;

Corelații Pearson pozitive semnificative s-au găsit între inventariile <sup>137</sup>Cs și <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> (r = 0.76, p = 0.002), și între conținutul mediu de nisip (cu diametru între 0.25 mm și 0.5 mm) și inventariile <sup>137</sup>Cs (r = 0.71, p = 0.004) și <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> (r = 0.62, p = 0.019), reflectând un inventar crescut al radionuclizilor în zonele de acumulare, unde predomină textura grosieră.

Convertirea inventariilor <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> și <sup>137</sup>Cs în rate de redistribuție a solului (t ha<sup>-1</sup> an<sup>-1</sup>) s-a realizat cu ajutorul a două modele radiometrice pentru terenuri cultivate, și anume Mass Balance Model 2 (MBM2) și Mass Balance Model 3 (MBM3) pentru <sup>137</sup>Cs și pentru <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> Mass Balance Model (MBM) and Mass Balance Model with Tillage (MBMT) (*Zapata, 2002*).

Tabelul 1. Parametrii utilizați în modelele radiometrice de conversie

Parametrii	Linia 1	Linia 2
Densitatea (kg m <sup>-3</sup> )	1570	1623
Factorul pentru mărimea particulei, P	1.258 - 2.108	0.737 - 2.391
Factorul pentru mărimea particulei, P'	0.366 - 0.854	0.469 - 0.832
Inventarul de referință al <sup>137</sup> Cs (Bq m <sup>-2</sup> )	5460	5460
Inventarul de referință al <sup>210</sup> Pb <sub>ex</sub> (Bq m <sup>-2</sup> )	9640	9640
Factorul de proporționalitate	0.7	0.7
Adâncimea de relaxare (kg m <sup>-2</sup> )	4	4
Anul prelevării probelor (an)	2011	2011
Adâncimea arăturii (kg m <sup>-2</sup> )	314	324.6
Constanta arăturii (kg m <sup>-2</sup> yr <sup>-1</sup> )	258.6	363.6

Metoda <sup>137</sup>Cs ne dă o estimare a proceselor de redistribuție a solului pentru ultimii 25 ani, considerând contribuția mare a depunerilor de la Chernobyl (~73%) în această zonă. Schimbările radicale în practicile agricole din România, la începutul anilor 1990, au făcut ca parcelele din zona de studiu să fie arate de-a lungul pantei, rezultând în reducerea eroziunii. Rezultatele obținute prin aplicarea celor două modele pentru <sup>137</sup>Cs sunt comparabile. Valorile mari ale ratelor de eroziune determinate prin metoda <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> reflectă bine practicile arăturii de sus în jos din perioada CAP-ului, începând cu sfârșitul anilor 1950. Ratele nete de eroziune rezultate din măsurătorile <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> pentru ambele linii transversale demonstrează un risc de eroziune în suprafață de la moderat la mare pentru ultimii ~ 60 ani.

Aplicarea combinată a măsurătorilor de <sup>137</sup>Cs și <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> reprezintă prima încercare de a cuantifica schimbările în magnitudinea eroziunii solurilor în România. Estimările pe termen lung ale <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> au relevat un risc de eroziune a solului de la moderat la mare, datorat în mare măsură practicilor improprii de cultivare a solului de sus în jos în timpul existenței CAP-ului, cuprinzând o perioadă totală de 30 ani (1959 - 1991). O dată cu schimbările sistemului de cultivare (de-a lungul pantei) la începutul anilor 1990, riscul de eroziune a scăzut și ratele de redistribuție a solului pe termen mediu furnizate de metoda cesiului arată preponderența unui proces de sedimentare în teren. Studiul a evidențiat foarte bine influența practicilor de cultivare asupra proceselor de eroziune a solului prin utilizarea combinată a celor doi radiotrasori, având origini distincte și timpi de înjumătățire diferiți. Rezultatele demonstrează o relație strânsă între inventariile măsurate ale <sup>137</sup>Cs și <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> și ratele de redistribuție ale solului derivate din ambele metode radiometrice.

# Capitolul 5. Incertitudinile legate de parametrii de intrare în modelul radiometric al ratelor de redistribuție a solului: Cazul solurilor nedisturbate

Deși radiotrasorii au fost utilizați la estimarea redistribuției solului începând cu anii 1960, există încă nevoia de informații și îndrumare în determinarea cu precizie a unor parametrii de intrare pentru modelele radiometrice ale redistribuției solului. Acesta este în special cazul când o eliberare nucleară accidentală are o contribuție majoră asupra inventarului total al <sup>137</sup>Cs în sol, conducând la surse de incertitudine demne de atenție în evaluarea radiometrică a eroziunii și sedimentării. Obiectivele prezentei cercetări sunt:

(i) aplicarea ecuației difuziei și convecției pentru profilul <sup>137</sup>Cs în sol, într-o zonă de referință, utilizând metoda celor mai mici pătrate pentru determinarea coeficientului de difuzie și a vitezei de convecție a cesiului de la Chernobyl, precum și a cesiului provenit din testele nucleare;

(ii) evidențierea impactului parametrilor de intrare (ex. inventarul mediu de referință, contribuția depunerilor de la Chernobyl, coeficientul de difuzie, D și viteza de convecție, v pentru <sup>137</sup>Cs în sol, factorul de corecție pentru mărimea particulelor) utilizați în aplicarea Modelului Difuziei și Migrației (DMM) pentru terenuri necultivate;

(iii) estimarea ratelor de eroziune și sedimentare pentru pășunile din România utilizând <sup>137</sup>Cs.

Probele de sol au fost colectate dintr-o pășune degradată din județul Cluj, bazinul Someșului, localizată la extremitatea vestică a Câmpiei Transilvaniei (N46°52', E23°45'). Acest teren înierbat

are o topografie complexă, cu taluzuri proeminente și o pantă medie de 10%. Două campanii de colectare a probelor au fost întreprinse în noiembrie 2010 și în iulie 2011. Douăsprezece profile de sol au fost prelevate până la adâncimea de 40 cm, de-a lungul a două linii transversale paralele. Pentru stabilirea valorii medii de referință a inventarului <sup>137</sup>Cs, s-au considerat aleator 5 puncte de prelevare (unul incremental și 4 în întregime, fiecare însumând 3 profile alăturate) într- o terasă înierbată neperturbată, situată la aproximativ 500 m vest de zona de studiu. Doi detectori Ortec HPGe, unul de tip 'N'și unul de tip 'P', cu eficiențe relative de 34% și respectiv 30%, au fost utilizați pentru analizele gama. Câteva proprietăți fizico-chimice ale solului s-au determinat prin analiza unor probe suplimentare, corespunzătoare fiecărui profil, cum ar fi: textura, pH, potențial de oxido-reducere (ORP), conductivitate electrică (EC), total solide dizolvate (TDS), conținutul de apă (%), densitatea (g cm<sup>-3</sup>) și conținutul de humus (%).

Modelul difuziei și convecției s-a fitat pe datele experimentale pentru a descrie comportarea și distribuția <sup>137</sup>Cs în sol ca urmare a celor două contaminări radioactive apărute mai întâi în 1963, iar apoi în 1986. Inventarul <sup>137</sup>Cs pentru zona investigată s-a aproximat pe baza modelului lui *Sarmiento și Gwinn (1986)*. Un inventar de 766 Bq m<sup>-2</sup> a rezultat pentru cesiul provenit din testele nucleare, la momentul prelevării probelor. Diferența dintre conținutul total măsurat al <sup>137</sup>Cs în profilul de sol incremental și cel provenit din testele nucleare reprezintă cesiul derivat în urma accidentului de la Chernobyl, atingând 1823 Bq m<sup>-2</sup>. Variația acestor parametrii a fost limitată la un maxim de 5% în aplicarea procedurii celor mai mici pătrate. În urma fitării datelor experimentale, valorile coeficientului de difuzie (D) și al vitezei de convecție (v), respectiv v<sub>2</sub> = 0.350 cm an<sup>-1</sup> și D<sub>2</sub> = 0.321 cm<sup>2</sup> an<sup>-1</sup>, s-au obținut pentru migrația în adâncime a cesiului provenit din testele nucleare, iar v<sub>1</sub> = 0.097 cm an<sup>-1</sup> și D<sub>1</sub> = 0.15 cm<sup>2</sup> an<sup>-1</sup> pentru distribuția în sol a cesiului de la Chernobyl. Migrația verticală a <sup>137</sup>Cs cu două origini distincte apare a fi diferită. După cum s-a evidențiat în Figura 3, maximul inferior al profilului <sup>137</sup>Cs care apare la 15-20 cm, indică o dispersie longitudinală mai largă a radionuclidului provenit din testele nucleare, în timp ce maximul asociat depunerii de la Chernobyl a fost identificat la 2.5-5 cm de suprafața solului.



