

**UNIVERSITATEA BABEȘ-BOLYAI**  
**FACULTATEA DE ȘTIINȚA ȘI INGINERIA MEDIULUI**

**TEZĂ DE DOCTORAT**  
**ABSTRACT**

**CONDUCĂTORI DE DOCTORAT:**

**Conf. Habil. Dr. Gabor Alida-Iulia**

**Prof. Univ. Dr. Cosma Constantin**

**STUDENT DOCTORAND:**

**Simon Hedvig**

**CLUJ-NAPOCA**

**2018**

**UNIVERSITATEA BABEȘ-BOLYAI**  
**FACULTATEA DE ȘTIINȚA ȘI INGINERIA MEDIULUI**

**Aplicații ale  $^{210}\text{Pb}$  și  $^{137}\text{Cs}$  în studii de mediu**

**ABSTRACT**

**CONDUCĂTORI DE DOCTORAT:**

**Conf. Habil. Dr. Gabor Alida-Iulia**

**Prof. Univ. Dr. Cosma Constantin**

**STUDENT DOCTORAND:**

**Simon Hedvig**

**CLUJ-NAPOCA**

**2018**

### **Cuvinte cheie**

Metoda de datare  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , spectrometrie alfa, spectrometrie gama, bază de date  $^{137}\text{Cs}$ , inventare și fluxuri  $^{137}\text{Cs}$  și  $^{210}\text{Pb}$ , studii de datare, rate de sedimentare, influențe antropice, Transilvania, Delta Dunării.

# Conținut

I. Introducere.....	5
I.1. Scopul tezei și prezentarea generală a conținutului.....	7
II. Datarea radioactivă folosind $^{210}\text{Pb}$ și $^{137}\text{Cs}$ .....	12
II.1. $^{210}\text{Pb}$ .....	13
II.1.1. $^{210}\text{Pb}$ : formare, apariție și migrare.....	13
II.1.2. Măsurarea concentrației de $^{210}\text{Pb}$ .....	15
II.1.3. Radiocronologia și ratele de sedimentare folosind $^{210}\text{Pb}$ .....	18
Modele de datare.....	19
Modelul Ratei Constante de Alimentare (Constant Rate of Supply - CRS).....	21
II.2. Radiomarkări .....	22
II.2.1. $^{137}\text{Cs}$ .....	22
III. Tehnici experimentale.....	26
III.1. Proceduri de prelevare.....	27
III.2. Tehnici experimentale folosite în determinarea $^{210}\text{Pb}$ .....	27
III.2.1. Măsurători directe prin spectrometrie gama.....	27
III.2.2. Măsurători indirecte prin $\alpha$ -emițătorul $^{210}\text{Po}$ .....	30
III.3. Probleme asociate cu extracția $^{210}\text{Po}$ .....	34
III.3.1. O metodă îmbunătățită de extragerea $^{210}\text{Po}$ (Begy et al., 2015).....	36
Introducere.....	36
Materiale și Metode.....	36
Rezultate și Discuții.....	38
Concluzii.....	42
III.3.2. $^{210}\text{Po}$ încorporat în cristale reziduale.....	43
Introducere.....	43
Materiale și Metode.....	43
Rezultate și Discuții.....	47
Concluzii.....	52
IV. Studii de datare.....	58
IV.1. Contaminarea cu $^{137}\text{Cs}$ a regiunii Transilvaniei (România) după accidentul centralei nucleare de la Cernobîl (Begy et al., 2017).....	62

