## Universitatea Babeș-Bolyai Facultatea de Știința și Ingineria Mediului

## DOZIMETRIE PRIN TERMOLUMINESCENŢĂ APLICATĂ ÎN MONITORIZAREA RADIOACTIVITĂȚII AMBIENTALE

Rezumat

## Monica Zeciu (Dolha)

*Coordonator științific:* Prof. Dr. Constantin Cosma

Cluj-Napoca, 2016

Studiul de față a avut ca scop dezvoltarea unui sistem dozimetric termoluminescent robust pentru implementarea monitorizării fondului gama natural în România.

Investigațiile prezentate în această teză au fost efectuate în Laboratorul de Datare și Dozimetrie prin Luminescență, Centrul de Radioactivitate Naturală și Datare Nucleară, Institutul de Cercetări Interdisciplinare în Bio-Nano-Științe, Universitatea Babeș-Bolyai, Cluj-Napoca.

Monica Dolha a fost susținută financiar de proiectul CNCS-UEFISCDI, PN-II-PT-PCCA 2011-3.2-1064 (Ministerul Educației și Cercetării Științifice).

## CUPRINS

1.	INT	RODUCERE	4
2.	FEI	NOMENUL DE LUMINESCENȚĂ	5
	2.1.	Introducere	5
	2.2.	Mecanismul producerii fenomenului de luminescență	5
3.	RA	DIOACTIVITATEA NATURALĂ	7
	3.1.	Materiale radioactive naturale (NORM)	7
	3.2.	Zone cu radioactivitate naturală crescută	8
	3.3.	Zone cu concentrații ridicate de radon	8
4.	SIS	TEMUL DOZIMETRIC TERMOLUMINESCENT	10
	4.1.	Introducere	10
	4.2.	Detectori TL (MCP-7 and MCP-N) și echipamentul (cititor HARSHAW)	10
	4.3.	Procedura de calibrare	12
	4.4.	Mărimi și unități dozimetrice utilizate	12
	4.4.	1. Doza absorbită	12
	4.4.	2. Doza gama efectivă anuală externă (E)	12
	4.4.	3. Doza efectivă la ingestia respectiv inhalarea radonului	13
5.	STU	UDII PRIVIND RADIOACTIVITATEA MEDIULUI ÎN ROMÂNIA	14
	5.1. Aplica	Determinarea fondului gama terestru utilizând metoda termoluminescentă (TL): ații în locații cu context geologic variat	15
	5.2. detect	Hartă de înaltă rezoluție a debitelor dozei gama în județul Cluj, România, folosind ori LiF: Mg, Cu, P	22
	5.3. apă în	Măsurarea debitelor gama terestre și a concentrațiilor de radon din aerul de interior Transilvania (județul Cluj și Alba)	și 30
6.	CO	NCLUZII FINALE	39
R	EFERI	NŢE	41

## **1. INTRODUCERE**

Dozimetria prin termoluminescență (TL) aplicată în studii de monitorizare a radioactivității mediului folosind detectori pasivi a cunoscut o dezvoltare semnificativă în ultima decadă (Vandecasteele, 2004; Olko et al., 2004; Karunakara et al., 2014, Warnery et al., 2015). Fondul de radiații gama natural prezintă variații semnificative în funcție de locație astfel că este obligatorie efectuarea estimărilor cu acuratețe în vederea cuantificării corecte a unei potențiale contaminări radioactive în cazul unui eveniment nuclear nedorit (UNSCEAR 2008 Report).

Principalul scop al acestei teze a fost conceperea unui sistem dozimetric robust de măsurători de mare acuratețe a fondului natural gamma efectiv cu scopul de a dezvolta hărți de înaltă rezoluție a fondului de radiații gamma conform Politicilor Europene de Mediu. Măsurătorile de doză gama environmentale au fost realizate conform obligațiile României ca membru al Uniunii Europene (EC Treaty, art. 174, section 1). Evaluarea fondului de radiații gama reprezintă un demers de conservare a calității mediului. Mai mult, prin cunoașterea modului de variație a dozei de radiații gama de la o locație la alta, în cazul unui eveniment nuclear neașteptat, baza de date obținută ar constitui o premisă importantă în vederea cuantificării expunerii populației și luarea măsurilor necesare.

Aspecte ale fenomenului de termoluminescență și radioactivitate naturală sunt discutate. De asemenea este descris sistemului dozimetric incluzând detectorii TL, cititorul de luminescență, procedura de calibrare și calculele privind determinarea dozei. Aplicațiile dozimetriei prin termoluminescență în activități de monitorizare a mediu sunt detaliate. Aceste studii au fost realizate în cadrul acestei teze și diseminate în două articole precum și în lucrări trimise spre publicare.

Primul studiu a cuprins șapte locații din România cu context geologic variat în vederea determinării relației dintre debitul dozei gamma ambientale în aer și contextul geologic. Rezultatele au indicat o corelare între substratul geologic și debitul dozei gama. În aria granitică investigată debitul dozei măsurate a fost cu 70 % mai mare decât media națională.

O bază de date detaliată pentru fondul gama în județul Cluj a fost realizată. Rezultatele obținute au fost folosite pentru crearea unei hărți de mare rezoluție pentru această zonă conform politicilor europene de mediu.

Într-un studiu ulterior, aria de investigare a fost extinsă la județul Alba unde doza gama efectivă externă anuală a fost calculată. Aceste măsurători au fost însoțite de determinarea concentrațiilor de radon în aerul de interior și apă iar dozele efective anuale pentru ingestia și inhalarea radonului au fost calculate.

Studiile prezentate au dovedit potențialul dozimetriei prin termoluminescență ca un instrument în studiile de monitorizare a mediului iar în final sunt prezentate concluziile.

## 2. FENOMENUL DE LUMINESCENȚĂ

## 2.1. Introducere

Fenomenul de luminescență constă în emisia de lumină a solidelor numite fosfori. Această emisie nu include emisia de radiație de corp negru. Termoluminescența este emisia luminii provenind de la diferite materiale izolatoare sau semiconductoare, în urma încălzirii. Radiația emisă reprezintă eliberarea unei cantități de energie stocată în solid prin diferite moduri de stimulare a sistemului electronic. Centrii de luminescență sunt considerați a fi atomi, ioni sau grupuri de ioni situate în vecinătatea unui defect în rețea. Aceste impurități sunt create prin inserția unei impurități sau prin crearea unei vacanțe. Tranziția unui centru de luminescență dintr-o stare metastabilă la o stare stabilă este însoțită de emisie fotonică. Aceasta este numită luminescență. Termoluminescența este o formă de luminescență și reprezintă emisia de lumină ca urmare a absorbției de energie provenind de la radiația nucleară (**Furetta and Weng, 1998**).

### 2.2. Mecanismul producerii fenomenului de luminescență

Procesele care au loc în timpul producerii fenomenului de luminescență nu sunt complet înțelese. Totuși, reprezentarea simplificată de mai jos permite înțelegerea modului de producere a luminescenței. Deoarece luminescența este legată doar de acele materiale care au mai multă sau mai puțină ordine în structura lor, cele mai potrivite materiale sunt cristalele și unele materiale vitroase. Acestea sunt reprezentate de semiconductori sau izolatori, cu o structură caracterizată de stări energetice delocalizate sau benzi care sunt separate de o bandă interzisă. Cristalele naturale conțin defecte precum impurități, atomi lipsă, ioni care generează stări energetice localizate sau stări metastabile în cadrul benzii interzise.

Fenomenul de luminescență se desfășoară în trei etape principale (**Figura 2.1**): i) **Iradierea**. În urma interacțiunii radiației ionizante cu un cristal, electronii din banda de valență vor primi suficientă energie pentru a părăsi această bandă și trec în banda de conducție. Fiecărui electron transferat în banda de conducție, un gol îi este asociat în banda de valență. Totuși, este posibil ca electronii să rămână acumulați în banda de conducție. Astfel, acești electroni au două posibilități de migrare, în termeni energetici: să revină în banda de valență sau să fie captați în capcane de electroni (defecte).



Figure 2.1. Reprezentare schematică a procesului de lumincescență (adaptat din Aitken, 1998) – T reprezintă capcanele de electroni în timp ce L reprezintă centrii de luminescență.

ii) **Stocarea**. Energia radiațiilor nucleare este parțial stocată în rețeaua cristalină (electroni prinși în capcane). Energia (E) reprezintă adâncimea capcanei.

iii) **Emisia**. Dacă cristalul este încălzit sau expus la lumină, electronii absorb suficientă energie pentru a trece în banda de conducție. Ei pot fi capturați din nou în capcane de electroni sau se pot recombina cu goluri în centrii de luminescență. În cazul detectorilor termoluminescenți cantitatea de lumină emisă este proporțională cu doza absorbită.

Dată fiind stimularea termică, fiind vorba despre termoluminescență, probabilitatea ca electronii să fie eliberați din capcane (T) este descrisă de legea lui Boltzsmann:

$$p = s \times \exp(\frac{-\Delta E}{kT}) \tag{2.1}$$

unde *s* factorul de frecvență,  $\Delta E$  – diferența de energie între nivele, T - temperatura. Poate fi observat că odată cu creșterea temperaturii pot fi accesate capcane mai adânci.

Modelul prezentat mai sus este cunoscut ca modelul uni-capcană (GOT – general onetrap). Deoarece există mai mult decât un tip de capcane, această reprezentare este simplificată. De asemenea, expunerea la radiații poate produce la rândul ei defecte, dar datorită faptului că în această teză se determină doze mici de radiații naturale, acest efect este neglijabil.

## 3. RADIOACTIVITATEA NATURALĂ

## 3.1. Materiale radioactive naturale (NORM)

Radioactivitatea naturală provine din surse cosmice și din elementele radioactive din crusta terestră. Aproximativ 340 de nuclizi au fost determinați în natură, dintre care 70 sunt radioactivi și se numără printre elementele grele. Toate elementele care au numărul atomic mai mare de 80 prezintă izotopi radioactivi, iar toți izotopii numărul atomic mai mare decât 83 sunt radioactivi (**Eisenbud and Gesell, 1997**).

Radioactivitatea naturală are trei surse majore:

- radionuclizii primordiali timpul lor de înjumătățire este suficient de mare pentru ca ei să rămână în mediu de la crearea lor
- radionuclizi secundari sunt derivați din dezintegrările radioactive ale radionuclizilor primordiali, cum ar fi nucleele radioactive produse în seriile <sup>238</sup>U, <sup>233</sup>Th și <sup>235</sup>U.
- radionuclizii cosmogenici sunt produşi în mod continuu în reacțiile nucleare care au loc în urma bombardării nuclizilor stabili produşi de radiațiile cosmice, în special în atmosferă.

Acești radionuclizi naturali sunt cunoscuți drept materiale radioactive care apar în mod natural (NORM).

Sursele de radiații ionizante pentru oameni sunt ilustrate în **Figura 3.1**. Poate fi observat că sursele naturale care contribuie la doza efectivă anuală gama la nivel global reprezintă 65 % din totalul surselor de radiații ionizante.



Figure 3.1. Contribuția surselor de radiații ionizante doza efectivă anuală la nivel global ( adaptată din UNSCEAR 2000)

## 3.2. Zone cu radioactivitate naturală crescută

O zonă cu radioactivitate naturală crescută este definită ca un complex de locuințe în care doza efectivă de expunere a populației (prin contribuția radiației cosmice, radioactivității naturale a solului, aerul de interior și exterior, a apei și a alimentelor) depășește un anumit prag. (**Eisenbud and Gesell, 1997**). Dozele efective anuale sunt clasificate ca: joase  $\leq 5$  mSv/an; medii: 5-20 mSv/an; crescute: 20-50 mSv/an și foarte crescute: > 50 mSv/an (**Hendry et al., 2009**).

**Figura 3.2** ilustrează zonele cu radioactivitate naturală crescută, alături de dozele efective anuale medii, precum și cele maxime.