**Figura 3.** Distribuția experimentală a <sup>137</sup>Cs cu adâncimea în zona de referință, curbele de fitare ale cesiului de la Chernobyl și a celui provenit din testele nucleare

Cele două linii transversale (T1 și T2) din zona de studiu nu prezintă caracteristici similare ale inventariilor cesiului pe lungimea pantei (Figura 4). Diferența se datorează în mare măsură topografiei terenului, cu taluzuri și povârnișuri evidente în partea de NE a terenului (T1).



Figura 4. a) Inventariile <sup>137</sup>Cs (kBq m<sup>-2</sup>) pentru T1; b) Inventariile <sup>137</sup>Cs (kBq m<sup>-2</sup>) pentru T2.

Inventarul mediu de referință al <sup>137</sup>Cs, corespunzător celor 5 profile combinate de sol, s-a determinat de către *Iurian et al. (2012)* la 3160  $\pm$  867 Bq m<sup>-2</sup> (inventarul  $\pm$  deviația standard, 2 $\sigma$  interval de încredere), având un coeficient de variație (CV) de 27%.

Parametrii cheie necesari aplicării modelului radiometric DMM sunt: (i) inventarul de referință (Bq m<sup>-2</sup>), (ii) viteza de convecție, v (kg m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup>) și coeficientul de difuzie, D (kg<sup>2</sup> m<sup>-4</sup> an<sup>-1</sup>), (iii) contribuția cesiului de la Chernobyl (%) în totalul inventarului <sup>137</sup>Cs în zona studiată, (iv) factorii de corecție pentru mărimea particulelor (P și P'), și (v) adâncimea de relaxare (H), pentru care, în cazul terenurilor neperturbate, se consideră o valoare de intrare de 5 kg m<sup>-2</sup> (*Walling et al., 2002*). Acești parametrii s-au determinat utilizând date experimentale, cu excepția parametrului H, care este dificil de determinat experimental deoarece în prezent fluxul <sup>137</sup>Cs in atmosferă este neglijabil, fiind imposibil de reprodus condițiile perioadei căderilor radioactive maxime. Datorită preponderenței <sup>137</sup>Cs de la Chernobyl în zona studiată, relativ la <sup>137</sup>Cs derivat în urma testelor nucleare (raportul dintre <sup>137</sup>Cs de la Chernobyl și cel provenit în urma modelării <sup>137</sup>Cs prezintă estimări ale mediei anuale a ratelor de redistribuție a solului pentru o perioadă cuprinsă între 1986 și 2010 (2010 fiind anul prelevării probelor).

Tabelul 2. Lista parametrilor utilizați în modelul radiometric de conversie (DMM)

Parametru	Valoare
Inventariile <sup>137</sup> Cs (Bq m <sup>-2</sup> )	1157 - 4629
Factorul de corecție pentru mărimea particulelor, P	1.01 - 1.67
Factorul de corecție pentru mărimea particulelor, P'	0.33 - 0.76
Inventarul de referință al <sup>137</sup> Cs (Bq m <sup>-2</sup> )	3160
Adâncimea de relaxare, H (kg m <sup>-2</sup> )	5
Anul prelevării probelor (an)	2010
Contribuția cesiului de la Chernobyl (%)	72%
Coeficientul de difuzie, D $(kg^2 m^{-4} yr^{-1})$	28.2
Viteza de convecție, v (kg $m^{-2} yr^{-1}$ )	2.012

Estimarea ratelor de redistribuție a solului	Valoare
Rata brută de eroziune (t ha <sup>-1</sup> an <sup>-1</sup> )	-12.2
Rata medie de eroziune în zonele erodate (t ha <sup>-1</sup> an <sup>-1</sup> )	-16.2
Rata medie de sedimentare în zonele cu depunere (t ha <sup>-1</sup> an <sup>-1</sup> )	4.2
Rata netă de eroziune (t $ha^{-1} an^{-1}$ )	-6.6
Rata de transport a sedimentelor (%)	54%

Tabelul 3. Estimarea ratelor de redistribuție a solului

Autoarea a demonstrat că neglijând contribuția unuia dintre acești parametrii, rezultatele finale pot fi supraestimate sau subestimate semnificativ (Figura 5).



**Figura 5.** Analiza de senzitivitate a parametrilor de intrare pentru modelul radiometric de redistribuție a solului DMM (valorile negative ale ratelor de redistribuție a solului reprezintă eroziunea netă și valorile pozitive sedimentarea netă)

Modelul românesc pentru eroziunea solurilor, ROMSEM (*Moțoc et al., 1979*) furnizează estimări ale ratelor de eroziune hidrică (t ha<sup>-1</sup> an<sup>-1</sup>) pe baza: datelor de precipitații, a informațiilor despre utilizarea terenului, a observațiilor în teren și a datelor topografice. Valoarea ratei de eroziune calculată de ROMSEM de -4.17 t ha<sup>-1</sup> an<sup>-1</sup> este comparabilă cu rata eroziunii nete pe termen mediu obținută cu ajutorul modelului radiometric DMM.

În general solurile din zona investigată au o textură fină, dar s-a putut face și o diferențiere între cele două linii transversale. Conținutul de humus din probele de sol colectate din zona Jucu a variat între scăzut (aproximativ 2%) și ridicat (aproximativ 5%), prezentând valori mai mici pentru a doua line transversală, unde și procesele de eroziune sunt apreciabile. Coeficienții de corelație Pearson între inventariile totale ale <sup>137</sup>Cs (0-40 cm) și diferiți parametrii fizico-chimici măsurați în 12 probe de sol s-au determinat utilizând programul statistic GraphPad Prism 6 și au

arătat că inventarul <sup>137</sup>Cs este corelat pozitiv semnificativ (la un nivel de 0,05) cu conținutul de humus (r = 0.63) și cu ORP-ul (r = 0.59), dar corelat negativ (r = -0.60) cu pH-ul.

Prin aplicarea ecuației difuziei-convecției pentru profilul vertical al <sup>137</sup>Cs în zona de referință, rezultatele experimentale au fost bine fitate. Estimarea cantității de <sup>137</sup>Cs provenit din testele nucleare s-a realizat în funcție de regimul precipitațiilor și locația geografică a zonei de studiu. Astfel, contribuția cesiului de la Chernobyl în zona de referință s-a determinat la 72% din totalul inventarului <sup>137</sup>Cs. Coeficientul de difuzie și viteza de convecție a <sup>137</sup>Cs pentru solul neperturbat au fost derivate statistic, atât pentru cesiul de la Chernobyl, cât și pentru cel provenit din testele nucleare, utilizând ecuația convecției-difuziei. Estimarea ratei nete de eroziune a solului pentru pășunea din România s-a obținut utilizând modelul DMM pentru <sup>137</sup>Cs și are o valoare de -6.6 t ha<sup>-1</sup> an<sup>-1</sup>, comparabilă cu rata eroziunii solului derivată cu ajutorul ROMSEM.

După cum s-a evidențiat în acest studiu, modelul radiometric DMM este foarte sensibil la diferiți parametrii de intrare și o atenție specială este necesară în estimarea acestora. Ratele de eroziune estimate sunt corelate pozitiv cu D, v și contribuția cesiului de la Chernobyl, dar invers corelate cu factorii de corecție ai mărimii particulelor. După cum sugerează rezultatele prezentei cercetări, integrarea în cadrul modelelor de conversie a unei modalități de estimare a impactului incertitudinilor cauzate de parametrii modelului radiometric ar fi o realizare importantă. Ar trebui stabilite intervale de încredere pentru o estimare fiabilă a ratelor de redistribuție a solului, iar limitele superioare și inferioare integrate în modelele de conversie.

### Capitolul 6. Distribuția spațială a <sup>7</sup>Be în soluri după ploi abundente

Întregul experiment și măsurătorile gama a probelor de sol s-au realizat de către autoare la *IAEA Soil and Water Management & Crop Nutrition Laboratory* din Seibersdorf, Austria, pe durata unui stagiu de cercetare de 4 luni, perioadă în care d-ra Andra-Rada Iurian a lucrat sub supravegherea d-lui Long Nguyen, a d-lui Gerd Dercon și a d-lui Joseph Adu-Gyamfi

Distribuția spațială uniformă a <sup>7</sup>Be pre-existent și a celui asociat cu un interval de precipitații reprezintă presupuneri cheie în studiul eroziunii solurilor. Ca urmare a numărului limitat de probe care trebuie măsurate într-un timp relativ scurt datorită dezintegrării rapide a beriliului-7, aceste presupuneri nu sunt verificate pentru zona de referință. Obiectivul prezentei cercetări îl constituie estimarea variabilității spațiale a <sup>7</sup>Be după două evenimente consecutive cu precipitații abundente pentru o parcelă aparținând terenului experimental din Seibersdorf.