IV.1.1. Introducere.....	62
IV.1.2. Materiale și Metode.....	64
IV.1.3. Rezultate și Discuții.....	65
IV.1.4. Concluzii.....	75
IV.2. Fluxul atmosferic, transportul și balanța masică a $^{210}\text{Pb}$ și $^{137}\text{Cs}$ (Begy et al., 2017).....	81
IV.2.1. Introducere.....	81
IV.2.2. Locații de prelevare.....	81
IV.2.3. Depunerea atmosferică a radionuclizilor.....	83
IV.2.4. Rezultate.....	85
IV.2.5. Concluzii.....	92
IV.3. Studii de datare aplicate pe Delta Dunării.....	94
IV.3.1. Introducere.....	94
IV.3.2. Materiale și Metode.....	96
Sistemul lacustru Matița și Merhei.....	96
Lacul Cruhlig.....	99
IV.3.3. Măsurători.....	100
IV.3.4. Rezultate.....	101
IV.3.5. Discuții.....	117
Inundații.....	117
Grindul Letea.....	118
Eutrofizarea.....	120
Impacte antropice.....	121
Porțile de Fier.....	122
IV.3.6. Concluzii.....	124
IV.4. Influențe antropice pe ratele de sedimentare a mai multor lacuri situate în zone geografice diferite (Simon et al., 2017).....	127
IV.4.1. Introducere.....	127
IV.4.2. Materiale și Metode.....	128
Metode.....	130
IV.4.3. Rezultate și discuții.....	131
IV.4.4. Concluzii.....	137
V. Concluzii finale.....	151

Muhtumiri.....	155
----------------	-----

# I. INTRODUCERE

Metoda de datare  $^{210}\text{Pb}$  a fost utilizată pentru prima dată de Goldberg (Goldberg, 1963) pentru datarea unui ghețar. Sedimente lacustre au fost datate prin această metodă începând cu anul 1971 (Krishnaswamy et al., 1971) urmate de sedimente marine în 1972 (Koide et al., 1972). De atunci au fost studiate o serie de depozite sedimentare cu proveniențe diferite incluzând lacuri, lunci, mlaștini, rezervoare, delte, zone maritime etc. (Mabit et al., 2014) cu ajutorul radioizotopului  $^{210}\text{Pb}$ . Înțelegerea proceselor desfășurate în lunca râurilor are un interes sporit din cauza surplusului de sediment depozitat care poate fi datat folosind excesul de  $^{210}\text{Pb}$  (Du and Walling, 2012). În plus, sedimentele sunt arhive excelente pentru prezervarea schimbărilor de mediu din ultimul secol. Pe lângă determinarea ratelor de sedimentare, geocronologia cu  $^{210}\text{Pb}$  poate fi folosită pentru reconstruirea contaminărilor de metale grele sau de compuși organici (Hosono et al., 2016). În studiile din ultimii 25 de ani, sedimentele lacustre au fost o sursă importantă de informații privind activitățile antropice pe durata ultimilor 100-200 ani (Begy et al., 2016a).

Primele studii de datare folosind  $^{210}\text{Pb}$  ce vizează probe de pe teritoriul României au apărut în secolul 21, când s-au analizat secțiuni ale coastei Mării Negre (Aycik et al., 2004) și carote de sediment din zona anoxică a Mării Negre vestice (Florea et al., 2011) pentru determinarea vârstelor și a ratelor de sedimentare. Construcția Porților de Fier pe Dunăre a dus la retenția a cca. 80% a materialului solid și geocronologiile cu  $^{210}\text{Pb}$  arată că Golful Orșova este capcana primară de sediment din zonă (McGinnis et al., 2006). Lacul Roșu, lac de baraj natural din Carpații Orientali, a fost supus unor serii de investigații folosind radionuclidul  $^{210}\text{Pb}$ . În 2008 s-au stabilit vârstele și ratele de sedimentare pentru prima dată (Begy et al., 2009a) și s-a estimat că lacul se va colmata în 195 ani (Begy et al., 2009b). Barajul acestuia se va umple în  $20 \pm 8$  ani și în  $81 \pm 30$  ani va rămâne doar 20% din suprafața Lacului Roșu (Begy et al., 2015a). Lacul de origine vulcanică, Lacul Sf. Ana (județul Harghita, România) a fost de asemenea datat și ratele de sedimentare au fost calculate pentru a se stabili procesul de eutrofizare (Begy et al., 2011). Incendiile de pădure au fost asociate cu parametrii magnetici și geochemici folosind metodele de datare cu  $^{210}\text{Pb}$  și  $^{14}\text{C}$  împreună cu markerul  $^{137}\text{Cs}$  în două lacuri situate în Munții Rodnei (Hailuc et al., 2016a) și factorii reglementari ai dinamicii sedimentării au fost stabiliți în Lacul Ighiel, Munții Apuseni (Hailuc et al., 2016b).