Figure 3.2. Zone cu radioactivitate naturală crescută. Fondul gama terestru este măsurat în mSv/an (adaptată după UNSCEAR, 2000)

## 3.3. Zone cu concentrații ridicate de radon

Radonul și thoronul sunt generate în mod continuu în crusta terestră prin dezintegrarea uraniului și thoriului din diferite tipuri de roci. Concentrațiile de radon în apă variază de la o

locație la alta. Apele de suprafață conțin mai puțin de 2000 Bq/m<sup>3</sup>, în timp ce apele subterane conțin o concentrație de radon între 20-44.000 Bq/m<sup>3</sup> (**Kronfeld, 2004**). Pe de altă parte, raportul UNSCEAR din 2008 dă ca valoare de referință 1000 Bq/m<sup>3</sup>. Radonul pătrunde cu ușurință în locuințe prin fisurile din pereții și podelele de beton sau prin țevile de drenaj contribuind la creșterea concentrației de radon pentru aerul de interior.

Magnitudinea problemelor cauzate de radon depinde de contextul geologic, în special concentrația de <sup>226</sup>Ra și de permeabilitatea rocilor. Alți factori care joacă un rol important includ tehnicile de construcție a clădirilor dar și climatul. O strategie de control a expunerii la radon ar trebui să aibă în vedere expunerea întregii populații, atât acasă cât și la locul de muncă, prin depunerea de eforturi și resurse în special persoanelor expuse la cele mai mari riscuri (**Garcia-Talavera et al., 2013**).

Este posibilă determinarea unui nivel extrem de crescut a concentrației de radon în unele clădiri indiferent de localizarea acesteia, dar există anumite zone care sunt mult mai predispuse să prezinte concentrații ridicate ale radonului. De aceea este foarte importantă identificarea unor asemenea zone în vederea menținerii unui control adecvat privind expunerea indivizilor la radon (Garcia-Talavera et al., 2013).

Nu există un consens în ceea ce privește definirea acestor zone predispuse la concentrații mari de radon. Generic, Recomandările ICRP din 2007 le definesc ca niște arii în care concentrația de radon în clădiri prezintă o mare probabilitate de a se clasa peste media națională. În anumite țări, această definiție este bazată pe o anumită proporție a numărului de locuințe în care nivelul reglementat de referință este depășit. Cea mai adecvată metodă de a delimita zonele predispuse la concentrații mari de radon folosește măsurători în locuințele din aria de interes (**Miles 1997, Andersen et al 2001, Friedmann 2012**). Deoarece necesită un număr relativ mare de măsurători a aerului de interior la o rezoluție suficient de mare pentru a fi reprezentativă, această metodă poate fi aplicată cu succes la nivel național când o proporție semnificarivă a locuințelor din întreaga țară a fost monitorizată pentru radon (**Garcia-Talavera et al., 2013**).

Exemple de zone predispuse la concentrații mari de radon la nivel global au fost identificate în anumite țări precum Canada (Ford et al., 2000), Suedia (Akerblom 1986), Germania (Kemski et al., 2001), Franța (Ielsch et al., 2010), Irlanda de Nord (Appleton et al., 2011), Norvegia (Smethurst et al., 2008), Băița-Ștei, Romania (Cucoș (Dinu) et al., 2012, Cosma et al, 2013b, 2013c) și altele.

## 4. SISTEMUL DOZIMETRIC TERMOLUMINESCENT

## 4.1. Introducere

Dozimetria prin termoluminescență este o metodă a dozimetriei de corp solid și astfel necesită calibrare. Aplicarea cu succes a acestei metode depinde de caracteristicile întregului sistem dozimetric care cuprinde: dozimetrele TL, cititorul de luminescență, sursele de calibrare și evaluarea matematică a rezultatelor.

Principalele cerințe pentru ca un sistem dozimetric să îndeplinească standardele **ISO/IEC 61066/2006** sunt prezentate în **Tabelul 4.1**. Reproductibilitatea constă în abilitatea sistemului de a da rezultate similare când măsurătorile sunt efectuate în aceleași condiții. Reproductibilitatea influențează precizia de măsurare, alături de repetabilitate și este de obicei raportată ca deviație standard. Linearitatea cuantifică măsura în care rezultatele măsurătorii sistemului se schimbă ca răspuns la schimbarea datelor de intrare. Limita de detecție reprezintă cea mai mică doză care poate fi detectată de sistemul considerat și este în mod curent raportată ca triplul deviației standard. Ultima cerință discutată este stabilitatea. Aceasta este proprietatea care descrie comportamentul sistemului în diferite condiții (climatice, de manipulare, etc).

 Tabelul 4.1. Principalele cerințe pentru un sistem dozimetric (Adaptat după Stochioiu et al.,

 2008)

Cerințele ISO/IEC 61066	Valorile ISO/IEC 61066
Reproductibilitate	max 7.5%
Linearitate	max 10%
Limită de detecție	max 0.1 mSv
Stabilitate	5% pentru 30 zile, în condiții
	normale; 10% pentru 80 zile în
	condiții normale

## 4.2. Detectori TL (MCP-7 and MCP-N) și echipamentul (cititor HARSHAW)

În cazul materialelor cu pro prietăți termoluminescente, cei mai utilizați fosfori sunt florura de litiu (LiF), borat litiu (Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>), sulfat de calciu (CaSO<sub>4</sub>) și flurorură de calciu (CaF<sub>2</sub>). Flourura da calciu împreună cu diferiți dopanți este unul din cele mai comune materiale folosite ca detectori TL de sinteză.

Detectorii considerați în această teză sunt cei bazați pe LiF dopați cu Mg,Cu și P (MCP) (**Figura 4.1**).

Există două tipuri de dozimetre MCP: MCP-N (cu o abundență naturală a <sup>6</sup>Li de 7.5% și <sup>7</sup>Li de 92.5%) și MCP-7 (izotopul <sup>7</sup>Li este îmbogățit până la 99.9%). Acest dozimetru, a fost desemnat, conform Raportului UNSCEAR din 2008, cel mai potrivit detector capabil să fie folosit în dozimetria *in vivo* în aplicațiile clinice și nu numai, fiind de asemenea, foarte adecvat pentru dozimetria de mediu. Detectorii bazați pe LiF:Mg,Cu,P au o mare sensibilitate, susceptibilitate scăzută la umiditate, o bună linearitate (de la 1µGy până la 10 Gy) dar și fading neglijabil (pierdere de informație).



Figura 4.1. Detectori LiF:Mg,Cu,P

Citirea informației stocate în rețeaua cristalină a detectorilor se efectuează cu echipament de citire a semnalului termoluminescent. În acest scop, cititorul de termoluminescență Harshaw TLD Model 3500 a fost folosit (**Figura 4.2**). Acesta include un singur element de detecție TL, un sistem programabil de încălzire liniară, și un fotomultiplicator împreună cu electronica asociată pentru a măsura emisia luminescentă. Software-ul dedicat Thermo Scientific<sup>TM</sup>WinREMS<sup>TM</sup> care rulează pe un computer separat, furnizează interfața de control a cititorului (**http://www.thermoscientific.com**).



Figura 4.2. Cititorul de termoluminescență Harshaw 3500 TLD Reader

## 4.3. Procedura de calibrare

Calibrarea este realizată cu scopul de a determina sensibilitatea detectorilor. <sup>60</sup>Co  $(E\gamma 1=1.17 \text{MeV}, E\gamma 2=1.33 \text{MeV}$  și un timp de înjumătățire de 5.3 ani) este una dintre cele mai utilizate surse radioactive în scopuri de calibrare și a fost folosită în studiile din această teză.

## 4.4. Mărimi și unități dozimetrice utilizate

### 4.4.1. Doza absorbită

Doza absorbită, D, este o cantitate non-stochastică aplicabilă atât direct cât și indirect radiațiilor ionizante. Această cantitate este definită ca energia medie E transmisă de radiația ionizantă materiei de masă m cu un volum final V:

$$D = \frac{d\mathcal{E}}{dm} \tag{4.1}$$

În sistemul internațional a unităților de măsură, această cantitate este exprimată în Jouli pe kilogram sau Gray (Gy). Debitul dozei absorbite este dată de raportul dintre doză și timp:

$$\dot{D} = \frac{dD}{dt}$$

(4.2)

## 4.4.2. Doza gama efectivă anuală externă (E)

Doza gamma efectivă anuală externă (E) poate fi calculată conform Raportului UNSCEAR din 2008:

## $E = D \times 0.7 \times 0.2 \tag{4.3}$

unde D este debitul dozei gama; 0.7 este factorul de conversie a dozei absorbite în aer în doza efectivă gama externă anuală la adulți; 0.2 reflectă componenta de exterior. Această componentă este exprimată în Sievert (Sv).

## 4.4.3. Doza efectivă la ingestia respectiv inhalarea radonului

Riscul atribuit expunerii la <sup>222</sup>Rn (radon) și <sup>220</sup>Rn (thoron) provine din inhalarea produșilor de viață scurtă și iradierea cu particule alfa a căilor respiratorii. Doza de iradiere la care a fost expus sistemul respirator și afectarea potențială a sănătății individului care poate rezulta sunt într-o relație de funcționalitate complexă cu caracteristicile aerosolilor produși în urma dezintegrării radonului și parametrii fiziologici a individului expus.

Din punct de vedere dozimetric, dozele efective pentru ingestie și inhalare pot fi calculate cu formula și factorii de conversie dați de Raportul UNSCEAR din 2008:

$$D_{inh} = C_{Rn} \left( \varepsilon_r + \varepsilon_d f \right) O, \tag{4.4}$$

Unde D<sub>inh</sub> este doza efectivă pentru inhalare; C<sub>Rn</sub> reprezintă activitatea medie anuală a concentrației de radon (Bq/m<sup>3</sup>);  $\varepsilon_r$  și  $\varepsilon_d$  sunt factorii de conversie a radonului, respectiv a progeniturilor sale de viață scurtă,  $\varepsilon_r$ =0.17 (nSv/h)/(Bq/m<sup>3</sup>) și  $\varepsilon_d$ =9 (nSv/h)/(Bq/m<sup>3</sup>); f este factorul de echilibru dintre radon și progeniturile sale de viață, f=0.4 pentru aerul de interior și O este factorul ocupațional, O=7000 h/an.

$$D_{ing} = C_{Rn} \times F_{Rn} \times C_w, \tag{4.5}$$

Unde  $D_{ing}$  este doza effectivă anuală pentru ingestie;  $C_{Rn}$  este activitatea medie anuală a concentrației de radon (Bq/l);  $F_{Rn}$  este doza efectivă pe unitate a consumului de radon din apă pentru adulți ( $10^{-8}$ Sv/Bq) și  $C_w$  este rata de consum a apei (L/an)  $C_w$ =1 L/zi.

## 5. STUDII PRIVIND RADIOACTIVITATEA MEDIULUI ÎN ROMÂNIA

## **Capitol bazat pe:**

**Dolha M**., Timar-Gabor A., Dicu T. și Cosma C., 2015. Measurements of terrestrial gamma dose rates and radon concentrations from indoor air and water in Transylvania region Article submitted. Romanian Reports in Physics

**Dolha M.,** Timar-Gabor A., Dicu T., Begy R., Anton M., Cosma C.,2014. A Highresolution map of gamma dose rates in Cluj county, Romania using LiF :Mg,Cu,P detectors, Radiation Protection Dosimetry 162(1-2), 14-19.

**Zeciu-Dolha M.,** Timar-Gabor A., Cameniță A., Costin D., Cosma C., 2013. *Gamma background measurements by TL method: applications in locations with varied geological context*, Carpathian Journal of Earth and Environmental Sciences 8(4), 109-114.