Terenul propus investigației și care urmează a fi validat ca și zonă de referință este localizat într-o zonă plană, fără vegetație și neperturbată de la ultima arătură din toamna anului 2011. Zona de studiu este situată la 45 km sud de Viena (N47°58'; E16°30'), Austria Inferioară, pe terenul experimental al Laboratoarelor AIEA din Seibersdorf. După o perioadă extinsă cu ploi de mică intensitate, fără a avea o influență erozivă evidentă asupra solului, la sfârșitul lunii iulie 2012 au apărut două furtuni consecutive care au produs precipitații totale de 81 mm în 6 zile. Considerând caracteristicile regionale și sinoptice precizate de *Seibert et al. (2007),* care pot să conducă la apariția unor ploi abundente în Austria, și știind că mari cantități de precipitații de

33.6 mm s-au acumulat în 12 ore în 20-21 iulie și respectiv 28.2 mm în 3 ore în 25 iulie, aceste evenimente pot fi considerate precipitații abundente.



**Figura 6.** (a) Precipitațiile zilnice (mm  $zi^{-1}$ ) pentru zona studiată în perioada ianuarie 2010 – iulie 2012, și (b) precipitațiile orale pentru perioada cu intențități maxime ale precipitațiilor

Pentru a cuprinde tot <sup>7</sup>Be detectabil, profilele de sol s-au colectat până la adâncimea de 40 mm. Toate profilele s-au prelevat utilizând Fine Soil Increment Collector (FSIC), construit și testat de către Laboratoarele AIEA din Seibersdorf (*Mabit et al., 2013*).



**Figura 7.** Profil de sol în interiorul tubului de inox al FSIC: (a) în timpul prelevării probei, și (b) în timpul răzuirii incrementale

Zece profile de sol au fost colectate din zona studiată. Un profil incremental s-a răzuit în straturi de 2,5 mm, iar celelalte profile au fost secționate în straturi de 20 mm pentru a evita diluarea <sup>7</sup>Be în întreaga masă de sol. Analizele gama-spectrometrice s-au realizat cu ajutorul unui detector Ortec HPGe, cu eficiență relativă de 110%. Distribuția verticală a <sup>7</sup>Be în solul din Seibersdorf prezintă o descreștere exponențială până la adâncimea de 25 mm (Figura 8), având activitatea maximă (13.7 Bq kg<sup>-1</sup>) în stratul de la suprafață (primii 2,5 mm). Adâncimea masică de relaxare (h<sub>0</sub>) pentru zona investigată s-a obținut prin fitarea ecuației exponențiale din Figura 8 și are o valoare de 6,9 kg m<sup>-2</sup>. Pentru cele 10 puncte distincte din zona selectată s-a determinat un inventar mediu de 312 Bq m<sup>2</sup>. Această valoare medie corespunde unei cantități totale de

precipitații de 295 mm în ultimele 5 luni anterioare prelevării probelor, reprezentând timpul necesar activității maxime a <sup>7</sup>Be de la suprafața solului să se dezintegreze până la valoarea activității minime detectabile (MDA).



**Figura 8.** Distribuția verticală a <sup>7</sup>Be în sol. Barele de eroare reprezintă incertitudinile relative combinate, la un nivel de încredere de 95%.

Identificarea profilului de sol	Inventarul <sup>7</sup> Be (Bq m <sup>-2</sup> )	Eroarea standard combinată (Bq m <sup>-2</sup> )	
P1	227	84	
P2	302	45	
P3	280	47	
P4	329	51	
P5	232	50	
P6	332	70	
P7	294	60	
P8	392	81	
P9	334	50	
P10	401	73	
Media aritmetică (Bq m <sup>-2</sup> )	312		
Deviația standard (STD)		58	
Coeficientul de variatie (CV%)		19%	

**Tabelul 4.** Inventariile <sup>7</sup>Be (Bq m<sup>-2</sup>) pentru punctele de prelevare și statistica

Coeficientul de variație rezultat are o valoare acceptabilă de 19% pentru un teren plan neperturbat, care nu prezintă semne ale redistribuției solului după apariția ploilor abundente. Astfel terenul experimental din Seibersdorf poate fi considerat a fi o zonă de referință potrivită pentru noi investigații în eroziunea solurilor cu ajutorul <sup>7</sup>Be.

Utilizarea <sup>7</sup>Be în dinamica solurilor și a sedimentelor este încă în fază incipientă, fiind necesare cercetări viitoare pentru explorarea în întregime a acestui potențial. Studiul de față

prezintă rezultate preliminarii asupra variabilitaății spațiale a <sup>7</sup>Be în sol, în scopul validării unei caracteristici cheie privind comportarea radiotrasorului, și care trebuie luată în considerare când îl utilizăm ca și trasor al dinamicii solului. Coeficientul de variație de 19% obținut pentru o parcelă mică, arată un grad de variabilitate acceptabil, demonstrând totodată oportunitatea selectării terenului experimental ca și zonă de referință pentru viitoare cercetări în redistribuția solului. Cu toate acestea, există nevoia unei înțelegeri mai aprofundate a fluxului depozițional al <sup>7</sup>Be în zonă și al asigurării validării tuturor presupunerilor corelate cu utilizarea <sup>7</sup>Be în studii de redistribuție a solului pentru terenuri mai extinse.

#### Capitolul 7. Probleme specifice spectrometriei gama

#### Validarea măsurătorilor prin intercomparare

Performanta analitică a procedurilor actuale implicate în măsurătorile gama din cadrul laboratorului facultății nu a fost evaluată extern prin participare la teste internaționale de competentă sau prin exercitii de intercomparare. Cu toate acestea, în 2007 s-au făcut eforturi pentru validarea metodologiilor incipiente aplicate în măsurătorile gama (Timar et al., 2007). Astfel, autoarea -a initiat si condus un exercitiu de intercomparare între laboratoare radiologice internaționale, cu un interes specific pentru câțiva radionuclizi naturali și <sup>137</sup>Cs artificial în probe de sol, în scopul validării acurateței măsurătorilor gama realizate de laboratorul facultății, ca și procedură externă de validare. Două laboratoare din Ungaria (Central Radiological Laboratory, Hungarian Agricultural Authority, Budapest si Institute of Radiochemistry and Radioecology, University of Pannonia, Veszprem) si un laborator radiometric din Austria (Division of Physics and Biophysics, Department of Materials Research and Physics, University of Salzburg) au fost implicate în această intercomparare. În plus, probele au fost măsurate și în cadrul International Atomic Energy Agency (IAEA), Terrestrial Environment Laboratory from Seibersdorf în perioada stagiului de cercetare efectuat de d-ra Andra-Rada Iurian. Trei tipuri de măsurători s-au realizat în cadrul Laboratoarelor AIEA pentru acest exercițiu de intercomparare: (i) două seturi de măsurători gama în geometrii diferite (cilindrică, B87 si disc, B5), si (ii) analize alfa- si betaspectrometrice ca metode alternative pentru determinarea <sup>226</sup>Ra si <sup>210</sup>Pb.

Obiectivele acestui exercițiu de intercomparare sunt: (i) verificarea acurateței rezultatelor analitice prezentate de către laboratorul FSIM din Cluj-Napoca și utilizate de către autoare la estimarea ratelor de eroziune în Câmpia Transilvaniei, (ii) identificarea unor acțiuni de remedire pentru procedura gama utilizată de către laboratorul facultății, acolo se vor detecta probleme în performanța măsurătorilor, (iii) verificarea comparativă a rezultatelor măsurătorilor prezentate de fiecare laborator participant, și (iv) identificarea celei mai potrivite tehnici analitice pentru dterminarea radionuclizilor de interes în probe de sol.