## I.1. Scopul tezei și prezentarea conținutului acesteia

Această teză prezintă aspecte generale ale metodei de datare  $^{210}\text{Pb}$ , cât și date originale publicate în cinci articole științifice publicate în cadrul studiilor de doctorat.

Teza în sine este cuprinsă dintr-o **Introducere** urmată de **Capitolul II (Datarea radioactivă folosind  $^{210}\text{Pb}$  și  $^{137}\text{Cs}$ )** care se axează pe plumb, în special pe formarea, apariția în mediu și migrarea izotopului  $^{210}\text{Pb}$  și posibilele metode de măsurare ale acestuia. Radiocronologia prin calcularea ratelor de sedimentare și a vârstelor stratelor de sediment este, de asemenea, discutată. Radiomarkerii și alte metode cu potențial de validare sunt descriși, accentul fiind pus pe  $^{137}\text{Cs}$ .

**Capitolul III (Tehnici experimentale)** descrie măsurătorile gama și alfa spectrometrice folosite în prezenta teză și aplicațiile acestora în modelul CRS (Constant Rate of Supply – rată constantă de alimentare). Sunt prezentate procedura generală de prelevare a probelor, echipamentele și metodele de măsurare a radionuclizilor de interes, incluzând prepararea surselor alfa. Două din problemele principale asociate cu extracția sunt discutate. Din cauza duratei lungi a procedurii de digestie clasice (trei săptămâni), s-a dezvoltat o

procedură îmbunătățită a extracției de  $^{210}\text{Po}$  prin schimbarea acizilor și modificarea concentrațiilor acestora, timpul de preparare și măsurare a surselor scăzând astfel la câteva zile. Pentru validare s-au efectuat teste de repetabilitate folosind standarde IAEA pentru procedura clasică și îmbunătățită, iar metoda îmbunătățită a fost aplicată cu succes pe sedimente deltaice (Begy et al., 2015b). Un alt scop al acestei lucrări a fost stabilirea erorilor sistematice provenite din conținutul de  $^{210}\text{Po}$  al rezidului de silicați. Analizele au fost efectuate pe zece probe de sediment de origine geografică diferită folosind patru proceduri distincte de digestie. Una din aceste metode include HF, acid care dizolvă conținutul de silicați al probelor.

**Capitolul IV (Studii de datare)** descrie studiile care au fost efectuate pentru îmbunătățirea și evaluarea metodologiei studiilor de datare, dar include și aplicații de datare pe diferite regiuni geografice. Datorită faptului că  $^{137}\text{Cs}$  este un radiomarker important legat de metoda de datare  $^{210}\text{Pb}$ , s-a efectuat un studiu referitor la concentrațiile acestui izotop în sol pentru regiunea Transilvaniei (Begy et al., 2017). O introducere în vederea calculării inventarului de radionuclizi necesară pentru aplicațiile de modelare vârstă/adâncime este prezentată printr-un studiu cu scopul de determinare a fluxurilor și inventarelor de  $^{137}\text{Cs}$  și  $^{210}\text{Pb}$  din șapte zone diferite ale României analizând probe de sol și turbă (Begy et al., 2016a). Metoda de datare  $^{210}\text{Pb}$  a fost aplicată pe trei lacuri din Delta Dunării. Parametri precum conținutul de apă, porozitatea, densitatea, conținutul total de carbon organic și inorganic au fost calculați și s-au determinat concentrațiile de radionuclizi în vederea determinării vârstelor și a ratelor de sedimentare ale carotelor prelevate (Begy et al., 2015c; Begy et al., 2016b). S-au discutat o serie de factori antropici și naturali cu efect asupra ratelor de sedimentare. Una dintre cele mai importante constatări a fost că ratele de sedimentare din ultimii 30 de ani pe teritoriul Deltei Dunării au crescut semnificativ. Din această cauză, patru lacuri din diferite zone geografice au fost investigate detaliat în acest sens (Simon et al., 2017).