## 5.1. Determinarea fondului gama terestru utilizând metoda termoluminescentă (TL): Aplicații în locații cu context geologic variat

## **INTRODUCERE**

Scopul acestui studiu a urmărit demonstrarea faptului că metoda termoluminescentă reprezintă o tehnică potrivită pentru monitorizarea dozei gama ambientale, cu scopul final de a aplica această metodă în proiectul de cercetare "Radon map (residential, geogenic, water) for Center, West and Northwest regions from Romania". Importanța acestor măsurători provine din:

- (i) dozele gama obținute vor permite stabilirea unui baze de date de înaltă rezoluție a debitului dozei gama ambiental în regiunile investigate care pot fi integrate în hărțile sezoniere a debitelor dozelor naturale terestre la nivel european (Szegvary et al., 2007).
- (ii) coroborarea nivelelor de radon din aerul de interior şi a dozei gama externe pot servi la calcularea dozelor efective primite de populație din aria investigată (UNSCEAR 2000).

Șapte locații cu un context geologic variat au fost selectate (**Figura 5.1**) (Arad, Cluj-Napoca, Bologa, Miercurea-Ciuc, Predeal, Beliș, Sinaia). Dozimetre TL ultrasensibile LiF:Mg,Cu,P au fost utilizate pentru cuantificarea fondului de radiații gama.



Figura 5.1. Cele șapte locații selectate din România

#### LOCAȚIILE SELECTATE

Orașul Arad este situat pe malul drept al râului Mureș, în regiunea Banat din vestul României. Geologia acestei zone este caracterizată de sedimente Holocene și Pleistocene de grosimi de până la 100 m (nisipuri, pietrișuri, argile și loess) dispuse peste unități sedimentare Neogene compuse din nisipuri și argile cu grosimi de până la 3000 m (Mutihac, 1990). Localizată în valea râului Someșul Mic, zona metropolitană a orașului Cluj-Napoca se află la granita dintre Muntii Apuseni, Platoul Somesului si Câmpia Transilvană. Substratul geologic al acestei regiuni este reprezentat de depozite aluviale Holocene (Bazinul Transilvaniei) și depozite continentale (Baciu și Filipescu, 2002). Satul Bologa este situat la confluența râurilor Crișul Repede și Henț (Sebeș sau Secuieu) și la poalele Munților Vlădeasa (1863 m), parte a Munților Apuseni (Carpații Occidentali). În această regiune există dovezi a prezenței dacitelor și andezitelor Paleogene (Nordul Munților Apuseni), acoperite de depozite aluviale subțiri (nisipuri și pietrișuri) (Ianovici et al., 1976). Orașul Miercurea-Ciuc este situat la o altitudine de 662 m, pe râul Olt, în depresiunea Ciuc. Geologia acestei zone este caracterizată de sedimente Holocene și Pleistocene cu grosimi de până la 40 m depozitate în bazinul intramontan, acoperind andezite cu piroxeni și amfiboli (Carpații Orientali) (Mutihac, 1990). Orașul Predeal este situat pe valea râului Prahova, în sudul județului Brașov. Orașul este localizat într-o zonă montană, cu Muntii Piatra Mare la nord, Muntii Bucegi la sud-vest si Masivul Postăvaru la nord-vest. Un alt oraș inclus în studiu este Sinaia, o stațiune montană din județul Prahova. Este localizată la 60 km nord-vest de Ploiești și la 50 km sud de Brașov, în estul Munților Bucegi. Altitudinea acestui oraș variază între 767 m și 860 m. Din punct de vedere geologic, aceste zone sunt caracterizate de prezența depozitelor de fliș Cretacice (Mutihac, 1990). Satul Belis se extinde la nord-vestul poalelor Muntilor Gilău si la sud-vestul Munților Măgura Călățele, pe malul lacului antropogenic Fântânele, pe cursul superior al râului Someșul Cald. Satul este situat la o altitudine de 1050 m. Geologia acestei zone este caracterizată de existența granitului de Muntele Mare (Paleozoic Inferior) cu intruziuni de roci metamorfice (Balintoni, 1997).

## MATERIALE ȘI METODE

Pentru măsurarea dozelor gama, dozimetre ultrasensibile LiF:Mg,Cu,P (MCP-N și MCP-7 produse de TLD Polonia) au fost utilizate, sub forma de pastile cu diametrul de 4.5 mm și grosime de 0.9 mm. Procedura de încălzire standard la 240 °C timp de 10 minute a fost efectuată înainte de amplasarea dozimetrelor în mediu.

Şapte seturi de dozimetre (cel puțin 2 detectori MCP-N și cel puțin 3 detectori MCP-7 pentru fiecare locație) au fost împachetate în pungi de plastic închise ermetic și etichetate. Fiecare detector a fost învelit în folie de aluminiu pentru a fi ferit de umiditate și lumină și amplasat la o distanță de 1 m deasupra solului, conform procedurilor standard (**Olko, 2004**). Timpul de expunere a fost de cel puțin 3 săptămâni. După aceasta perioadă, TLD-urile au fost colectate și aduse în laborator pentru citirea semnalului cu cititorul de luminescență Harshaw 3500 TLD. Profilul de temperatură (TTP) pentru citirea dozimetrelor a cuprins patru regiuni de interes în curba de strălucire (ROI 1: primele 50 de canale, ROI 2: canalele 50-120, ROI 3: canalele 120-155 și ROI 4: canalele 155-200). Viteza de încălzire a fost de 5°C/ s cu o temperatură maximă de 220 °C (pentru 20 secunde). A treia regiune de interes a fost folosită pentru integrare, deoarece în această regiune se înregistrează picul principal de la 210 °C pentru LiF:Mg,Cu,P. Calibrarea a fost efectuată folosind sursa radioactivă de <sup>60</sup>Co din dotarea Facultății de Fizică a Universității Babeș-Bolyai. Fondul a fost determinat și scăzut pe baza răspunsului unui set de dozimetre.

## **REZULTATE ȘI DISCUȚII**

Semnalul de fond a fost determinat pentru ambele tipuri de detectori ca fiind egal cu 0.29 nC pentru MCP-N (**Figura 5.2.a**) și 0.32 nC pentru MCP-7 (**Figura 5.2.b**). Limita minimă de detecție pentru sistemul folosit în acest studiu poate fi estimată ca raportul dintre triplul deviației standard a semnalului de fond (nC) și sensibilitatea dozimetrelor ( $\mu$ C/mGy) fiind egală cu 304 nGy pentru detectori MCP-N și 175 nGy pentru detectorii MCP-7. Aceste valori sunt extrem de realiste având în vedere că limita inferioară de detecție a acestor dozimetre este de aproximativ 60 nGy (**Olko, 2004**). **Figura 5.3.a** și **Figura 5.3.b** prezintă procedura de calibrare. Poate fi observat că răspunsul dozimetrelor MCP este linear.

**Figura 5.4** prezintă o curbă de strălucire tipică a detectorului MCP-N expus la Beliş. Integrala răspunsului TL pentru regiunea de interes este 57 nC. Poate fi observat că această valoare este cu două ordine de mărime mai mare decât fondul înregistrat pentru acest tip de detector. Acest rezultat confirmă că metoda TL bazată pe dozimetrele MCP este ultra-sensibilă și poate fi aplicată în studii de monitorizare ambientală cu doze joase (zeci de nGy/h) pentru un timp de expunere mai mic decât câteva săptămâni.

Debitele dozelor gama determinate pentru locațiile investigate sunt prezentate în **Tabelul 5.1** și reprezentate grafic în **Figura 5.5**, unde aceste valori sunt comparate cu informațiile privind fondul gama din România furnizate de Raportul **UNSCEAR 2008**.



*Figura 5.2. Histograma semnalului de fond pentru dectectorii MCP-N (a), respectiv MCP-7(b). Poate fi observată distribuția normală a seturilor de detectori și că semnalul de fond este foarte scăzut (nC).* 



**Figura 5.3.** Calibrarea detectorilor MCP-N și MCP-7. Numărul de detectori folosiți pentru fiecare punct este indicat. Poate fi observat că răspunsul la dozele <sup>60</sup>Co este liniar (linie continuă). Liniile întrerupte reprezintă limitele de confindență de 95%.



Figura 5.4. Curbă de strălucire tipică (Beliş).Picul dozimetric de la 210 °C poate fi observat în a treia regiune de interes (ROI 3).



Figura5.5. Debitul dozei gama pentru cele 7 locații. Linia continuă indică debitul dozei mediu pentru România
 92 nGy/h (Raportul UNSCEAR 2008). Cele două linii întrerupte reprezintă intervalul de variație pentru debitul dozelor gama în România – 52-163 nGy/h (Raportul UNSCEAR 2008).

Doza gama ( $\mu$ Gy) a fost obținută ca raportul dintre semnalul luminescent (nC) și sensibilitatea detectorului ( $\mu$ C/mGy):

$$D = \frac{Sign.}{Sens.}$$
(5.1)

Unde D este doza gama; Sign. este emisia luminescentă măsurată și Sens. este sensibilitatea detectorilor MCP-7.

Debitul dozei gama a fost obținut cu formula:

$$Dr = \frac{D}{t}$$
(5.2)

Unde *Dr* este debitul dozei gama, *D* este doza gama iar *t* este timpul.

Cu excepția locației Beliş, toate rezultatele au fost foarte apropiate de media pe țară de 92 nGy/h. Poate fi observat că debitul dozelor s-a încadrat în intervalul normal de variație dat în **Raportul UNSCEAR din 2008** - 52-163 nGy/h. Ceamai ridicată valoare înregistrată s-a observat în locația Beliş (133±16 nGy/h pentru detectorii MCP-N și 158±8 nGy/h pentru detectorii MCP-7) și este explicată de existența unui substrat geologic granitic, cu roci bogate în uraniu și potasiu care cresc fondul radioactiv natural (**Moldovan et al., 2013**). Faptul că dozele obținute atât prin utilizarea detectorilor de tip MCP-N cât și cei de tip MCP-7 au fost asemănătoare reprezintă o dovadă în plus a robusteții metodei aplicate.

Locația	Timp de expunere (zile)	Tipul dozimetrelor	Semnal mediu (nC)	Semnalul cu corecție de fond (nC)	Semnal/zi (nC)	Doza gama/ zi (µGy)	Debitul dozei gama (nGy/h)	Context geologic
		MCP-N	20.34	20.05	0.83	2.23±0.24	93±10	
Arad	24							Sedimente
		MCP-7	24.42	24.10	1	$2.77 \pm 0.17$	115±7	
		MCP-N	36.96	36.67	0.92	$2.44 \pm 0.30$	102±12	
Cluj	40							Depozite aluviale
		MCP-7	38.80	38.48	0.97	2.65±0.16	110±7	
		MCP-N	36.96	36.67	0.92	$2.44 \pm 0.26$	102±11	
Bologa	40							Roci vulcanice
		MCP-7	40.09	39.77	0.99	$2.74 \pm 0.18$	$114 \pm 8$	
		MCP-N	19.12	18.83	0.94	2.51±0.28	105±12	
MCiuc	20							Sedimente
		MCP-7	20.51	20.19	1	2.78±0.15	116±6	
		MCP-N	19.96	19.67	0.85	$2.28 \pm 0.24$	95±10	
Predeal	23							Roci sedimentare
		MCP-7	22.60	22.28	0.97	2.67±0.16	111±7	
		MCP-N	48.23	47.94	1.2	3.20±0.39	133±16	
Belis	40							Roci magmatice
		MCP-7	55.48	55.16	1.4	3.80±0.20	158±8	
		MCP-N	18.20	17.91	0.78	$2.08 \pm 0.24$	87±10	
Sinaia	23							Roci sedimentare
		MCP-7	20.20	19.88	0.87	2.38±0.13	99±5	

Tabelul 5.1. Semnalul TL, doza gama și debitul dozei gama obținute pentru fiecare locație investigată

#### CONCLUZII

Detectorii termoluminescenți de înaltă sensibilitate MCP (LiF:Mg,Cu,P) au fost utilizați pentru monitorizarea fondului natural de radiații. Datorită înaltei sensibilități a acestor detectori, sistemul dozimetric folosit permite efectuarea măsurătorilor integrate pe termen scurt (câteva săptămâni) precum și a măsurătorilor pe termen lung (luni respectiv ani) a fondului natural de radiații. Cele mai reduse debite ale dozelor gamma au fost înregistrate în locatii cu context geologic sedimentar (Sinaia, Predeal) dar si unități sedimentare cu grosimi mari (Arad). Depozitele aluviale (Cluj), stratele subțiri de sedimente (Miercurea-Ciuc) și rocile vulcanice (Bologa) prezintă valori minime și medii. O singură locație (Beliș) indică o strânsă corelare între contextul geologic și debitul dozei gama: cele mai mari valori sunt determinate de prezența rocilor granitice compuse din minerale bogate în radioizotopi (feldspați și alți silicați). Experimentele efectuate pentru o perioadă scurtă din acest studiu, de aproximativ trei săptămâni au demonstrat că acest timp de expunere este suficient pentru o indentificare clară a locațiilor unde debitele dozelor naturale depășesc media națională în corelație cu substratul geologic. Datorită costului redus al dozimetrelor, acest sistem va permite măsurarea dozelor gama de mediu simultan într-un număr mare de locații. Astfel, poate fi concluzionat că acest studiu reprezintă o importantă premisă în vederea obținerii unui fond de date important pentru determinarea dozelor efective la care este expusă populația din România. Aceast aspect este de o importanță majoră deoarece efectuarea acestor măsurători la nivel național în ceea ce privește expunerea populației la fondul natural de radiații ionizante este una dintre obligațiile României ca stat membru al Uniunii Europene.