Probele implicate în intercomparare au conținut sol neperturbat din curtea unei case vechi din zona Mureş (România), și reprezintă un întreg profil de sol, până la 40 cm, cu straturi de 5 cm, utilizat ca și profil de referință într-un studiu pentru estimarea eroziunii solului (*Iurian et al., 2013*). Solul a fost uscat la aer și apoi în etuvă 24 ore la 105<sup>o</sup>C. După ce s-a mărunțit manual și s-a trecut prin sită la 1 mm, probele au fost închise în cutii de plastic (numite geometrii disc B5)

cu diametrul extern de 72.9 mm, grosimea peretelui și a fundului cutiei de 1.16 mm și înălțime de 14 mm, sigilate cu bandă electrică și păstrate minim 3 săptămâni pentru atingerea echilibrului între <sup>226</sup>Ra, <sup>222</sup>Rn și urmașii acestora. Opt probe de sol au circulat între laboratoarele participante pentru determinarea activității <sup>137</sup>Cs, <sup>226</sup>Ra, <sup>210</sup>Pb, <sup>40</sup>K și <sup>228</sup>Ac (Bq kg<sup>-1</sup>, sol uscat) utilizând metodele folosite în analizele de rutină ale fiecărui laborator, în principal spectrometria gama.

Doi detectori Ortec HPGe sunt în prezent utilizați în cadrul Laboratorului de spectrometrie alfa și gama din Cluj-Napoca: (i) un detector coaxial Ortec de tip "P" (GEM30P4) cu fereastră de Al, eficiență relativă 30% și rezoluție de 1.85 keV pentru linia <sup>60</sup>Co la 1.33 MeV, și (ii) un detector coaxial Ortec de tip "N" (GMX30P4-ST) cu fereastră de Be, eficiență relativă 34% și rezoluție de 1.92 keV pentru linia <sup>60</sup>Co la 1.33 MeV. Instalațiile gama-spectrometrice încorporează și o protecție pasivă pentru fond (turn din plumb vechi de 8 cm grosime, cu un scut suplimentar de Cu în interiorul turnului, de 3 mm). Măsurătorile gama realizate în cadrul laboratorului facultății utilizează metoda calibrării directe și materiale de referință certificate cu activitate cunoscută (IAEA-375, IAEA-312, IAEA-447). Dezavantajul metodei este că numai radionuclizii prezenți în materialul de referință pot fi măsurați. Corecții s-au făcut pentru fond și pentru dezintegrare la data prelevării probelor (1 octombrie 2011). O corecție suplimentară de absorbție în probă s-a realizat pentru <sup>210</sup>Pb utilizând o tehnică experimentală. Procedura internă de validare a rezultatelor a utilizat două abordări diferite: (1) măsurători repetate a unor probe de sol, folosind aceeași metodă de calibrare directă și aceeași sursă de referință, și (2) măsurători ale unor materiale de referință secundare, având geometrie și compoziție similară.

Metoda experimentală utilizată pentru corecția absorbției în probă a energiei gama joase a <sup>210</sup>Pb se bazează pe procedura transmisiei propusă inițial de *Cutshall et al. (1983)* și modificată de *Khater and Ebaid (2008)*. Factorul de absorbție utilizat în determinarea activității <sup>210</sup>Pb raportat la materialul de referință IAEA-447, este dat ca și raportul dintre rata transmisiei relative pentru IAEA-447 și factorul relativ de transmisie pentru fiecare probă de sol. Neglijând efectul absorbției în probă pentru energia gama joasă a <sup>210</sup>Pb, activitatea acestuia în probele de sol din Zau ar fi subestimată cu 16,5%.

Măsurătorile gama pentru cele 8 probe de sol implicate in intercomparare s-au realizat de către autoare la *IAEA Terrestrial Environment Laboratory* din Seibersdorf, Austria, în perioada unui stagiu de cercetare de 3 luni, în care d-ra Andra-Rada Iurian a lucrat sub supravegherea d-nei Dr. Alessia Ceccatelli. Activitatea radionuclizilor naturali (<sup>210</sup>Pb, <sup>226</sup>Ra, <sup>228</sup>Ac, <sup>40</sup>K, <sup>235</sup>U) și a <sup>137</sup>Cs artificial în probele de sol s-a determinat utilizând doi detectori Canberra, anume BE5030P și BE2825, cu fereastră de carbon, ecranați cu 15 cm plumb. Ambii detectori au fost calibrați în eficiență cu o sursă radioactivă volumetrică conținând radionuclizi micști în geometrie cilindrică, B87 (diametru interior 55,91 mm, grosimea peretelui 1,34 mm, grosimea fundului 1.82 mm), cu densitatea de 0.985 g cm<sup>-3</sup>, certificată de Czech Metrology Institute. Pentru validarea internă a măsurătorilor s-a utilizat materialul de referință IAEA-447.

Pentru a lua în considerare efectul geometriei în determinarea activității probei pentru un anumit radionuclid, probele de sol au fost măsurate atât în geometria originală, B5, cât și în geometria B87. Comparând cele două seturi de măsurători, diferențe mari au fost evidențiate în

cazul <sup>226</sup>Ra datorită corecției puternice pentru energia de interferență a <sup>235</sup>U și a incertitudinii statistice mari care a însoțit determinarea activității <sup>235</sup>U prin spectrometrie gama.

S-au raportat și activitățile radionuclizilor rezultate din utilizarea eficiențelor derivate automat cu ajutorul programului LabSOCS, în scopul evaluarii diferențelor între determinarea automată și manuală a eficienței la diferite energii. Diferența relativă (%) dintre activitatea fiecărui radionuclid calculată cu ajutorul eficienței experimentale și activitatea obținută cu ajutorul eficienței derivată din aplicarea LabSOCS, s-a încadrat între -14% (pentru <sup>40</sup>K măsurat cu detectorul BE2825) și 12% (pentru <sup>210</sup>Pb), pentru toate probele și pentru fiecare geometrie selectată (B87 și B5).

Corecții de dezintegrare s-au aplicat raportat la data de referință din Certificat pentru soluția standard multigama în cadrul procedurii de calibrare în eficiență, și pentru probele de sol cu data prelevării acestora (1 octombrie 2011). S-au considerat și corecții pentru geometrie și pentru atenuare în probă, corecții pentru efectul de coincidență, atât pentru soluția standard, cât și pentru probe, corecții de fond și corecții ale radionuclizilor de interferență.

Compoziția elementală și coeficienții de atenuare masică ai solului utilizat pentru intercomparare sunt necesare pentru calcularea factorilor de corecție aplicați în determinarea activității radionuclizilor. Programul XCOM (*Berger and Hubbell, 1987*) s-a utilizat pentru calcularea coeficienților de atenuare pentru probele de sol din Zau. Evaluarea compoziției matricii de sol s-a realizat prin spectrometrie de fluorescență cu raze-X, utilizând presa X-Press 3635 și spectrometrul EDXRF (Spectro XLab 2000) din cadrul *IAEA Physics Section Laboratory, NA Division of Physical and Chemical Sciences* din Seibersdorf, în perioada stagiului de cercetare efectuat de d-ra Andra-Rada Iurian.

Conținutul de <sup>210</sup>Pb și <sup>226</sup>Ra din probele de sol s-a evaluat și prin metoda scintilatorului lichid (LSC) și prin spectrometrie alfa, ca tehnici alternative spectrometriei gama. Aceste măsurători sau realizat de către autoare în cadrul *IAEA Terrestrial Environment Laboratory* din Seibersdorf, în perioada unui stagiu de cercetare de trei luni, lucrând sub supravegherea d-lui Dr. Kis-Benedek Gyula.

Metoda prezentată aici este aplicată în practica laboratorului de separări radiochimice *IAEA Terrestrial Environmental Laboratory (Shakhashiro et al., 2012; IAEA, 2010)* și se bazează pe o simplă și eficientă separare simultană a Pb și Ra de Ba (*Sill, 1987; Vajda et al. 1997*). După finalizarea procedurii, <sup>226</sup>Ra este determinat prin spectrometrie alfa și diluție izotopică, iar <sup>210</sup>Pb prin metoda scintilatorului lichid. Rășina Sr Spec a fost selectată pentru separarea simultană a plumbului și a radiului. În cazul plumbului, factorul de recuperare s-a verificat gravimetric, utilizând Pb<sup>2+</sup> inactiv sub forma soluției de Pb(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, în timp ce pentru analiza <sup>226</sup>Ra, s-a utilizat <sup>225</sup>Ra (fiica <sup>229</sup>Th-ului). Determinarea procentului de recuperare chimică a fost posibilă prin intermediul <sup>217</sup>At la energia de 7.07 MeV, utilizând ecuațiile dezintegrării, deoarece <sup>217</sup>At nu prezintă interferențe cu alți radionuclizi cu emisii alfa (*Jia et al., 2006, 2007*).

Pentru fiecare dintre cele patru probe de sol implicate în determinările radiochimice s-au preparat câte două subprobe, împreună cu un material de referință certificat de AIEA (IAEA-447) în scopul asigurării calității măsurătorilor, și o probă goală pentru verificarea fondului.