La sfârșitul tezei sunt prezentate **Concluziile finale** și sunt discutate posibile ulterioare studii.



## II. DATAREA RADIOACTIVĂ FOLOSIND $^{210}\text{Pb}$ ȘI $^{137}\text{CS}$

Dintre cei 35 de izotopi ai plumbului, patru au abundențe semnificative în mediu:  $^{208}\text{Pb}$  (52%),  $^{206}\text{Pb}$  (24%),  $^{207}\text{Pb}$  (23%) și  $^{204}\text{Pb}$  (1%), concentrațiile acestora diferind în funcție de diferitele tipuri de roci. Primii trei izotopi sunt produșii finali ai seriilor de dezintegrare ai  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  și, respectiv,  $^{232}\text{Th}$ , iar  $^{204}\text{Pb}$  este singurul radioizotop primordial. Doar  $^{202}\text{Pb}$  ( $T_{1/2} = 52.50$  ka),  $^{205}\text{Pb}$  ( $T_{1/2} = 17.30$  Ma) și  $^{210}\text{Pb}$  ( $T_{1/2} = 22.23$  ani) au timpi de înjumătățire mai lungi, ceilalți izotopi având timpi de înjumătățire care variază între câteva ore și fracțiuni de secundă.

$^{210}\text{Pb}$  ( $T_{1/2} = 22.23$  ani) este parte a seriei de dezintegrare  $^{238}\text{U}$  și se dezintegrează prin emisii  $\beta$  ( $E_{\text{max}} = 17$  keV [84%] și  $E_{\text{max}} = 61$  keV [16%]), urmată de o emisie  $\gamma$  (46.53 keV [5%]). 19.8% din această dezintegrare se desfășoară la nivelul fundamental al izotopului  $^{210}\text{Bi}$ , iar 80.2% ca rezultat al unui nucleu în stare excitată, care trece în starea fundamentală prin emiterea de raze gama de energii joase și prin conversie internă de electroni.  $^{210}\text{Bi}$  ( $T_{1/2} = 5.01$  zile) are o energie  $\beta$  mult mai ridicată ( $E_{\text{max}} = 1161.5$  keV [100%]) decât părintele său. Ca urmare, se produce radionuclidul  $\alpha$  emitent ( $E_{\alpha} = 5.503$  MeV)  $^{210}\text{Po}$  ( $T_{1/2} = 138.37$  zile).

$^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$  și  $^{210}\text{Po}$  sunt omniprezenți în mediu (roci, soluri, sedimente, atmosferă și ape naturale) ca rezultat al dezintegrării și depunerii de  $^{226}\text{Ra}$  ( $^{222}\text{Rn}$ ); cel din urmă găsindu-se în concentrații ridicate. Progeniturile acestora pot fi detectate adesea la distanță de sursele emitente din cauza mobilității extreme ale gazului  $^{222}\text{Rn}$ .  $^{210}\text{Pb}$  și progeniturile sale difuzează prin multe suprafețe (fisuri, acvifere etc.), unde se pot produce produsele de dezintegrare ale seriei  $^{238}\text{U}$ . Dezechilibrul dintre  $^{210}\text{Pb}$  și părintele său,  $^{226}\text{Ra}$  ( $T_{1/2} = 1600$  ani), se datorează și difuziei de  $^{222}\text{Rn}$  ( $T_{1/2} = 3.8$  zile). O fracțiune a atomilor  $^{222}\text{Rn}$  ajung în atmosferă și produșii acestuia de dezintegrare (în principiu  $^{210}\text{Pb}$  și  $^{210}\text{Po}$ , deoarece nuclizii intermediari au timpi de înjumătățire scurți și nu au relevanță în transportul radionuclizilor) se pot absorbe pe aerosoli și alte particule solide, care sunt apoi îndepărtate din atmosferă prin depuneri umede și uscate. Acest proces este rezumat în Fig. II.1.