# 5.2. Hartă de înaltă rezoluție a debitelor dozei gama în județul Cluj, România, folosind detectori LiF: Mg, Cu, P

## INTRODUCERE

Scopul studiului de față a fost dezvoltarea primei hărți de înaltă rezoluție a debitelor dozei gama în județul Cluj, România, folosind dozimetre termoluminescente pasive. Dozele externe efective anuale la care este expusă populația din aria investigată au fost de asemenea calculate. Adițional, activitățile specifice ale <sup>238</sup>U, <sup>232</sup>Th, <sup>40</sup>K din 5 probe de sol au fost determinate folosind spectrometrie gama de înaltă rezoluție pentru a estima doza gama efectivă anuală prin conversia datelor exprimate în Bq/kg în nGy/h conform Raportului **UNSCEAR 2008.** 

Măsurătorile fondului gama extern în județul Cluj, România au fost efectuate folosind detectori de corp solid termoluminescenți cu scopul de a dezvolta o bază de date de mare rezoluție a debitul dozei gama natural. Măsurători integrate au fost efectuate pentru un timp de expunere de minim 3 săptămâni, conform cerințelor UE. Teritoriul a fost împărțit în 69 de celule de 10 x 10 km. Celulele au fost monitorizate folosind detectori de tipul LiF:Mg,Cu,P.

## **MATERIALE ȘI METODE**

Pentru a realiza harta debitelor dozei gama pentru județul Cluj, peste 240 de detectori LiF:Mg,Cu,P (MCP-7 produși de TLD Polonia) cu diametrul de 4.5 mm și grosime de 0.9 mm au fost folosiți. Detectorii au fost plasați în mediu în 69 de locații diferite din județul Cluj între lunile aprilie și august 2013 (teritoriul a fost divizat în celule de 10 x 10 km conform cerințelor Uniunii Europene) astfel acoperind aproximativ 7000 km<sup>2</sup> (aproximativ 3% din teritoriul României). Relieful județului Cluj este caracterizat de prezența podișului și a zonelor montane. Aproximativ un sfert din teritoriul este acoperit de Munții Apuseni, cu înălțimi de până la 1800 m.

Înainte de amplasarea dozimetrelor în mediu, o procedură standard de încălzire a acestora până la 240°C pentru 10 minute a fost realizată. Un număr de 3 până la 5 detectori MCP-7 au fost înpachetați în pungi de plastic și etichetate pentru fiecare locație. Fiecare dozimetru a fost învelit în folie de aluminiu pentru a fi protejat de umiditate și lumină și plasat la o distanță de 1 m față de nivelul solului, conform procedurilor standard (**Olko et al., 2004**). Timpul de expunere a variat între 24 și 51 de zile.

După această perioadă, detectorii au fost colectați și aduși în laborator unde le-a fost citit semnalul luminescent folosind cititorul Harshaw 3500. Profilul de temperatură (TTP) pentru procedura de citire a fost stabilit prin selectarea a patru regiuni de interes din curba de strălucire (ROI 1: primele 50 de canale, ROI 2: canalele 50-120, ROI 3: canalele 120-155 și ROI 4: canalele 155-200). Viteza de încălzire a fost de 5 °C/ s cu o temperatură maximă de 220 °C (pentru 20 secunde). A treia regiune de interes a fost folosită pentru integrare, deoarece în această regiune se înregistrează picul principal de la 210 °C pentru LiF:Mg,Cu,P. Calibrarea a fost efectuată folosind sursa radioactivă de <sup>60</sup>Co din dotarea Facultății de Fizică a Universității Babeș-Bolyai. Fondul a fost determinat și scăzut pe baza răspunsului unui set de dozimetre.

Spectrometria gama de înaltă rezoluție a fost efectuată cu un detector de germaniu hiperpur ORTEC cu un volum activ de 181 cm<sup>3</sup> și o eficiență relativă de 34.2% la 1332.5 keV. Calibrarea relativă a fost efectuată folosind standardul de sol IAEA 312. Picurile investigate pentru seria <sup>232</sup>Th au fost: 238 keV- <sup>212</sup>Pb, 338.3 keV- <sup>228</sup>Ac, 583.2 keV - <sup>208</sup>Tl și 911 keV - <sup>228</sup>Ac. Pentru seria <sup>238</sup>U emisiile la 295 keV- <sup>214</sup>Pb, 352 keV - <sup>214</sup>Pb și 609 keV - <sup>214</sup>Bi au fost utilizate, în timp ce <sup>40</sup>K a fost determinat considerând picul gama la 1461 keV. Un exemplu al spectrului gama obținut este reprezentat în **Figura 5.6**.



Figura 5.6. Spectrul gama obținut pentru o probă de sol din județul Cluj.

## **REZULTATE ȘI DISCUȚII**

Media semnalului de fond pentru 30 de dozimetre a fost determinat (0.32 nC). În cazul sistemului dozimetric folosit în acest studiu, limita minimă de detecție poate fi estimată ca raportul dintre triplul deviației standard a semnalului de fond (nC) și sensibilitatea dozimetrelor ( $\mu$ C/mGy).

$$LLD = \frac{3 \times stdev(bck.Sign)}{s}$$
(5.3)

Unde *LLD* este limita minimă de detecție iar s este sensibilitatea detectorilor.

În cazul de față a fost obținută o valoare de 247 nGy. Acest rezultat este foarte realist considerând că o valoare de 60 nGy reprezintă valoarea minimă detectabilă pentru aceste materiale (**Olko et al., 2004**).

O curbă tipică de strălucire pentru un detector expus la Măguri-Răcătau este prezentat în **Figura 5.7**. Integrala răspunsului TL corespunzător regiunii a treia de interes este de 48 nC, fiind cu două ordine de mărime mai mari decât semnalul mediu de fond înregistrat. Rezultatele obținute confirmă faptul că metoda TL folosind detectori MCP-7 este extrem de adecvată prezentând o înaltă sensibilitate și poate fi aplicată pentru monitorizarea debitului de doze pentru perioade relativ scurte de timp. Sensibilitatea detectorilor folosiți a fost calculată ca fiind 0.363  $\mu$ C/mGy.



Figura 5.7. Curbă de strălucire tipică (locația Măguri-Răcătău). Picul dozimetric este înregistrat în a treia regiune de interes la 210°C.

Locația	Codul	Zile	Nr. de	Semnal TL cor./	St. Dev. pt.	Debit doza gama	Doza gama efectivă
		expunere	dozim.	zi (nC)	Semnal cor./zi	(nGy/h)	anuală (mSv)
					( <b>nC</b> )		
Cluj-Napoca I	32	48	5	0.93	0.05	$107\pm8$	$0.13 \pm 0.01$
Apahida	33	48	4	1.01	0.01	117±6	$0.14{\pm}0.01$
Gheorgheni	44	48	5	0.75	0.02	87±4	$0.11 \pm 0.01$
Cluj-Napoca II	43	40	3	0.80	0.02	93±5	$0.11 \pm 0.01$
Baciu	31	48	2	0.91	0.04	$106 \pm 7$	$0.13 \pm 0.01$
Floresti	42	42	3	0.97	0.02	112+6	$0.14 \pm 0.01$
Tureni	54	45	5	0.97	0.02	107+5	$0.13\pm0.01$
Turcin	54	45	5	0.92	0.02	107±3	0.13±0.01
Turda	22	45	ົ	0.87	0.02	101±5	$0.12\pm0.01$
CâmpiaTurzii	65	45	5	0.91	0.02	106±6	$0.13 \pm 0.01$
Mihai-Viteazu	64	45	2	1.02	0.03	119±6	$0.15 \pm 0.01$
Cornești I	63	45	5	0.76	0.01	88±4	$0.11 \pm 0.01$
Iara	62	46	4	0.89	0.01	103±5	$0.13 \pm 0.01$
Băisoara	61	46	5	1.06	0.03	123±7	$0.15\pm0.01$
Lita	52	45	5	0.94	0.03	109+6	$0.13 \pm 0.01$
Cilăn	41	75	5	0.07	0.03	112+6	$0.13\pm0.01$
Gilau	41	30	5	0.97	0.02	113±6	$0.14\pm0.01$
Garbau	30	36	5	0.86	0.02	99±5	$0.12 \pm 0.01$
Aghireşu	29	36	5	0.82	0.02	95±5	$0.12\pm0.01$
Păniceni	40	36	5	0.90	0.01	$105\pm5$	$0.13 \pm 0.01$
Bedeci	39	36	5	0.87	0.02	100±5	$0.12 \pm 0.01$
Huedin	28	36	5	0.88	0.01	$101\pm 5$	$0.12 \pm 0.01$
Somesu-Rece	51	36	5	1 17	0.03	136+7	$0.17 \pm 0.01$
Măguri Dăgătău	60	36	5	1.17	0.03	150±7	$0.17\pm0.01$
Maguil-Kacatau	50	30	5	1.29	0.02	130±7	0.18±0.01
Salicea	53	32	5	0.98	0.02	114±6	$0.14 \pm 0.01$
Cojocna I	45	51	3	0.94	0.08	$109 \pm 11$	$0.13 \pm 0.01$
Cojocna II	34	51	3	0.70	0.05	81±7	$0.10\pm0.01$
Ceanu-Mare	46	51	3	0.85	0.06	99±8	$0.12 \pm 0.01$
Boldut	56	51	3	0.75	0.01	87±4	$0.11 \pm 0.01$
Clana	57	51	3	0.82	0.07	95+10	$0.12 \pm 0.01$
Enapa	17	51	2	0.02	0.07	108+10	$0.12\pm0.01$
Flata	47	51	5	0.93	0.07	108±10	0.13±0.01
Mociu	35	51	3	0.83	0.03	96±6	$0.12 \pm 0.01$
Cămărașu	36	51	3	0.89	0.04	103±7	$0.13 \pm 0.01$
Buza	19	51	3	0.92	0.01	106±5	$0.13 \pm 0.01$
Geaca	25	51	3	0.67	0.08	77±10	$0.09 \pm 0.01$
Taga	18	51	3	0.56	0.03	64±4	$0.08 \pm 0.01$
Sânmarin	13	51	3	0.82	0.02	94+5	$0.12 \pm 0.01$
Fizzen Charlai	12	51	2	0.54	0.02	62+7	$0.02\pm0.01$
Pizeşu-Olienei	12	51	5	0.54	0.03	02±7	0.08±0.01
Bonţ	1/	51	3	0.71	0.02	82±5	$0.10\pm0.01$
Sic	24	51	3	0.72	0.05	84±7	$0.10\pm0.01$
Răscruci	23	51	3	0.72	0.03	83±5	$0.10{\pm}0.01$
Iclod	16	51	3	0.61	0.02	71±4	$0.09 \pm 0.01$
Mihăiesti	20	50	3	0.65	0.04	75±6	$0.09 \pm 0.01$
Aschileu-Mare	14	50	3	0.68	0.04	79±6	$0.10\pm0.01$
Vultureni	21	50	3	0.66	0.03	77+5	$0.09 \pm 0.01$
Bobâlna	5	50	3	0.60	0.03	71+3	0.09±0.01
Dobalila	3	50	2	0.01	0.01	/ 1±5	0.10+0.01
Pruni	4	50	3	0.70	0.02	81±5	0.10±0.01
Caţcau	2	50	3	0.81	0.03	93±5	$0.11\pm0.01$
Rugăsești	3	50	3	0.74	0.02	85±5	$0.10\pm0.01$
Chiuiești	1	50	3	0.64	0.03	74±5	$0.09 \pm 0.01$
Dej	6	50	3	0.76	0.03	88±5	$0.10{\pm}0.01$
Mica	7	50	3	0.79	0.03	92±5	$0.11 \pm 0.01$
Unguras	8	50	3	0.57	0.03	66+5	0.08+0.01
Nimo	11	50	2	0.69	0.09	70+10	$0.10\pm0.01$
	11	50	5	0.08	0.08	/9±10	0.10±0.01
Cornești II	10	50	3	0.70	0.02	81±4	0.10±0.01
Lujerdiu	15	50	3	0.72	0.03	84±5	$0.10\pm0.01$
Borșa	22	50	3	0.65	0.05	76±6	$0.09 \pm 0.01$
Recea-Cristur	9	50	3	0.65	0.02	75±4	$0.09 \pm 0.01$
Negreni	26	24	3	0.57	0.02	66±4	$0.08 \pm 0.01$
V Drăganului	27	24	3	0.74	0.07	85+9	0 10+0 01
Săcuian I	37	24	2	0.57	0.01	66-13	0.08+0.01
Sacultu I	20	24	2	0.57	0.01	00±3 71+2	$0.00\pm0.01$
Sacuteu II	38	24	5	0.61	0.005	/1±3	0.09±0.01
Margău	48	24	3	0.54	0.03	62±5	$0.08 \pm 0.01$
Călățele	49	24	3	0.77	0.01	89±4	$0.11 \pm 0.01$
Beliş	59	24	3	0.64	0.02	74±4	$0.09 \pm 0.01$
Poiana-Horea I	58	24	3	0.67	0.02	78±4	$0.10{\pm}0.01$
Pojana-Horea II	66	24	3	0.68	0.07	79±9	$0.10\pm0.01$
Măricel	50	24	3	1.00	0.03	116+6	$0.14 \pm 0.01$
Ivialișei	27	24	2	1.00	0.05	104+0	$0.17 \pm 0.01$
Lungeşti	0/	24	5	0.90	0.05	104±8	0.13±0.01
Moldoveneşti	68	24	3	0.48	0.03	56±4	$0.0/\pm 0.01$
Bădeni	<u>69</u>	24	3	0.57	0.03	<u>66±5</u>	$0.08 \pm 0.01$