Sistemul alfa-spectrometric (Ortec OCTETE, cu detectori PIPS) și programul Genie 2000 s-au utilizat pentru determinarea activității radiului în probele de sol. Activitatea <sup>225</sup>Ac a atins un maxim după 17,4 zile, crescând la un maxim de 44% din activitatea inițială a trasorului <sup>225</sup>Ra.



**Figura 9.** Spectrul alfa al radiului într-o probă de sol utilizând trasorul <sup>225</sup>Ra și înregistrat: (a) 3,7-8 zile după separarea Ra/Th; (b) măsurat din nou după aproximativ 17 zile de la separare

Analizele beta-spectrometrice ale surselor de <sup>210</sup>Pb s-au realizat cu ajutorul scintilatorului lichid Wallac Quantulus 1220. Trei măsurători consecutive (200 minute / măsurătoare) s-au efectuat pentru probe și fond utilizând metoda ferestrei duble. Această metodă permite corectarea contribuției <sup>210</sup>Bi din întreaga regiune a <sup>210</sup>Pb (Figura 10).



Figura 10. Spectrul beta al <sup>210</sup>Pb cu selectarea ferestrei duble

Rezultatele raportate de cele 5 laboratoare radiometrice internaționale pentru activitățile <sup>137</sup>Cs, <sup>210</sup>Pb, <sup>226</sup>Ra, <sup>40</sup>K și <sup>228</sup>Ac în opt probe de sol s-au evaluat pentru intercomparare. Fiecare laborator participant a prezentat valori ale măsurătorilor gama-spectrometrice pentru aceleași

probe de sol în geometria B5, dar utilizând metode diferite pentru calibrarea detectorilor gama în eficiență. Datele tuturor participanților au fost mai întâi evaluate în funcție de diferența relativă între valoarea analistului și valoarea de referință, exprimată ca și procent. Deoarece nu au existat valori desemnate inițial pentru activitatea radionuclizilor din probele implicate în acest exercițiu de intercomparare, valorile de referință s-au calculat pentru fiecare radionuclid în fiecare probă de sol ca și media aritmetică a tuturor valorilor activităților raportate. Diferența relativă maximă acceptată (MARB) s-a stabilit la 25% pentru toți radionuclizii în toate probele.

Figurile 11 prezintă rezultatele finale ale laboratoarelor ca și diferență relativă (%) raportată la valorile medii de referință propuse pentru radionuclizii de interes în toate probele de sol. Denumirea laboratoarelor s-a codificat cu numere arabe, iar diferitele tehnici de măsurare utilizate în cadrul AIEA au fost codificate suplimentar cu litere mari: codul 5A pentru rezultatele gama în geometria disc (B5), codul 5B pentru datele gama în geometria cilindrică (B87) și codul 5C pentru determinările alfa- și beta-spectrometrice. Laboratorul din Cluj-Napoca a primit codul 1. După cum se poate observa, cele mai puțin problematice determinări au fost acelea ale <sup>228</sup>Ac și <sup>40</sup>K. În cazul <sup>137</sup>Cs, valorile raportate au arătat o diferență relativă mai mare pentru probele cu activități mai mici. <sup>210</sup>Pb nu a fost atât de problematic pe cât se aștepta datorită dificultăților legate de corecția efectului de atenuare în probă la energii mici. Un singur laborator a prezentat o discordanță sistematică în comparație cu valorile medii propuse, ca urmare a omiterii corecției de absorbție în probă în determinarea activității.





**Figura 11.** Rezultatele individuale pentru fiecare probă măsurată de fiecare laborator, date ca și diferență relativă în raport cu valoarea medie de referință pentru (a) <sup>137</sup>Cs, (b) <sup>210</sup>Pb, (c) <sup>226</sup>Ra, (d) <sup>40</sup>K, (e) <sup>228</sup>Ac. MARB-ul stabilit este reprezentat cu linie punctată.

Cele mai problematice rezultate în urma intercomparării au fost în cazul determinării <sup>226</sup>Ra. Doar 68% dintre valorile raportate s-au încadrat în procentul MARB. Cu toate acestea, rezultate de succes s-au obținut de către primele două laboratoare și de către AIEA pentru geometria B87. Unul dintre laboratoare nu a raportat nici o valoare pentru radiu. Totuși, cele mai consistente rezultate raportate pentru <sup>210</sup>Pb și <sup>226</sup>Ra au fost cele derivate din spectrometria alfa și metoda scintilatorului lichid.

Scorul-Z individual al laboratorului facultății s-a calculat pentru fiecare radionuclid cu scopul estimării performanței laboratorului din Cluj-Napoca în termeni de acuratețe. Această procedură a fost acceptată ca și standard pentru ISO/IUPAC (*ISO*, *1997*). Deviația standard țintă s-a stabilit la o valoare fixă de 10%. Performața scorului-Z a laboratorului este prezentată în Figura 12, pentru fiecare radionuclid considerat. Liniile punctate reprezintă limitele de performanță acceptabile și îndoielnice.



Figura 12. Evaluarea scorului-Z pentru laboratorul din Cluj-Napoca

Măsurătorile realizate de către laboratorul facultății prezintă în general rezultate acceptabile pentru acuratețe. Dintre toate datele raportate, 34 rezultate (92%) au fost acceptabile ( $Z \le 2$ ), 2 rezultate au fost îndoielnice și un rezultat neacceptabil. Rezultatele obținute pentru <sup>137</sup>Cs, <sup>210</sup>Pb și <sup>226</sup>Ra validează măsurătorile gama-spectrometrice ale probelor de sol, realizate cu scopul modelării radiometrice a eroziunii solului.

Cumulând toate datele, doar 13% din totalul de 206 rezultate evaluate s-au situat în afara diferenței relative maxime acceptate de 25%. <sup>40</sup>K și <sup>228</sup>Ac au prezentat diferențe foarte mici raportat la valoarea medie de referință, în timp ce discrepanțe mai mari au fost identificate în cazul <sup>226</sup>Ra, datorită numeroaselor incertitudini legate de determinarea cu acuratețe a acestuia prin spectrometrie gama. Cu toate acestea, rezultate satisfăcătoare pot fi obținute pentru toți radionuclizii, cu condiția aplicării tuturor măsurilor de corecție în determinarea activității acestora. În cazul cercetărilor privind redistribuția solului, în care pot fi implicate chiar și sute de probe, determinarea simultană a radiotrasorilor și procedurile rapide la costuri scăzute sunt optime și pot fi asigurate doar prin tehnica spectrometriei gama. În această considerație, procedurile pentru controlul calității, participarea la testele de competențe și exercițiile de intercomparare sunt de o maximă importanță pentru validarea rezultatelor gama. Analiza scorului-Z a rezultatelor raportate de către laboratorul din Cluj-Napoca în cadrul acestei intercomparări s-a aplicat pentru a evalua performanța laboratorului pentru acuratețe, rezultând o performanță analitică medie normalizată de 92%.

Implicarea laboratoarelor participante și a personalului tehnic care a luat parte la această intercomparare între laboratoare și au contribuit cu timpul și echipamentele acestora la prezenta cercetare este mult apreciată.

#### Calibrarea detectorilor HPGe din cadrul laboratorului radiometric din Cluj-Napoca

Procedura de calibrare este prezentată cu scopul utilizării acesteia pentru analiza radionuclizilor din probe în cadrul laboratorului facultății: (i) măsurători ale activității radionuclizilor emițători gama în probe de mediu, având o compoziție diferită de cea a materialului de referință, sau (ii) măsurători ale radionuclizilor de viață scurtă, care nu s-au putut realiza prin metoda calibrării directe. Aceasta reprezintă prima încercare de a calibra experimental acești detectori în eficiență. Trebuie menționat că studii anterioare ale grupului de cercetare au utilizat eficiențele energiilor de interes determinate cu ajutorul unui cod Monte Carlo, anume GES-Gamma Electron Efficiency Simulator, versiunea 2.7 (*Fulea, 2009*).