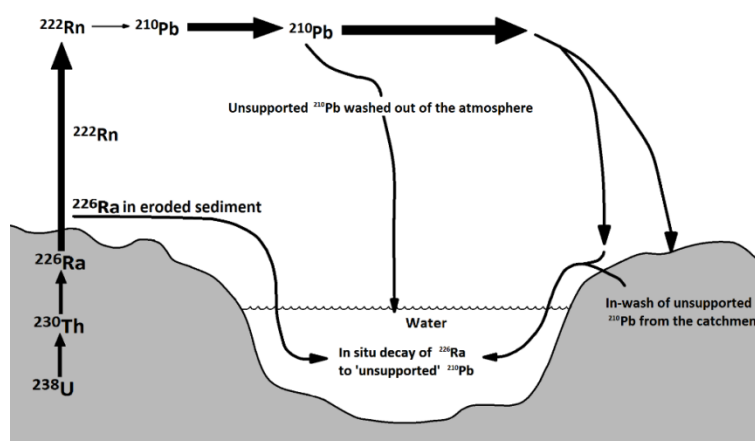


Fig. II.1 – Sursele  $^{210}\text{Pb}$  (după Oldfield și Appleby, 1984)

Ca urmare, stratele superioare de sol vor conține un nivel mai înalt de  $^{210}\text{Pb}$ , comparativ cu cele care sunt presupuse a fi în echilibru cu  $^{226}\text{Ra}$ . Frațiunea de  $^{210}\text{Pb}$  care este în echilibru cu  $^{226}\text{Ra}$  este numită „supported”  $^{210}\text{Pb}$  (sau  $^{210}\text{Pb}$  in situ), pe când excesul de la echilibru este numit „unsupported”  $^{210}\text{Pb}$  (sau exces de  $^{210}\text{Pb}$  –  $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ ). Cel din urmă scade cu timpul de înjumătățire a  $^{210}\text{Pb}$  și stă la baza aplicațiilor de mediu.

Pentru o determinare de încredere a vârstelor probelor de sol și sediment, este necesară determinarea precisă a celor două componente de  $^{210}\text{Pb}$ . Pentru măsurătorile de  $^{210}\text{Pb}$  exces sunt necesare determinările de

$^{210}\text{Pb}$  total și  $^{226}\text{Ra}$ , cel din urmă fiind în echilibru secular cu  $^{210}\text{Pb}$  generat in situ, calculele făcându-se după cum urmează:  $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}} = ^{210}\text{Pb}_{\text{total}} - ^{226}\text{Ra}$  ( $^{210}\text{Pb}_{\text{sup}}$ ).

Sunt disponibile un număr de tehnici de măsurare a  $^{210}\text{Pb}$ -ului însă, pentru acest studiu au fost folosite măsurători gama și alfa spectrometrice pentru determinarea celor două componente de  $^{210}\text{Pb}$ .

Concentrațiile radionuclizilor  $^{226}\text{Ra}$  și  $^{137}\text{Cs}$  au fost măsurate folosind un spectrometru gama ORTEC DigiDart cu un detector semiconductor GMX HPGe de tip N (rezoluție pentru  $^{60}\text{Co}$  la 1.33MeV de 1.92KeV cu o fereastră de 0.5 mm Be pentru energii joase și o eficiență relativă de 34.2%) având o ecranare de plumb (10cm) și de cupru (3 cm). S-a folosit geometria tip "sarpagan" cu cutii cilindrice cu diametrul de 7 cm și înălțimea de 1 cm. Probele au fost puse în cutii de aluminiu sigilate și au fost stocate timp de cel puțin 21 zile pentru stabilirea echilibrului secular dintre  $^{222}\text{Rn}$  și  $^{226}\text{Ra}$ . Software-ul Gamma Vision 32 a fost utilizat pentru analiza picurilor de interes și fiecare probă a fost măsurată cel puțin 80,000 s, măsurătorile de fond fiind efectuate pentru cel puțin 500.000 s. Concentrațiile radionuclizilor probelor au fost determinate prin metoda relativă prin compararea spectrelor obținute cu spectrele unor materiale de referință, cu activități certificate de către IAEA (Agenția Internațională pentru Energie Atomică).