Tabelul 5.2. Semnale TL,	debitele dozei ga	ıma şi dozele efec	tive externe a	nuale obținute	pentru județ	ul Cluj

**Tabelul 5.2** prezintă rezultatele obținute pentru cele 69 de locații considerate. Doza gama a fost obținută ca raportul dintre semnalul luminescent (nC) și sensibilitatea detectorilor ( $\mu$ C/mGy) (calculată în prealabil în procedura de calibrare):

$$D = \frac{s}{s} \tag{5.4}$$

Unde *D* este doza gama; *Sign*. este emisia luminescentă măsurată și *Sens*. este sensibilitatea detectorilor MCP-7.

Debitul dozei gama a fost obținut cu formula:

$$Dr = \frac{D}{t}$$
(5.5)

Unde Dr este debitul dozei gama, D este doza gama iar t este timpul.

Debitul dozei gama efective externe (mSv) a fost calculat folosind un factor de conversie de 0.7 (Raportul UNSCEAR 2008, Anexa B, Secțiunea I) din doza absorbită în aer în doza gama efectivă externă anuală pentru adulți. Un factor de 0.2 care ia în considerare componenta externă a fost folosit.

$$Eff = 0.7 \times Dr \times 0.2 \tag{5.6}$$

Unde Eff este doza gama efectivă externă și Dr este debitul dozei gama.

Debitul mediu al dozei gama a fost calculat la 91 nGy/h, o valoare foarte apropiată de media pe țară din Raportul **UNSCEAR 2008** (92 nGy/h). De asemenea, poate fi observat că debitele dozelor se încadrează în intervalul normal de variație dat în raportul **UNSCEAR 2008** pentru debitul total gama (Anexa B, Tabelul 6, coloana nr. 8): 52-163 nGy/h. Un nivel mai mare (150±7 nGy/h) a fost înregistrat pentru satul Măguri-Răcătău. Acest rezultat este influențat de substratul geologic, de tip granitic care determină creșterea fondului natural de radiații deja existent.

Pentru a compara rezultatele obținute prin metoda termoluminescentă, au fost efectuate măsurători a dozei gama externe efective anuale pe baza activităților specifice identificate în cinci probe de sol (probele de sol au fost prelevate din aceeași locație în care TLD-urile au fost plasate) determinate prin spectrometrie gama de înaltă rezoluție folosind factorii de conversie din Tabelul 1, **Anexa B a Raportului UNSCEAR 2008**.

$$Eff = A^{226}_{Ra} * DCF^{226}_{Ra} + A^{40}_{K} * DCF^{40}_{K} + A^{232}_{Th} * DCF^{232}_{Th}$$
(5.7)

Unde Eff reprezintă doza gama efectivă externă, A este activitatea radionuclizilor și DCF este factorul de conversie pentru radionuclizii naturali. Debitul dozelor cosmice a fost calculat pentru locațiile investigate folosind factorii de conversie dați de Prescott și Hutton, 1994. Rezultatele obținute sunt prezentate în Tabelul 5.3. Poate fi observat că rezultatele obținute prin spectrometrie gama de înaltă rezoluție sunt consistente în limita de eroare cu rezultatele obținute prin metoda TLD considerând un interval de încredere de 95 %.

Tabel 5.3. Datele de spectrometria gama pentru probele de sol colectate în cinci locații. Dozele gama efective externe pentru aerul de exterior calculate pe baza activităților specifice sunt comparate cu valorile obținute prin 

• 7

meioaa 1LD-urilor.									
Locația	Acitivitate specifică (Bq/kg)		Altitudine	Debitul	Doza gama	Doza			
	<sup>238</sup> U	<sup>232</sup> Th	<sup>40</sup> K	- (m)	dozei cosmice (mGy/an)	efectivă externă anuală (mSv) Gamma Spec	gama efectivă externă anuală (mSv) TLD		
Somesu-Rece	44.7±1.6	43.7±2.5	729±18	592	$0.324 \pm 0.005$	$0.14 \pm 0.01$	$0.17 \pm 0.01$		
Bobalna	32.3±1.1	$32.2 \pm 1.8$	552±13	305	$0.307 {\pm} 0.005$	$0.11 \pm 0.01$	$0.09 \pm 0.01$		
Cluj-Napoca	31.3±1.1	$31.4{\pm}1.9$	669±16	351	$0.310{\pm}0.005$	$0.11 \pm 0.01$	$0.11 \pm 0.01$		
Bedeci	49.7±1.7	$35.5 \pm 1.5$	715±12	637	$0.327 \pm 0.005$	$0.13 \pm 0.01$	$0.12 \pm 0.01$		
V. Dragan	$22.5 \pm 0.8$	46±2.6	705±18	574	$0.323 \pm 0.005$	0.13±0.01	$0.10\pm0.01$		

O hartă de mare rezoluție a debitelor dozei gama în județul Cluj, România este prezentată în Figura 5.9.



Figura 5.8. Harta României cu județul Cluj evidențiat.



Figura 5.9. Harta de înaltă rezoluție a debitelor dozei gama în județul Cluj, România.

Harta a fost realizată în conformitate cu obligațiile României ca stat membru al UE (prin divizarea teritoriului în celule de 10 x 10 km) și de asemenea cu privire la politicile din cadrul Tratatului EC, Art. 174. Datele raportate vor fi folosite pentru a realiza corelarea debitelor dozelor gama obținute și a concentrațiilor de radon măsurate în proiectul de cercetare RAMARO (Radon map – residential, geogenic, water – for Center, West and Northwest regions from Romania"), (**RAMARO - http://radon.com.ro**).

## CONCLUZII

Detectorii ultrasensibili MCP-7 (LiF:Mg,Cu,P) au fost folosiți pentru a evalua dozele gama pentru județul Cluj, România cu scopul final de a dezvolta o harta de înaltă rezoluție a debitelor dozelor gama. Rezultatele sunt în concordanță cu **Raportul UNSCEAR din 2008** cu privire la debitele dozelor din România. O hartă de înaltă rezoluție a județului Cluj a fost astfel realizată conform politicilor europene de mediu. Aceste date reprezintă un pas important în procesul de dezvoltare a unor hărți de înaltă rezoluție a debitelor dozei gama la nivel național. Ca perspectivă de viitor asupra acestui subiect, este planificată extinderea ariei de investigații, prin includerea mai multor județe, pentru a îmbunătăți bazele de date existente și a crea noi hărți de înaltă rezoluție pentru teritoriul României. Mai mult, rezultatele acestui studiu vor reprezenta o bază de date valoroasă pentru stabilirea corelației dintre debitele dozei gama și a concentrațiilor de radon în cadrul proiectului de cercetare RAMARO ("Radon map (residential, geogenic, water) for Center, West and Northwest regions from Romania").

# 5.3. Măsurarea debitelor gama terestre și a concentrațiilor de radon din aerul de interior și apă în Transilvania (județul Cluj și Alba)

## INTRODUCERE

Studiile anterioare (**Dolha-Zeciu, 2013; Dolha, 2014**) au demonstrat că metoda TL alături de un sistem dozimetric constând dintr-un cititor Harshaw 3500 și detectori LiF:Mg.Cu,P este capabil să măsoare doze joase de câțiva µGy.

Această lucrare prezintă rezultatele obținute pentru județul Alba în privința debitelor dozelor gama folosind detectori termoluminescenți. Un scop adițional s-a axat pe estimarea dozei anuale efective datorită expunerii la radon. Studii mai specifice sunt necesare în urma limitării de către Comisia Națională pentru Controlul Activității Nucleare a dozelor de expunere publică la 1 mSv/an peste fondul natural, în conformitate cu cerințele europene (**Dictatul nr. 14, 2000**). În consecință, studiul de față aduce o contribuție importantă bazei de date a radioactivității naturale din regiunea Transilvaniei.

### **MATERIALE ȘI METODE**

## Măsurarea debitului dozei gama

Pentru a determina debitele dozei gama, detectori LiF:Mg,Cu,P au fost utilizați. Aceste materiale sunt extrem de sensibile atât la doze joase cât și la doze înalte (1µGy-10 Gy) (**Olko et al., 2004; Bilski et al., 2008**). 156 de detectori (pe bază de LiF dopată cu Mg, Cu și P – MCP -7) au fost utilizați. Aceștia au fost plasați în 52 de locații din județul Alba între lunile martie și iulie 2014, acoprind aproximativ 5200 m<sup>2</sup>. Relieful județului Alba este caracterizat de prezența dealurilor înalte și a munților.