Deoarece ambii detectori au fost calibrați în energie anterior prezentului studiu, scopul nostru a fost verificarea stabilității calibrării în energie a sistemelor gama și corectarea calibrării energetice, dacă este cazul. Verificarea calibrării în energie s-a realizat utilizând o sursă echivalent-apă de <sup>152</sup>Eu (*Sahagia and Grigorescu, 1992*) și o sursă punctiformă de <sup>241</sup>Am. O corelație perfectă s-a găsit între energie și numărul canalului pentru ambii detectori la momentul realizării măsurătorilor (aprilie 2013), nefiind necesare corecții. Variația rezoluției picului s-a investigat prin măsurători scurte ale surselor certificate de <sup>152</sup>Eu și <sup>241</sup>Am și s-a găsit o concordanță bună între rezoluția ambilor detectori și energia gama. După câțiva ani de utilizare continuă, rezoluția detectorilor se încadrează încă în valorile garantate de producător. Calibrarea în eficiență a detectorilor HPGe s-a realizat cu ajutorul materialelor de referință RGU-1 și RGTh-1, certificate de către AIEA și preparate din minereu natural de U și respectiv Th, diluat cu pudră de siliciu. Mai mult, metoda de calibrare prezentată a inclus și cristale pure de KCl. Recipientele de aluminiu ale celor 3 surse au fost sigilate cu clei și bandă electrică, pentru a preveni pierderile de radon și toron. Pentru corecțiile de fond s-a măsurat o cutie goală timp îndelungat, în aceleși condiții ca și sursele. Valorile eficiențelor s-au obținut după corectarea efectului de cascadă (unde a fost necesar), utilizând codul EFFTRAN (*Vidmar, 2005, Vidmar et al., 2011*). Curba de eficiență pentru detectorul GEM s-a prezentat ca și o funcție polinomială de ordinul 4 prin fitarea logaritmului natural al eficienței cu cel al energiilor.



Figura 13. Curba de eficiență a detectorului Ortec GEM (144 – 2447 keV)

S-a obținut o fitare foarte bună (R<sup>2</sup>=0.9997) a curbei de eficiență, utilizând cele 3 surse radioactive naturale în intervalul energetic de la 144 keV la 2447 keV. Pentru *validarea internă* a curbei de eficiență, s-a utilizat un material de referință, IAEA-375 sol, conținând <sup>137</sup>Cs și <sup>40</sup>K cu activitate cunoscută. Rezultatele obținute pentru cei doi radionuclizi prezenți în materialul de referință IAEA-375, la energii gama diferite au arătat o bună concordanță cu valorile certificate, validând astfel curba de eficiență experimentală pentru detectorul GEM.

Curba de eficiență fitată pentru detectorul GMX este redată în Figura 14, ca și funcție polinomială de ordinul 4 la scară logaritmică, cu ajutorul funcției Trendline din Excel. Două curbe de calibrare au fost fitate: una în intervalul energiilor mici (sub 250 keV) și a doua în intervalul energiilor mari (peste 250 keV) ale spectrului, având un punct comun între ele. Această variantă a permis obținerea unei fitări mai bune pentru ambele curbe de eficiență. *Validarea internă* a curbei de calibrare în eficiență s-a realizat cu ajutorul a trei materiale de referință AIEA: IAEA-447 sol-mușchi, IAEA-375 sol, IAEA-372 fân. Rezultatele obținute pentru materialele de referință sunt satisfăcătoare și validează astfel curbele de calibrare experimentale atât pentru întreaga regiune spectrală, cât și pentru probe cu compoziție diferită.



Figura 14. Curba de eficiență pentru detectorul Ortec GMX (25.5 – 1461 keV)

Pe lângă validarea internă a laboratorului, procedura propusă pentru calibrarea în eficiență și performanța laboratorului în măsurători radioanalitice s-a verificat prin participare la Testul de Competență (IAEA-TEL-2012-03 worldwide open proficiency test on the determination of radionuclides in water, hay and soil) organizat de către Laboratoarele AIEA din Seibersdorf. Dra Andra-Rada Iurian a fost implicată în toate măsurătorile gama, analiza spectrelor și a datelor raportate în cadrul acestui test de competență. Pentru această evaluare externă a performanțelor laboratorului, fiecare participant a primit 5 probe standard (3 sticle de apă, o cutie cu sol și o cutie cu fân), însoțite de o foaie informativă și un format de raportare. Performanța fiecărui laborator participant a fost evaluată pentru acuratete si precizie relativ la valorile tintă stabilite de AIEA. Aceasta reprezintă prima participare a laboratorului din Cluj-Napoca la un test international de competentă pentru măsurători gama-spectrometrice a probelor de mediu cu diferite compoziții (apă, fân, sol). Rezultatele raportate au fost în strânsă concordanță cu valorile de referintă ale activitătilor date de AIEA, având o performantă analitică medie normalizată de 92.9%, și prezentând o bună precizie, evaluată ca incertitudine relativă standard. Această evaluare externă relevă încă o dată faptul că sistemul spectrometric GMX de tip "N", utilizat pentru măsurătorile gama a fost calibrat corect în energie și eficiență. Numai valoarea raportată pentru <sup>210</sup>Pb a depăsit MARB-ul dat de AIEA, încadrându-se însă într-o diferență relativă de sub 25%. Influența compoziției solului asupra factorilor de transfer de eficiență la energii mici poate fi unul dintre motivele discrepanței rezultatului pentru <sup>210</sup>Pb.

S-a descris o metodă pentru calibrarea în eficiență a celor doi detectori HPGe din cadrul laboratorului facultății, ca și parte semnificativă a măsurătorilor de radioactivitatea mediului. Din motive practice și economice, calibrarea s-a efectuat cu surse naturale certificate care conțin seriile radioactive ale U și Th în echilibru, și anume RGU-1, RGTh-1 și adițional, cristale de

KCl. Prezentul studiu reprezintă prima încercare de calibrare experimentală în eficiență a detectorilor gama din cadrul Laboratorului FSIM din Cluj-Napoca.

Rezultatele validării interne obținute prin măsurători gama ale materialelor de referință (IAEA-447, IAEA-372 și IAEA-375) au fost în concordanță cu valorile de referință pentru materiale cu diferite compoziții. Mai mult, calibrarea a fost validată extern prin participare la *Testul de Competență IAEA-TEL-2012-03*, organizat de către Laboratoarele AIEA din Seibersdorf. În ansamblu, rezultatele laboratorului din Cluj-Napoca au avut o performanță analitică medie de 92.9%.

#### Capitolul 8. Concluzii generale și direcții viitoare

Potențialul radionuclizilor cu depunere în estimarea eroziunii solului a atras atenția cercetătorilor în ultimii ani. Principalele concluzii ale tezei sunt prezentate mai jos.

(1) Prin această teză se dorește continuarea exploatării aplicațiilor incipiente ale <sup>137</sup>Cs în eroziunea solului pentru terenurile din România. Astfel, atât <sup>137</sup>Cs, cât și <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> au fost utilizați pentru derivarea magnitudinii redistribuției solului pentru un teren intens cultivat, situat în Câmpia Transilvaniei, județul Mureș. Combinând cei doi radiotrasori, s-a putut obține o estimare retrospectivă pe termen mediu și lung a ratelor de redistribuție a solului, reflectând foarte bine modificările apărute în sistemul agricol din România în anii 1991. În cadrul aplicației, s-a putut identifica și o limitare a tehnicii <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub> pentru studii de eroziune, acesta nefiind prezent într-una dintre zonele de referință, acoperită cu vegetație abundentă.

(2) O altă aplicație a abordat tehnica <sup>137</sup>Cs la estimarea eroziunii solului pentru o pășune degradată din zona Jucu, județul Cluj. Ecuația difuziei-convecției și metoda celor mai mici pătrate s-au aplicat pentru profilul vertical al <sup>137</sup>Cs în zona de referință. Această metodă alternativă s-a utilizat la determinarea statistică a coeficienților de difuzie și convecție, atât pentru cesiul de la Chernobyl, cât și pentru cel provenit de la testele nucleare în atmosferă, acești parametrii fiind necesari pentru rularea Modelului radiometric al Difuziei și Migrației. Rata netă de eroziune a solului derivată din aplicarea acestui model este comparabilă cu valoarea ratei medii de eroziune obținută prin metoda convențională (ecuația ROMSEM). Analiza de senzitivitate a parametrilor necesari modelului radiometric a arătat că acesta poate fi foarte sensibil la diferite valori ale parametrilor de intrare și estimarea acestora necesită o atenție sporită, în special în zonele afectate de accidentul de la Chernobyl.

(3) Rezultate preliminare s-au obținut și în cazul aplicării <sup>7</sup>Be pentru estimarea pe termen scurt a redistribuției solurilor. Una dintre cerințele cheie în orice modelare radiometrică este distribuția spațială uniformă a radiotrasorului. În cazul beriliului-7, această presupunere nu a fost în general verificată din cauza a timpului scurt de înjumătățire al acestuia, precum și al numărului mare de probe care trebuiau măsurate într-un timp scurt. Coeficientul de variație de 19%, obținut pentru o parcelă experimentală după apariția a două furtuni consecutive la sfârșitul lunii iulie 2012, relevă un grad de variabilitate acceptabil pentru <sup>7</sup>Be și totodată reprezintă o modalitate de exprimare a incertitudinii ratelor de eroziune derivate.