Pentru măsurătorile de  $^{210}\text{Pb}$  total s-au folosit probe uscate și omogenizate la care s-a adăugat traser  $^{209}\text{Po}$  ( $E_{\alpha} = 4.9 \text{ MeV}$ ). Probele au fost supuse digestiei acide folosind  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{HCl}$  și  $\text{H}_2\text{O}_2$ . S-a folosit acid ascorbic pentru înlăturarea interferențelor și pH-ul soluției a fost ajustat la 0.5-1 folosind apă distilată,  $\text{NaOH}$  sau  $\text{HCl}$ . Depuneri spontane au fost efectuate prin încălzirea probelor la  $82^{\circ}\text{C}$  timp de 3 ore. Discurile din oțel inoxidabil au fost curățate folosind  $\text{HCl}$  și ethanol. Măsurătorile alfa spectrometrice au fost executate folosind un detector PIPS Ortec Soloist cu rezoluția de 19 keV. Achiziția datelor a fost făcută cu un ASPEC-927 Dual Multichannel.

Există o serie de modele folosite în datarea  $^{210}\text{Pb}$  care se bazează pe diferite presupuneri legate de concentrația inițială de  $^{210}\text{Pb}$ , fluxul  $^{210}\text{Pb}$  sau ratele de acumulare (Appleby & Oldfield, 1978), care fac posibilă reconstruirea ratelor de sedimentare în timp. Modelul folosit în acest studiu este modelul CRS (Constant Rate of Supply – rata constantă de alimentare). Ipoteza fundamentală a acestuia se bazează pe un transfer eficient din coloana de apă la sediment, un flux constant de  $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$  pe suprafața sedimentului și inexistența difuziei în timp. Cronologiile sunt generate prin compararea inventarului de  $^{210}\text{Pb}$  a coloanelor la inventare parțiale sub adâncimea  $i$ , prin integrarea concentrației de  $^{210}\text{Pb}$  in situ, densității și grosimii fiecărui strat de sediment, obținând astfel sedimentarea masică a fiecărui strat și vârstele la limitele stratelor de sediment (Mabit et al., 2014).

Ratele de acumulare masice și concentrațiile inițiale de  $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$  pot varia în timp în stratele de sediment, dar trebuie să fie invers proporționale (Appleby, 2001). O creștere în aportul de sediment nu presupune întotdeauna și fluxuri de  $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$  crescute în stratul superior de sediment. Altfel spus, rata de sedimentare și concentrația inițială de  $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$  pot varia sau pot fi neregulate în timp.

Activitatea depozitului acumulat sub stratul  $i$  cu  $t$  timp în urmă se poate scrie astfel:

$$A_i = A_0 e^{-\lambda t} \quad (\text{II.1})$$

unde  $A_0$  este activitatea inițială și  $\lambda$  este constanta de dezintegrare aferent  $^{210}\text{Pb}$  ( $\lambda_{210\text{Pb}} = 0.03118 \text{ s}^{-1}$ ).

Vârsta stratului  $i$  se poate calcula după cum urmează:

$$t_i = \frac{1}{\lambda} \ln \frac{A_0}{A_i} \quad (\text{II.2})$$

Rata de acumulare masică  $r$  a stratului  $i$  poate fi calculată folosind:

$$r_i = \frac{\lambda A_0 e^{-\lambda t}}{C_i} = \frac{\lambda A_i}{C_i} \quad (\text{II.3})$$

unde  $C_i$  este concentrația depozitului acumulat la adâncimea  $i$ .