Pentru a elimina semnalele reziduale din memoria detectorului, înainte ca aceștia să fie plasați în mediu, o procedură standard de încălzire la 240°C timp de 10 minute a fost efectuată. Fiecare set, conținând cate trei pastile a fost plasat la o distanță de 1 m deasupra solului (**Olko et al., 2010**). Timpul de expunere a variat între 21 și 125 de zile. Cititorul Harshaw 3500 a fost utilizat. Detalii privind procedura de calibrare au fost prezentate într-un studiu anterior (**Dolha-Zeciu et al., 2013**).

## Măsurători de radon în aer și în apă

În cazul măsurătorilor concentrațiilor de radon au fost utilizați detectori de urme CR-39. Pentru județul Cluj, aproximativ 73 detectori în 19 celule au fost amplasați și un număr de 46 probe de apă au fost prelevate în perioada aprilie-august 2013. În cazul județului Alba, detectorii au fost amplasati în 12 celule (43 detectori) și au fost prelevate de asemenea 27 probe de apă în perioada martie-iulie 2014. Ulterior expunerii în mediu, detectorii au fost colectați și a fost măsurată concentrația de radon înregistrată utilizând sistemul de detecție Radosys 2000 (**Cucos-Dinu et al., 2012**).

În cazul măsurării concentrației de radon din apă, probele au fost prelevate din puțuri în recipiente de 0.5 l umplute complet. Concentrațiile de <sup>222</sup>Rn au fost măsurate cu sistemul LUK-VR ce constă din dispozitivul LUK-3A și vasul de sticlă VR (**Pleh, 1977, Cosma et al., 2008b**). Concentrația de radon dizolvat în proba de apă este amestecată cu aerul de la suprafața nivelului acesteia din volumul vasului VR. Ulterior, aerul este transferat din vas în vederea măsurării concentrației de radon folosind metoda celulelor Lucas. O descriere mai detaliată a acestei metode este discutată pe larg în **Cosma et al. (2008)**.

### **REZULTATE ȘI DISCUȚII**

Rezultatele obținute pentru cele 52 locații sunt prezentate în **Tabelul 5.4**. Debitul mediu al dozei gama a fost de 62 nGy/h, o valoare normală conform Raportului **UNSCEAR 2008**. De asemenea, poate fi observat că debitele dozelor s-au încadrat în limitele normale de variație indicate în Raport. Cea mai ridicată doză (91±4 nGy/h) a fost obținută în satul Petrești.

Locația	Cod	Zile	Nr. de dosim	Semnal TL	Er. st. semnal TL	Debit doza	Doza gama ext. an. ef
		сар.	uosiin.	(nC)	(nC)	(nGy/h)	(mSv)
Lancram	1	125	3	0.47	0.01	55±3	$0.07 \pm 0.01$
Petresti	2	125	3	0.79	0.01	91±4	$0.11 \pm 0.01$
Rachita	3	125	3	0.68	0.05	78±6	$0.09 \pm 0.01$
Sasciori	4	125	3	0.49	0.01	56±3	$0.07 \pm 0.01$
Capalna	5	125	3	0.66	0.05	76±6	$0.09 \pm 0.01$
Daia-Romana	6	125	3	0.59	0.04	68±6	$0.08 \pm 0.01$
Spring	7	125	3	0.49	0.02	56±4	$0.07 \pm 0.01$
Rosia de Secas	8	125	3	0.65	0.01	76±4	$0.09 \pm 0.01$
Ohaba	9	125	3	0.58	0.01	67±3	$0.08 \pm 0.01$
Seusa	10	125	3	0.49	0.01	57±3	$0.07 \pm 0.01$
Blaj	11	125	3	0.40	0.05	46±2	$0.06 \pm 0.01$
Tiur	12	125	3	0.40	0.02	46±3	$0.05 \pm 0.01$
ValeaLunga	13	125	3	0.51	0.01	59±3	$0.07 \pm 0.01$
Bucium	14	125	3	0.44	0.01	51±3	$0.06 \pm 0.01$
VamaSeaca	15	118	3	0.49	0.06	57±7	$0.07 \pm 0.02$
Uioara de Sus	16	21	3	0.44	0.03	51±4	$0.06 \pm 0.02$
Farau	17	21	3	0.41	0.01	47±2	$0.06 \pm 0.01$
Silea	18	21	3	0.51	0.01	59±3	$0.07 \pm 0.01$
LopadeaNoua	19	21	3	0.41	0.01	48±3	$0.06 \pm 0.01$
Sancel	20	21	3	0.50	0.03	58±5	$0.07\pm0.02$
Iidvei	21	21	3	0.36	0.01	41+2	0.05+0.01
Sard	21	21	3	0.30	0.02	50+4	$0.05\pm0.01$ 0.06+0.01
Metes	23	21	3	0.15	0.01	64+3	$0.00\pm0.01$ 0.08+0.01
Patrangeni	23	21	3	0.55	0.01	63+4	$0.08\pm0.01$
Zlatna	25	21	3	0.33	0.02	55+3	$0.00\pm0.01$ 0.07+0.01
Izy Ampojuluj	25	21	3	0.40	0.01	62+8	$0.07\pm0.01$
Nadastia	20	21	3	0.54	0.00	61+9	$0.07\pm0.01$
Vinerea	28	21	3	0.52	0.07	75+6	$0.07\pm0.01$ 0.09+0.02
Sibot	20	21	3	0.05	0.03	79±0 79±5	$0.09\pm0.02$
Moratau	29	21	3	0.08	0.02	79±3 87±7	$0.09\pm0.02$
Dimotoo	21	21	3	0.75	0.04	0/±/ 52⊥7	$0.10\pm0.02$
Decese de Ios 1	22	21	2	0.40	0.03	55±7	$0.00\pm0.02$
Posaga de Jos 1	22	21	3	0.30	0.03	04±3 51±2	$0.08\pm0.02$
Posaga de Jos 2	24	21	2	0.44	0.01	$31\pm 3$	$0.00\pm0.01$
Diazesu Daia da Arias	25	21	3	0.05	0.02	/2±4	$0.09\pm0.02$
Data de Artes	33	21	3	0.33	0.05	02±3	$0.07\pm0.02$
Distric	20	21	3	0.72	0.03	04±/ 56⊥2	$0.10\pm0.02$
Distra	20	21	3	0.48	0.02	30±3	$0.07\pm0.01$
Garde Val-Matilan	38	21	3	0.39	0.02	40±3	$0.05\pm0.01$
vaduMonior	39	21	3	0.49	0.01	50±5	$0.07\pm0.01$
Vidra	40	21	3	0.54	0.01	63±4	$0.0/\pm0.01$
Albac	41	21	3	0.63	0.03	/3±5	$0.09 \pm 0.02$
Garda de Sus	42	21	3	0.35	0.02	$41\pm 3$	$0.05\pm0.01$
Arieseni	43	21	5	0.6/	0.02	/8±4	$0.09\pm0.02$
Abrud	44	21	3	0.57	0.03	65±5	$0.08\pm0.02$
Mogos	45	21	5	0.57	0.04	66±6	$0.08\pm0.02$
Aiud	46	21	3	0.59	0.03	68±5	0.08±0.02
Magina	47	21	3	0.57	0.02	65±4	0.08±0.02
Tifra	48	21	3	0.52	0.01	60±3	0.07±0.01
Geoagiu de Sus	49	21	3	0.55	0.01	63±3	$0.08 \pm 0.01$
Unirea	50	21	3	0.62	0.04	$72\pm6$	$0.09 \pm 0.02$
Stremt	51	21	3	0.56	0.01	65±4	$0.08 \pm 0.01$
			2		0.01		0 0 0 0 0 1

Tabelul 5.4. Debitele dozei gama și doza gama externă efectivă anuală



*Figura 5.10.* Harta de înaltă rezoluție a debitelor dozei gama [nGy/h] pentru județul Alba, România (codurile sunt indicate în interiorul fiecărei celule conform *Tabelului 5.4*)

O hartă de înaltă rezoluție a județului Alba pentru debitele dozei gama este prezentată în **Figura 5.10**, prin divizarea teritoriului în celule de 10 x 10 km.

Estimări ale dozei gama externe efective anuale pentru exterior folosind activitățile specifice determinate prin spectrometrie gama de înaltă rezoluție au fost efectuate pentru a comparația cu dozele obținute prin metoda TLD. Factorii de conversie indicați în **Raportul UNSCEAR 2008**, Tabelul 1, Anexa B au fost utilizați.

$$Eff = A^{226}_{Ra} * DCF^{226}_{Ra} + A^{40}_{K} * DCF^{40}_{K} + A^{232}_{Th} * DCF^{232}_{Th}$$
(5.8)

Unde Eff reprezintă doza gama efectivă externă, A este activitatea radionuclizilor și DCF este factorul de conversie pentru radionuclizii naturali. Debitul dozelor cosmice a fost calculat pentru locațiile investigate folosind factorii de conversie dați de **Prescott și Hutton, 1994**. Rezultatele obținute sunt prezentate în **Tabelul 5.5**. Poate fi observat că rezultatele obținute prin spectrometrie gama de înaltă rezoluție sunt consistente în limita de eroare cu rezultatele obținute prin metoda TLD considerând un nivel de încredere de 95 %.

**Tabelul 5.5.** Datele de spectrometria gama pentru probele de sol colectate din opt locații. Dozele gama efectiveexterne sunt calculate pe baza activităților specifice sunt comparate cu valorile obținute prin

Locația	Activita	ate specifică	(Bq/kg)	Altitudine	Debit doza	Doza gama	Doza
	<sup>238</sup> U	<sup>232</sup> Th	<sup>40</sup> K	(m)	cosmică (nGy/h)	efectivă externă anuală (mSv) Gamma	gama efectivă externă anuală (mSv)
						Spec	
Abrud	$35.2\pm0.3$	$47.7\pm0.5$	$855.0\pm1.2$	600	37±6	$0.08 \pm 0.01$	$0.10\pm0.01$
Capalna	27.3±0.2	41.5±0.3	995.4±7.7	365	35±5	$0.09 \pm 0.01$	$0.10{\pm}0.01$
DaiaRomana	22.2±0.7	$27.8 \pm 2.3$	556.0±6.4	342	35±5	$0.08 \pm 0.01$	$0.06 \pm 0.01$
Vidra	$24.0\pm1.4$	$29.7 \pm 0.7$	464.7±6.9	626	37±6	$0.08 \pm 0.01$	$0.06 \pm 0.01$
Lancram	$27.8 \pm 0.1$	$37.4 \pm 0.3$	$705.0{\pm}6.4$	238	35±5	$0.07 \pm 0.01$	$0.08 \pm 0.01$
Petresti	32.7±0.2	$38.9 \pm 0.4$	$789.4 \pm 7.5$	278	35±5	$0.11 \pm 0.01$	$0.09{\pm}0.01$
Sasciori	26.2±1.6	$38.2 \pm 0.3$	757.2±8.3	673	38±6	$0.07 \pm 0.01$	$0.08 \pm 0.01$
Spring	18.3±1.1	$26.4{\pm}1.8$	593.3±6.9	313	35±5	$0.07 \pm 0.01$	$0.06 \pm 0.01$

metoda TLD-urilor.

În ceea ce privește măsurătorile de radon pentru județul Alba, au fost monitorizate 43 de locuințe și 27 de probe de apă. În cazul județului Cluj, 73 de locuințe au fost considerate și 46 de probe de apă au fost analizate. Rezultatele obținute au fost prezentate în **Tabelul 5.6** și **Tabelul 5.7**.