(4) Mai mult, teza subliniază importanța realizării unor măsurători corecte și precise pentru modelarea radiometrică a eroziunii solurilor. Astfel, s-a organizat un exercițiu de intercomparare între 5 laboratoare internaționale pentru determinarea radionuclizilor în probe de sol din zona de referință de la Zau (județul Mureș). Diferite proceduri s-au aplicat la evaluarea gama-spectrometrică a probelor de sol de către diferite laboratoare, dar s-au încercat și metode alternative (spectrometrie alfa și metoda scintilatorului lichid). Integrând toate datele, <sup>226</sup>Ra s-a arătat a fi cel mai problematic radionuclid, dacă este determinat prin spectrometrie gama. O performanță analitică medie normalizată de 92% a rezultat din evaluarea laboratorului din Cluj-Napoca, confirmând veridicitatea măsurătorilor gama pentru probele de sol.

(5) Măsurătorile radionuclizilor de viață scurtă (ex. <sup>7</sup>Be) din sol nu au fost posibile în laboratorul facultății, pe baza metodei calibrării directe aplicată în cazul <sup>137</sup>Cs, <sup>210</sup>Pb și <sup>226</sup>Ra. Astfel, s-a propus o metodă de calibrare în eficiență pentru cei doi detectori gama HPGe, ca și parte semnificativă a tuturor măsurătorilor de radioactivitatea mediului. Aceasta reprezintă prima încercare pentru a calibra experimental în eficiență acești detectori. Din considerente practice, calibrarea a implicat surse naturale certificate care conțin seriile radioactive ale U și Th în echilibru, anume RGU-1 și RGTh-1, și utilizarea cristalelor de KCl. Metoda a fost validată intern cu ajutorul materialelor de referință (IAEA-447, IAEA-372 și IAEA-375) și extern prin participare la Testul de Competență *IAEA-TEL-2012-03* cu rezultate foarte bune. Succesul acestei calibrări reprezintă oportunitatea unor noi aplicații a radiotrasorilor de viață scurtă în studii de redistribuție a solului în România.

Deși tehnica radiotrasorilor pentru estimarea magnitudinii redistribuției solului a fost aplicată la nivel global în ultimii ani, unul dintre obiectivele cercetărilor viitoare este validarea în continuare a presupunerilor pe care se bazează această tehnică pentru diferite medii și terenuri, îmbunătățirea modelării și a parametrilor de intrare și exploatarea continuă a potențialului acestuia (*Guzmán et al., 2013*). Mai mult, incertitudinile ar trebui luate în considerare și integrate într-un interval de încredere în cadrul programului de modelare, cu includerea variației parametrilor de intrare.

# Lista publicațiilor relevante

## Cărți publicate

**Iurian A-R**, Cosma C, Hofmann W, 2012. Chernobyl radionuclides in environmental samples from Romania&Austria, LAP LAMBERT Academic Publishing GmbH & Co., Germany, ISBN 978-3-8465-8293-0, Ed. Tatiana Melnic, 73 pp.

## **Articole ISI publicate**

Mabit L, Meusburger K, **Iurian AR**, Owens PN, Toloza A, Alewell C, 2013. Sampling soil and sediment depth profiles at a fine-resolution with a new device for determining physical, chemical and biological properties: the Fine Increment Soil Collector (FISC), *J Soils Sedim* (articol acceptat), **Factor de impact 2012: 1.965** 

**Iurian A-R**, Toloza A, Adu-Gyamfi J, Cosma C, 2013. Spatial distribution of <sup>7</sup>Be in soils of Lower Austria after heavy rains, *J Radioan Nucl Chem*, DOI: 10.1007/s10967-013-2683-8, **Factor de impact 2012: 1.467** 

**Iurian AR**, Mabit L, Begy R, Cosma C, 2013, Comparative assessment of erosion and deposition rates on cultivated land in the Transylvanian Plain of Romania using <sup>137</sup>Cs and <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub>, *J Environ Radioactiv*, 10.1016/j.jenvrad.2013.02.009, **Factor de impact 2012: 2.119** 

**Iurian AR**, Begy R, Cătinaș I, Cosma C, 2012. Results of medium-term soil redistribution rates in Cluj county, Romania, using <sup>137</sup>Cs measurements, *Proceedia Environ Sci* 14:22-31 (**ISI Proceedings**)

Cosma C, **Iurian AR**, Nita CD, Begy R, Cîndea C, 2012. Indicators of the Fukushima radioactive release in NW Romania, *J Environ Radioactiv* 114:1-6, **Factor de impact 2011: 1.339** 

Cosma C, **Iurian AR**, Niță DC, Begy R, Cîndea C, 2011. Considerations about the presence of Fukushima radionuclides in the NW part of Romania, *Rom J Phys* 56(9-10): 1999-2007, **Factor de impact 2010: 0.340** 

Iurian AR, Hofmann W, Lettner H, Türk R, Cosma C, 2011. Long term study of Cs-137 concentrations in lichens and mosses, *Rom J Phys* 56(7-8): 983-992, Factor de impact 2010: 0.340

### Articole sub recenzie în jurnale ISI

**Iurian A-R**, Mabit L, Cosma C, 2013. Uncertainty related to input parameters in radiometric derived-soil redistribution rates model: The case of undisturbed soils, *J Soils Sedim*, **Factor de impact: 1.965** (trimis în iulie 2013)

Mabit L, Benmansour M, Abril JM, Walling D, Meusburger K, **Iurian AR**, Bernard C, Tarján S, Owens PN, Blake WH, Alewell C, 2013, Fallout Pb-210 as a soil and sediment tracer in the terrestrial environment: a review, *Earth-Sci Rev*, **Factor de impact 2012: 7.339** (trimis în martie 2013)

### **Referințe** (selecție)

Ayub JJ, Di Gregorio DE, Velasco H, Huck H, Rizzotto M, Lohaiza F, 2009. Short-term seasonal variability in <sup>7</sup>Be wet deposition in a semiarid ecosystem of central Argentina, *J Environ Radioactiv* 100(11): 977-981.

Begy R, Cosma C, Timar A, 2009a. Recent changes in Red Lake (Romania) sedimentation rate determined from depth profiles of <sup>210</sup>Pb and <sup>137</sup>Cs radioisotopes, *J Environ Radioactiv* 100(8): 644-648.

Berger MJ, Hubbell JH, 1987. XCOM: Photon cross sections on personal computers. NBSIR 87-3597, <u>http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/xcom1.html</u> (last accessed June 2013).

Blake W, Walling DE, He Q, 1999. Fallout beryllium-7 as a tracer in soil erosion investigations, *Appl Radiat Isot* 51(5): 599-605.

Currie LA, 1968. Limits for qualitative detection and quantitative determination - application to radiochemistry, *Anal Chem* 40: 586-593.

Cutshall NH, Larsen IL, Olsen CR, 1983. Direct analysis of <sup>210</sup>Pb in sediment samples: Self-absorption corrections, *Nucl Instrum Methods* 206(1): 309-312.

Debertin K, Helmer R, 1988. Gamma- and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors, North-Holland, Amsterdam, pp.367.

De Cort M, Dubois G, Fridman SD, Germenchuk MG, Izrael YA, Janssens A, et al. 1998, Atlas of Caesium Deposition on Europe after the Chernobyl Accident. EUR Report 16733. EC, Office for Official Publications of the European Commission Communities, Luxembourg.

Fulea D, Cosma C, 2009. Monte Carlo sampling for gamma and beta detectors using a general purpose PC program. *Radiat Meas* 44: 278–282.

He Q, Walling DE, 1996. Interpreting particle size effects in the adsorption of <sup>137</sup>Cs and unsupported <sup>210</sup>Pb by mineral soils and sediments, *J Environ Radioact* 30: 117-137.

IAEA, 2010. Analytical Methodology for the Determination of Radium Isotopes in Environmental Samples, Analytical Quality in Nuclear Applications Series No. 19, Printed by the IAEA in Austria

Ionita I, Margineanu RM, 2000a. Application of <sup>137</sup>Cs for measuring soil erosion/deposition rates in Romania, *Acta Geol Hisp* 35(3-4): 311-319.

Ionita I, Margineanu RM, Hurjui C, 2000b. Assessment of the reservoir sedimentation rates from <sup>137</sup>Cs measurements in the Moldavian Plateau, *Acta Geol Hisp* 35(3-4): 357-367.