Modelul CRS poate fi validat printr-o serie de metode independente și din această cauză este cel mai folosit model în datare. Acesta se poate aplica în cazul în care ratele de sedimentare variază semnificativ (Szarlowicz et al., 2013).

În acest studiu s-a folosit radionuclidul artificial  $^{137}\text{Cs}$  ( $E_\gamma = 661 \text{ keV}$ ) pentru validarea metodei de datare  $^{210}\text{Pb}$ , deoarece sunt cunoscute date precise globale și regionale ale precipitațiilor radioactive ale acestui izotop. Se pot identifica două picuri în funcție de adâncime: cel al testelor de arme nucleare cu maxima în anul 1956 și cel al accidentului de la Chernobyl din 1986.

## TEHNICI EXPERIMENTALE

În acest capitol sunt discutate două probleme des întâlnite asociate cu măsurătorile de  $^{210}\text{Pb}$  total prin  $^{210}\text{Po}$ : prima tratează reducerea timpului de digestie prin dezvoltarea unei noi proceduri de digestie și aplicând aceasta pe sedimente deltaice (*Subcapitolul III.1*), pe când a doua (*Subcapitolul III.2*) analizează cantitatea de  $^{210}\text{Po}$  din structura cristalină a sedimentelor și influența acestora asupra metodei de datare  $^{210}\text{Pb}$ .

### III.1. O metodă îmbunătățită pentru determinarea $^{210}\text{Po}$

De-a lungul timpului s-au dezvoltat o serie de tehnici de determinare a  $^{210}\text{Pb}$  prin pogenitura sa,  $^{210}\text{Po}$ . Măsurătorile sunt efectuate prin spectrometrie alfa, care are o serie de avantaje în cazul probelor cu activități joase: sensibilitate înaltă, fondul intrinsec scăzut al detectorului și eliminarea posibililor interferenți prin separare chimică. De asemenea, folosirea unui traser crește fiabilitatea metodei. O sursă adecvată de poloniu trebuie să fie suficient de activă pentru a putea genera o precizie statistică adecvată și stratul de poloniu trebuie să fie subțire și distribuit omogen (Begy et al., 2015b).

Urmărind procedura dezvoltată de Edgington și Robbins (1975) pentru prepararea surselor alfa prezentată în introducere, prepararea surselor poate dura 4-5 zile. De aceea s-a dezvoltat o metodă alternativă având rezoluția similară și producând spectre bune într-o perioadă scurtă de timp. Diferențele dintre cele două metode se evidențiază în concentrațiile și cantitățile de acizi folosiți: 10 ml 35% HCl, 30 ml 6N HCl și 1.5 ml 35%  $\text{H}_2\text{O}_2$ .

Pentru testarea randamentului de extracție a poloniului s-au supus trei probe cu conținut înalt de material organic atât procedurii clasice, cât și celei îmbunătățite. După filtrare, 30-40% din masa inițială a rămas nedigerată, reziduul fiind supus procedurii clasice. Cu toate că masa reziduală a fost semnificativă, randamentul de extracție a poloniului a fost de 92%. Prin aplicarea acestei metode timpul de digestie poate fi redus la 3-4 ore.

S-a efectuat o comparare a celor două metode folosind patru materiale de referință IAEA (IAEA-447, IAEA-312, IAEA-385 și IAEA-327). Rezultatele arată că valorile obținute sunt în concordanță cu valorile certificate ale materialelor de referință. Testul de repetabilitate a fost efectuat pe șapte probe de IAEA-385, valorile obținute fiind în marja de eroare a valorii certificate.

Aplicând metoda îmbunătățită pe probe cu conținut înalt de silicați, cantitatea reziduului este înaltă și se digerează doar o fracțiune a poloniului. Nici una dintre cele două metode nu digeră cantitatea de silicați complet, introducându-se astfel o a treia metoda (5 ml 70% HF, 8 ml 65%  $\text{HNO}_3$ , 25 ml 35% HCl și 2 ml 35%  $\text{H}_2\text{O}_2$ ), aceasta având un randament de 95% pentru  $^{210}\text{Po}$ .