 Tabelul 5.6.
 Concentrații de radon pentru aerul de interior și probe de apă din județul Alba

	Conc	e. radon int.	$(Bq/m^3)$	Conc. radon apă (Bq/l)		
Locații	A.M. *	S.D.*	Max.	<b>A.M.</b>	S.D.	Max.
Lancram	94.3	22.4	118	3.9	3.2	7.6
Rachita	44.7	22.1	70	13.7	9.6	24.4
Sasciori	40	-	40	10.3	0.6	10.8
Capalna	255	153.8	476	-	-	10.5
DaiaRomana	95.5	79.7	208	7.8	4.1	11.6
Spring	65.3	41.2	113	3.1	1.3	4.4
Rosia de Secas	91.5	47	133	6.7	0.5	7.1
Ohaba	89.7	43.4	127	7.2	4.5	10.2
Seusa	83.8	18.5	107	-	-	2.6
ValeaLunga	90.7	42.4	162	3.4	13	4.3
Goiesti	36.3	20.6	58	-	-	3.4
Abrud	50.7	47.3	104	-	-	2

Locatii	Conc.	. radon int. (	( <b>Bq/m<sup>3</sup></b> )	Conc	Conc. radon apă (Bq/l)		
Locații	A.M.*	S.D.*	Max.	A.M.	S.D.	Max.	
Gadalin	489	407	936	1.9	1.2	3.2	
Orman	240	165	456	2	1.3	3.3	
Capalna	264	169	485	1.2	0.7	1.9	
Livada	183	77	266	3.6	0.6	4	
Bobalna	249	109	385	2.1	1.4	3.1	
Pruni	582	208	705	3	0.6	3	
Chiuiesti	168	66	212	7.5	7.4	3.9	
V.Draganului	275	286	758	21.8	16.2	39.4	
Negreni	170	117	313	1.2	0.1	1.3	
Tranis	362	311	689	8.8	3.6	6.2	
Bedeci	303	96	457	6.3	5.1	11.3	
Paniceni	247	168	456	4.2	5.4	8	
Salicea	114	64	182	10.9	10.3	17	
Deleni	529	725	1606	15.4	9.8	22.3	
Filea de Jos	194	158	356	8.5	6.4	13	
Baisoara	105	43	144	2.2	1.6	3.9	
Hasdate	140	103	287	17.6	17.5	35.7	
Belis	97	60	158	45.9	21.6	61.1	
Marisel	342	283	613	178.7	94.9	352.2	
-				-			

Tabelul 5.7. Concentrații de radon pentru aerul de interior și probele de apă din județul Cluj

Conform Tratatului EURATOM 59/2013, toate țările europene trebuie să dezvolte planuri de actiune privind expunerea la radon începând cu anul 2018. Mai multe țări europene au stabilit deja nivele la care sunt necesare acțiuni de remediere pentru radon din aerul de interior dar și pentru apă. Nivelul recomandat de Organizația Mondială a Sănătății (WHO) în cazul aerului de interior nu trebuie să depășească 100 Bq/m<sup>3</sup>. Totuși o limită de 400 Bq/m<sup>3</sup> este dată. După cum poate fi observat în Tabelul 5.6 în ceea ce privește județul Alba, cea mai mare valoare a fost măsurată în satul Căpâlna (476 Bq/m<sup>3</sup>) care este peste limita mentionată anterior. Pentru probele de apă toate măsurătorile au fost sub limita 100 Bq/l dată de WHO. În cazul județului Cluj, în 11 locuințe concentrațiile de radon din aerul de interior au depășit limita de 400 Bq/m<sup>3</sup> (**Tabelul 5.7**). Concentrația cea mai ridicată s-a înregistrat în satul Deleni (1606 Bq/m<sup>3</sup>). În ceea ce priveste măsurătorile de apă, concentrațiile obtinute au fost mai mari comparativ cu rezultatele obtinute pentru judetul Alba. Cea mai mare concentratie a fost înregistrat în satul Mărișel (352.2 Bq/l). Cele 11 rezultate care depășesc 400 Bq/m<sup>3</sup> pot fi corelate cu contextul geologic (substrat granitic - satul Mărișel), slaba aerisire a încăperilor (detectorii au fost plasați din septembrie 2013 până în martie 2014) sau posibilitatea ca locuințele/ camerele să nu fi fost folosite pe parcursul perioadei de monitorizare.

Estimări a dozelor efective anuale pentru ingestia și inhalarea radonului au fost realizate folosind factorii de conversie indicați în Raportul UNSCEAR 2008 pentru a evalua expunerea efectivă a populației la radon (Tabelul 5.8 și Tabelul 5.9):

unde D<sub>inh</sub> este doza anuală efectivă pentru inhalare; C<sub>Rn</sub> reprezintă activitatea medie anuală a concentrației de radon (Bq/m<sup>3</sup>);  $\varepsilon_r$  și  $\varepsilon_d$  sunt factorii de conversie a radonului, respectiv a progeniturilor sale de viață scurtă,  $\varepsilon_r=0.17(nSv/h)/(Bq/m^3)$  și  $\varepsilon_d=9(nSv/h)/(Bq/m^3)$ ; f este factorul de echilibru între radon și progeniturile sale de viață scurtă, f=0.4 pentru aerul de interior și O este factorul ocupațional, O=7000 h/an.

$$D_{ing} = C_{Rn} \times F_{Rn} \times C_{w}, \tag{5.10}$$

unde  $D_{ing}$  este doza anuală efectivă pentru ingestie;  $C_{Rn}$  este activitatea medie anuală a concentrației de radon (Bq/l);  $F_{Rn}$  este doza efectivă committed pe unitatea de consum de apă pentru adulți ( $10^{-8}$ Sv/Bq) și  $C_w$  este rata consumului de apă (L/an)  $C_w$ =1 L/zi.

Locația	Doza ef. anuală (inhalare) (mSv)	Doza. ef. anuală (ingestie) (mSv)
Lancram	2.49	0.01
Rachita	1.18	0.05
Sasciori	1.06	0.04
Capalna	6.73	0.04
DaiaRomana	2.52	0.03
Spring	1.72	0.01
Rosia de Secas	2.41	0.02
Ohaba	2.37	0.03
Seusa	2.21	0.01
ValeaLunga	2.39	0.01
Goiesti	0.96	0.01
Abrud	1.34	0.01

Tabel 5.8. Doza anuală efectivă datorată inhalării și ingestiei de radon în județul Alba.

Locația	Doza ef.	Doza. ef.
	anuală	anuală
	(inhalare)	(ingestie)
	(mSv)	(mSv)
Gadalin	12.9	0.01
Orman	6.3	0.01
Capalna	7	0.01
Livada	4.8	0.01
Bobalna	6.6	0.01
Pruni	15.4	0.01
Chiuiesti	4.4	0.03
V.Draganului	7.2	0.08
Negreni	4.5	0.01
Tranis	9.6	0.03
Bedeci	8	0.02
Paniceni	6.5	0.02
Salicea	3	0.04
Deleni	13.9	0.06
Filea de Jos	5.1	0.03
Baisoara	2.8	0.01
Hasdate	3.7	0.06
Belis	2.6	0.17
Marisel	9	0.65

Tabelul 5.9. Doze efective anuale pentru inhalarea și ingestia radonului în județul Cluj

Luând în considerare că nivelul de referință este cuprins între 3 mSv/an și 10 mSv/an propus de **ICRP 1993,** poate fi observat că pentru județul Alba (**Tabelul 5.8**) rezultatele privind doza efectivă anuală cauzată de inhalarea radonului se încadrează în limitele normale și variază între 0.96 mSv/an și 6.73 mSv/an cu o deviație standard de 1.52 mSv. De asemenea, în ceea ce privește dozele efective anuale cauzate de ingestia radonului, rezultatele obținute variază între 0.01 și 0.05 mSv/an cu o deviație standard de 0.01 mSv/an, fiind în concordanță cu limita de 0.1 mSv/an propusă de **WHO**. În cazul județului Cluj (**Tabelul 5.9**), dozele variază între 2.6 mSv și 15.4 mSv cu o deviație standard de 4.9 mSv. Pentru trei celule dozele efective anuale pentru inhalarea radonului depășesc limita de 10 mSv/an (Gădălin, Pruni și Deleni). Doza mai mare observată în satul Deleni a fost estimată la 15.4 mSv/an. După cum a mai fost menționat, cea mai plauzibilă cauză este slaba aerisire a locuinței considerate. În ceea ce privește doza efectivă anuală cauzată de ingestia radonului, toate rezultatele, cu excepția a celor două locații (Beliş și Mărișel) unde dozele depășesc limita dată de **ICRP 1993** (0.17 mSv/an respectiv 0.65 mSv/an, cu o deviație standard de 0.14 mSv)sunt normale.

## CONCLUZII

Detectorii termoluminescenți bazați pe LiF:Mg,Cu,P au fost utilizați pentru cuantificarea debitelor dozei gama în județul Alba, România. O hartă de înaltă rezoluție pentru acest județ privind debitele dozei gama este prezentată pentru prima dată.

Măsurarea concentrațiilor de radon a fost efectuată în 43 de locuințe din județul Alba și 73 de locuințe din județul Cluj. Pentru județul Alba, rezultatele indică faptul că populația este expusă la un nivel normal a concentrației de radon în aerul din interior cât și în apă, fiind conform standardelor **Organizației Mondiale a Sănătății** și a **Tratatului EURATOM**. Au fost de asemenea estimate și dozele efective anuale cauzate de inhalarea și ingestia radonului. Rezultatele s-au încadrat în intervalul normal de variație conform **Raportului ICRP 1993** și **Organizației Mondiale a Sănătății**. În privința județului Cluj, în 11 locuințe au fost măsurate concentrații ale radonului în aerul de interior care depășesc limitele date de **Organizației Mondiale a Sănătății** și a **Tratatului EURATOM**. Această situație poate fi explicată de contextul geologic sau de slaba aerisire a locuințelor investigate. De asemenea, dozele anuale efective cauzate de ingestia și inhalarea radonului au depășit în anumite cazuri limita indicată în Raportul **ICRP 1993**.

Alături de măsurătorile efectuate într-un studiu anterior din județul Cluj, rezultatele studiului de față consemnează o nouă etapă în dezvoltarea unei hărți de înaltă rezoluție a regiunii Transilvania.

## 6. CONCLUZII FINALE

În premieră pentru România, aplicații ale dozimetriei prin termoluminescență în monitorizarea environmentală pentru o arie extinsă (aproximativ 13 000 km<sup>2</sup>) au fost realizate. Aceast scop a fost realizat prin dezvoltarea și implementarea unui sistem dozimetric bazat pe detectori LiF: Mg, Cu, P și un cititor Harshaw 3500. Metoda a fost aplicată pentru măsurarea debitelor dozei gama în regiunea Transilvania. Hărți de înaltă rezoluție a debitelor dozei gama au fost prezentate pentru prima dată pentru județele Cluj și Alba.

Într-un studiu inițial a fost evidențiată corelarea între debitul dozei gama natural și substratul geologic, bazat pe investigarea a șapte locații din România. Rezultatele obținute au demonstrat o clară dependență între debitul dozei gama natural și substratul geologic. Debite ale dozei de  $158 \pm 8$  nGy/h au fost măsurate pentru satul Beliș, o locație caracterizată de un substrat granitic. Această valoare este cu aproximativ 70% mai mare decât media obținută pentru restul locațiilor investigate.

O hartă de înaltă rezoluție a debitelor dozei gama în județele Cluj și Alba a fost realizată conform cerințelor Centrului de Cercetări a Comisiei Europene prin împărțirea zonelor investigate în celule de 10 x 10 km.