ISO, 1997. Proficiency testing by interlaboratory comparisons - Part 1: Development and operation of proficiency testing schemes, Guide 43-1.

**Iurian AR**, Begy R, Cătinaș I, Cosma C, 2012. Results of medium-term soil redistribution rates in Cluj county, Romania, using <sup>137</sup>Cs measurements, *Procedia Environ Sci* 14:22-31.

**Iurian AR**, Mabit L, Begy R, Cosma C, 2013, Comparative assessment of erosion and deposition rates on cultivated land in the Transylvanian Plain of Romania using <sup>137</sup>Cs and <sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub>, *J Environ Radioactiv*, 10.1016/j.jenvrad.2013.02.009.

JCGM, 2008. JCGM 100:2008. GUM 1995 with minor corrections. Evaluation of measurement data - Guide to the expression of uncertainty in measurement; http://www.bipm.org/en/publications/guides/

Jia G, Torri G, Innocenzi P, Ocone R, Di Lullo A, 2006. Determination of radium isotopes in mineral and environmental water samples by alpha-spectromtry, *J Radioanal Nucl Chem* 267(3): 505-514.

Jia G, Torri G, Ocone R, 2007. Determination of radium isotopes in soil samples by alpha-spectrometry, J Radioanal Nucl Chem 273(3): 779-783.

Khater AEM, Ebaid YY, 2008. A simplified gamma-ray self-attenuation correction in bulk samples, *Appl Radiat Isotopes* 66: 407–413.

Knoll GF, 2000. Radiation Detection and Measurement, 3rd Edition, Wiley, pp. 802.

LNHB (Laboratoire National Henri Becquerel), LARA Database, 2008 CEA-R-6201, ISSN 0429-3460, http://laraweb.free.fr/. (last accessed June 2013)

Mabit L, Benmansour M, Walling DE, 2008a. Comparative advantages and limitations of Fallout radionuclides (<sup>137</sup>Cs, <sup>210</sup>Pb and <sup>7</sup>Be) to assess soil erosion and sedimentation, *J Environ Radioactiv* 99:1799-1807.

Mabit L, Bernard C, Makhlouf M, Laverdière MR, 2008b. Spatial variability of erosion and soil organic matter content estimated from <sup>137</sup>Cs measurements and geostatistics, *Geoderma* 145(3-4):245-251.

Mabit L, Chhem-Kieth S, Toloza A, Vanwalleghem T, Bernard C, Amate JI, González de Molina M, Gómez JA, 2012. Radioisotopics and physicochemical background indicators to assess soil degradation affecting olive orchards in southern Spain, *Agr Ecosyst Environ* 159:70-80.

Mabit L, Meusburger K, **Iurian AR**, Owens PN, Toloza A, Alewell C, 2013. Sampling soil and sediment depth profiles at a fine-resolution with a new device for determining physical, chemical and biological properties: the Fine Increment Soil Collector (FISC), *J Soils Sedim (articol acceptat)* 

Moţoc M, Stanescu P, Taloiescu I, 1979. Metode de estimare a eroziunii totale și a eroziunii efluente pe bazine hidrografice mici, Buletin ICPA, București (in Română).

Murray AS, Marten R, Johnston A, Martin P, 1987. Analysis for naturally occurring radionuclides at environmental concentrations by gamma spectrometry, *J Radioanal Nucl Chem* 115: 263–288.

Nguyen L, Zapata F, Lal R, Dercon G, 2012, Role of Nuclear and Isotopic Techniques in Sustainable Land Management: Achieving Food Security and Mitigating Impacts of Climate Change. In Lal R and Stewart BA (Eds.), Advances in Soil Science, World soil resources and food security, Chapter 8; 345-418.

Piton F, Lépy M-C, Bé M-M, Plagnard J, 2000. Efficiency transfer and coincidence summing corrections for γray spectrometry, *Appl Radiat Isotopes* 52(3): 791–795.

Popa N, Filiche E, Petrovici G, Margineanu RM, 2011. Using caesium-137 techniques to estimate soil erosion and deposition rates on agricultural fields with specific conservation measures in the Tutova rolling hills, Romania. In Dercon G (Eds), IAEA-TECDOC-1665 Impact of Soil Conservation Measures on Erosion Control and Soil Quality:259-277.

Poręba GJ, Bluszcz A, 2007. Determination of the initial 137Cs fallout on the areas contaminated by Chernobyl fallout, *Geochronometria* 26:35-38.

Porto P, Walling DE, Callegari G, Catona F, 2006. Using fallout lead-210 measurements to estimate soil erosion in three small catchments in southern Italy, *Water, Air, and Soil Poll: Focus* 6: 657–667.

Ritchie JC, McHenry JR, 1990. Application of Radioactive Fallout Cesium-137 for Measuring Soil Erosion and Sediment Accumulation Rates and Patterns: A Review, *J Environ Qual* 19:215-233.

Sahagia M, Grigorescu EL, 1992. Water-equivalent solid standard sources, Nucl Instrum Meth A 312: 236-239.

Sarmiento J, Gwinn E, 1986. Strontium 90 fallout prediction, J Geophys Res 91(C6):7631-7646.

Schuller P, Iroumé A, Walling DE, Mancilla B, Castillo A, Trumper RE, 2006. Use of beryllium-7 to document soil redistribution following forest harvest operations, *J Environ Qual* 35:1756-1763.

Seibert P, Frank A, Formayer H, 2007. Synoptic and regional patterns of heavy precipitation in Austria, *Theor Appl Climatol* 87:139-153.

Shakhashiro A, Tarjan S, Ceccatelli A, Kis-Benedek G, Betti M, 2012. IAEA-447: A new certified reference material for environmental radioactivity measurements, *Appl Radiat Isotopes* 70: 1632–1643.

Sill C, 1987. Determination of radium-226 in ores, nuclear wastes and environmental samples by high resolution alpha-spectrometry, *Nucl Chem Waste Man* 7: 239-256.

STAS 7107/1-76, 1976. Institutul de studii și proiectări pentru îmbunătățiri funciare al României. Determinarea conținutului de materie organică (in Română).

STAS 1913/5-85, 1985. Institutul de studii și proiectări pentru îmbunătățiri funciare al României. Determinarea granulozității (in Română).

Sutherland RA, 1991. Examination of caesium-137 areal activities in control (uneroded) locations, *Soil Technol* 4: 33-50.

Sutherland RA, 1996. Cesium-137 soil sampling and inventory variability in reference samples; literature survey. *Hydrol Process* 10:34-54.

Timar A, Cosma C, Benea V, Begy R, Jobagy V, Szeiler G, Barbos D, Fulea D, 2007. Estimation of environmental radionuclide concentration in soils, a comparison of methods for the annual radiation dose determination in luminescence dating, *Studia Universitatis, Babes-Bolyai, Geologia* 52(1):80-81.

Vajda N, LaRosa J, Zeisler R, Danesi P, Kis-Benedek G, 1997. A novel technique for the simultaneous determination of <sup>210</sup>Pb and <sup>210</sup>Po using a Crown Ether, *J Environ Radioactiv* 37(3): 355-372.

Vidmar T, 2005. EFFTRAN - A Monte Carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry, *Nucl Instrum Meth A* 550(3): 603-608.

Vidmar T, Kanisch G, Vidmar G, 2011. Calculation of true coincidence summing corrections for extended sources with EFFTRAN, *Appl Radiat Isotopes* 69: 908–911.

Wallbrink PJ, Murray AS, 1994. Fallout of <sup>7</sup>Be in south-eastern Australia, *J Environ Radioactiv* 25(3): 213-228.

Walling DE, He Q, 1999. Improved models for estimating soil erosion rates from cesium-137 measurements, *J Environ Quality* 28:611-622.

Walling DE, He Q, Appleby PG, 2002. Conversion models for use in soil-erosion, soil redistribution and sedimentation investigations. In: Zapata F. (Ed.), Handbook for the Assessment of Soil Erosion and Sedimentation using Environmental Radionuclides. Kluwer, Dordrecht, The Netherlands, pp. 111-164.

Walling DE, Collins AL, Sichingabula HM, 2003. Using unsupported lead-210 measurements to investigate soil erosion and sediment delivery in a small Zambian catchment, *Geomorphology* 52:193–213.

Walling DE, 2013. Beryllium-7: The Cinderella of fallout radionuclide sediment tracers?, Hydrol Process Special Issue: Introduction to the special issue 'Tracer Applications in Sediment Research' 27(6): 830-844.

Zapata F (Ed.), 2002. Handbook for the Assessment of Soil Erosion and Sedimentation Using Environmental Radionuclides, Kluwer, The Netherlands, pp. 215.