Peste 240 de detectori pe bază de LiF: Mg, Cu, P au fost folosiți pentru acoperirea unei arii de aproximativ 7000 km<sup>2</sup> în județul Cluj. Debitele dozei gama măsurate s-au încadrat în intervalul normal de variație conform Raportului **UNSCEAR 2008** (52-163 nGy/h). Adițional, doze gama externe efective anuale în aerul de exterior au fost estimate. Acuratețea valorilor obținute folosind metoda TLD a fost confirmată prin calcularea dozelor efective anuale pe baza factorilor indicați în Raportul **UNSCEAR 2008** și a activităților specifice a U, Th și K măsurate prin spectrometrie gama de înaltă rezoluție. În plus, concentrații ale radonului în aerul de interior (73 de locuințe) și în apă (43 de probe) au fost determinate și pe baza acestora au fost calculate dozele efective cauzate de inhalarea și ingestia radonului.

Investigații similare au fost realizate în județul Alba. Pentru a estima debitul dozelor gama, peste 150 de dozimetre LiF: Mg, Cu, P au fost amplasate în locațiile de interes, acoperind o suprafață de 5200 km<sup>2</sup>. Debitele dozei gama măsurate s-au încadrat în intervalul normal de variație conform Raportului **UNSCEAR 2008**. Estimarea dozei gama externe efective anuale pentru aerul de exterior s-a realizat prin aplicarea spectrometriei gama de înaltă rezoluție pentru opt probe de sol. Rezultatele obținute confirmă faptul că dozele obținute prin metoda termoluminescenței sunt consistente în limitele de erori pentru un interval de încredere de 95 %. Monitorizarea concentrațiilor de radon s-a efectuat pentru 43 de locuințe și 27 de probe de apă.

Pentru județul Cluj, în 11 locuințe, concentrațiile de radon în aerul de interior au depășit limita de 400 Bq/m<sup>3</sup>. Concentrații mai ridicate au fost observate în satul Deleni (1606 Bq/m<sup>3</sup>). În cazul concentrației dată de ingestia radonului cea mai ridicată valoare a fost observată în satul Mărișel (352.2 Bq/l), fiind totuși sub limita de 1000 Bq/l indicată de **Organizația Mondială a Sănătății**. Aceste rezultate pot fi corelate cu contextul geologic (substrat granitic – satul Mărișel) și/sau slaba aerisire a încăperilor (detectorii au fost plasați din septembrie 2013 până în martie 2014). În ceea ce privește județul Alba, valoarea cea mai mare a fost măsurată în satul Căpâlna (476 Bq/m<sup>3</sup>), fiind peste limita de 400Bq/m<sup>3</sup>. Pentru probele de apă, toate măsurătorile au indicat valori sub limita dată de **Organizația Mondială a Sănătății**.

Rezultatele acestui studiu demonstrează potențialul dozimetriei prin termoluminescență în monitorizarea radioactivității naturale. Extinderea acestor investigații în întreaga regiune Transilvania este necesară pentru dezvoltarea unei baze de date complete și actuale. Astfel de măsurători sunt extrem de importante deoarece reprezintă o obligație a României ca stat membru al Uniunii Europene.

## REFERINŢE

- Aitken M.J., 1998. An introduction to Optical Dating. The dating of Quaternary Sediments by the use of Photon-Stimulated Luminescence, Oxford University Press, ISBN 0198540922, 267 pp.
- 2. Akerblom, G. 1986. Investigation and mapping of radon risk areas: Geology for Environmental Planning (Trondheim: GSN).
- Andersen, C.E., Ulbak, K., Damkjær, A., Kirkegaard, P. şi Gravesen P., 2001. Mapping indoor radon-222 in Denmark: design and test of the statistical model used in the second nationwide survey. Sci. Total Environ. 272, 231–241.
- Appleton, J.D., Miles, J.C.H., şi Young, M. 2011. Comparison of Northern Ireland radon maps based on indoor radon measurements and geology with maps derived by predictive modelling of airborne radiometric and ground permeability data. Sci. Total Environ. 409, 1572–1583.
- Art 35. Technical Report. 2008. Verifications under the terms of article 35 of the EURATOM Treaty, Uranium mining and processing and national monitoring networks, RO-08/06, Romania.
- Baciu C. şi Filipescu S., 2002. Geological setting. In Cristea V., Baciu C., Gafta D. (Eds.), Cluj-Napoca City and periurban area: environmental studies, Accent Publishing 25-36 (in Romanian).
- 7. Balintoni I., 1997. The geotectonics of the metamorphicterrains from Romania, Carpatica Publishing, Cluj-Napoca 176 p, (in Romanian).
- Bilski, P., Cybulski, T., Puchalska, M., Ptaszkiewicz, M., 2008. Sensitivity loss and recovery for individual TL peaks in LiF:Mg,Ti and LiF:Mg,Cu,P after high-dose irradiation. Radiation Measurements 43, 357-360.
- 9. Cosma C., Moldovan M., Dicu T. și Kovacs T., 2008b. Radon in water from

Transylvania (Romania), Radiation Measurements 43,1423-1428.

- Cosma C., Cucoş D., Dicu T., 2013b. Towards the first map of residential radon concentration in some regions in Romania. Radiation Protection Dosimetry, DOI:10.1093/rpd/nct015.
- Cosma, C., Cucoş-Dinu, A., Papp, B., Begy, R., Sainz, C., 2013c. Soil and building material as main sources of indoor radon in Băiţa-Ştei radon prone area (Romania), Journal of Environmental Radioactivity, 116 174-179.
- Cucoş (Dinu) A., Cosma C., Dicu T., Begy R., Moldovan M., Papp B., Niţă D., Burghele B. şi Sainz C., 2012. Thorough investigations on indoor radon in Băiţa radon-prone area (Romania), Sci. Total Environ 431, 78-83.
- 13. Dictate nr.14, 2000. Basic rules for radiological safety, Romania, 1-13114/2000.
- 14. Dolha-Zeciu, M., Timar-Gabor, A., Cameniță, A., Costin, D. and Cosma, C. 2013. Gamma background measurements by TL method: applications in locations with varied geological context, Carpathian Journal of Earth and Environmental Sciences 8(4), 109-114.
- 15. Dolha M., Timar-Gabor A., Dicu T., Begy R., Anton M. şi Cosma C., 2014. A highresolution map of gamma dose rates in Cluj County, Romania using LiF :Mg,Cu,P detectors, Radiation Protection Dosimetry 162 (1-2), 14-19.
- Eisenbud, M. şi Gessel, T., 1997. Emvironmental Radioactivity: From Natural, Industrial and Military Sources (4<sup>th</sup> ed.). Academic Press, San Diego, 656 p.
- Ford, K.L., Savard, M., Dessau, J.C., Pellerin, E., Charbonneau, B.W. şi Shives, R.B.K. 2000. The role of gamma-ray spectrometry in radon risk evaluation; a case history from Oka, Quebec Geosci. Canada, 28 59–64.

- Friedmann, H., 2012. The Austrian Radon project (ARP). , http://homepage.univie.ac.at/harry.friedmann/Radon/onrape.htm (Retrieved 11.11.2015.
- Furetta, C., Weng, W., 1998. Operational Thermoluminescence Dosimetry. World Scientific Publishing, 252p.
- Garcia-Talavera M., Garcia-Perez A., Rey C. şi Ramos L., 2013. Mapping radonprone areas using γ-radiation dose rate and geological information. J. Radiol. Prot. 33, 605-620.
- 21. Hendry J.H., Simon S.L., Wojcik A., Sohrabi M., Burkart W., Cardis E., Laurier D., Timarche M., Hayata I., 2009. Human exposure to high natural background radiation: what can it teach us about radiation risks?. Journal of Radiological Protection 29, A29.
- Ianovici V., Borcoş M., Bleahu M., Patrulius D., Lupu M., Dumitrescu R. şi Savu H., 1976. Geology of the Apuseni Mountains, Academia Republicii Socialiste România Publishing 631 p, (in Romanian).
- ICRP, 1993. Protection against Radon-222 at Home and at Work. ICRP Publication
   65. Ann. ICRP 23 (2).
- Ielsch, G., Cushing, M.E., Combes, P.H., şi Cuney, M. 2010. Mapping of the geogenic radon potential in France to improve radon risk management: methodology and first application to region. Bourgogne J. Environ. Rad. 101, 813–820.
- 25. International Standard ISO/IEC 61066/2006. Thermoluminescent dosimetrical system for the survey of environment and personnel.
- 26. Karunakara N., Yashodhara I., Sudeep Kumara K., Tripathi R.M., Menon S.N., Kadam S., Chougaonkar M.P., 2014. Assessment of ambient gamma dose rate around a prospective uranium mining area of South India – A comparative study of dose by direct methods and soil radioactivity measurements. Results in Physics 4, 20-27.

- 27. Kemski, J., Siehl, A., Stegemann, R., și Valdivia-Manchego, M. 2001. Mapping the geogenic radon potential in Germany. Sci. Total Environ. 272, 217–230.
- Kronfeld, J., Godfrey-Smith, D.I., Johannessen, D., Zentilli, M., 2004. Uranium series isotopes in the Avon Valley, Nova Scotia. Journal of Environmental Radioactivity 73, 335-352.
- 29. Miles J., 1997. Development of maps of radon-prone areas using radon measurements in houses. J. Hazard Mater. 61, 53.
- Moldovan M., Niţă D.C., Costin D. şi Cosma C., 2013. Radon concentration in ground water from Măguri-Răcătău area, Cluj County, Carpathian Journal of Earth and Environmental Sciences 8, 81-86.
- Mutihac V., 1990. Geological structure of Romanian territory, Tehnical Publishing 424 p (in Romanian).
- 32. Olko, P., Budzanowski, M., Bilski, P., Milosevic, S., Obryk, B., Ochab, E., Simic, M., Stegnar, P., Waligorski, M.P.R., Zunic, Z.S., 2004. Application of MCP-N (LiF:Mg,Cu,P) TL detectors in monitoring environmental radiation. Nuclear Technology and Radiation Protection 1, 20-25.
- Olko P., 2010. Advantages and disadvantages of luminescence dosimetry, Radiation Measurements 45, 506-511.
- 34. Pleh J., 1977. Radon detector LUK 3A. Manual for operating LUK 3A instrument, Jiri Pleh M Eng, SMM, Prague.
- Prescott, J.R. şi Hutton, J.T., 1994. Cosmic ray contributions to dose rates for luminescence and ESR dating: large depths and long-term variations, Radiat. Meas. 23, 497-500.

- 36. Smethurst, M.A., Strand, T., Sundal, A.V. şi Rudjord, A.L. 2008. Large-scale radon hazard evaluation in the Oslofjord region of Norway utilizing indoor radon concentrations, airborne gamma ray spectrometry and geological mapping. Sci. Total Environ. 407, 379–393.
- 37. Stochioiu, A., Sahagia, M., Tudor, I., 2008. TLD system for the monitoring of the environmental radioactivity. Environmental Physics 54, 711-719.
- Szegvary T., Conen F, Stöhlker U., Dubois G., Bossew P. şi de Vries G., 2007. Mapping terrestrial x-dose rate in Europe based on routine monitoring data, Radiation Measurements 42, 1561-1572.
- 39. UNSCEAR Report 2000. Sources and effects of ionizing radiation, Annex B vol 1.
- 40. UNSCEAR Report 2008. Sources and effects of ionizing radiation, Annex B vol 1.
- 41. Vandecasteele, C.M., 2004. Environmental monitoring and radioecology: a necessary synergy. Journal of Environmental Radioactivity 72, 17-23.
- Warnery E., Ielsch G., Lajaunie C., Cale E., Wackernagel H., Debayle C., Guillevic J., 2015. Indoor terrestrial gamma dose rate mapping in France: a case study using two different geostatistical models. Journal of Environmental Radioactivity 139, 140-148.
- 43. World Health Organization, 2011. Guidelines for Drinking-water Quality, 4<sup>th</sup> Edition, ISBN 978 92 4 154815 1.
- 44. http://www.thermoscientific.com/content/tfs/en/product/harshaw-tld-model-3500manual-readers-1.html (Accesat în 15.07.2015).