### III.2. $^{210}\text{Po}$ încorporat în cristalele reziduale

O altă problemă des întâlnită este  $^{210}\text{Po}$  generat din  $^{210}\text{Pb}$  absorbit pe argile, oxizi, hidroxizi și materiale organice din probe de mediu (mai ales soluri și sedimente). În circumstanțe potrivite, oxizii de mangan și fier se schimbă cu cei de plumb (care mai apoi de dezintegrează în poloniu), similar argilelor care conțin calciu și potasiu (IAEA, 2006).

Oxizii, hidroxizii și materialele organice sunt solubile în  $\text{HNO}_3$ , HCl sau  $\text{H}_2\text{O}_2$ , și  $^{210}\text{Po}$  poate fi extras cu ușurință din aceste minerale. O fracțiune a conținutului de silicați (ortosilicați) poate fi decompusă de acizi, pe când o altă fracțiune poate fi decompusă doar prin folosirea adițională a HF (Jeffery et al., 1989). Materialul organic poate fi oxidat ca  $\text{CO}_2$ . Acizii cu o rată înaltă de oxidare sunt  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{HClO}_4$  și  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , iar cei neoxidanți sunt HCl, HF, HBr și  $\text{H}_3\text{PO}_4$ .  $\text{HNO}_3$  este cel mai frecvent folosit pentru distrugerea materialului organic putând fi

aplicat pe o serie de compuși organici, sulfizi, selinuri, telururi, arseniuri, sulfoarseniuri și fosfați. În plus, poate dizolva majoritatea metalelor, cu excepția Au și Pt. Din cauza proprietăților oxidative, HClO<sub>4</sub> poate fi folosit pentru descompunerea materialelor organice și a sulfizilor. Dintre perclorații formați cei mai mulți sunt solubili în apă, excepții fiind cei de K, Rb și Cs. Având un punct de fierbere mai înalt ca HF, HNO<sub>3</sub> și HCl, poate fi folosit pentru îndepărtarea acestor acizi. H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> este folosit mai rar din cauza interferențelor produși de SO<sub>4</sub> în procedurile analitice. Apa regală (3:1 HCl:HNO<sub>3</sub>) este eficientă împotriva materialului organic, a sulfizilor de As, Se, Te, Bi, Fe și Mo, a arseniurilor, a seleniurilor, a telurilor, a sulfosărurilor, a aurului, plutoniului și plumbului nativ, a oxizilor de uraniu, a fosfaților de calciu, a celor mai multor sulfați (cu excepția baritinei) și a câtorva silicați (ex. zeoliți). Fiind un acid puternic, HCl poate dizolva carbonați, fosfați, borați și sulfați (cu excepția baritinei). HF se folosește în descompunerea materiei organice, a oxizilor, sulfizilor și silicaților. Este cel mai eficace în descompunerea legăturilor de Si-O în SiF<sub>4</sub>, care se volatilizează la încălzire. Pentru prevenirea precipitării solizilor insolubili, se poate aplica evaporarea prin HClO<sub>4</sub> (Mudroch et al., 1996).

Cea mai comună metodă pentru extragerea de <sup>210</sup>Po implică folosirea apei regale sau a unui amestec de acizi HF, HClO<sub>4</sub>, HNO<sub>3</sub> și HCl în diferite cantități și concentrații, depinzând de obiectivul analizei. Scopul este în toate cazurile furnizarea unei digestii complete sau cel puțin parțiale a probelor. Digestia folosind doar HNO<sub>3</sub> este incompletă (Card and Bell, 1985), iar folosirea HNO<sub>3</sub> și HCl este mai frecventă (Vaaramaa et al., 2010).

Efectele diferitelor proceduri de digestie asupra metodei de datare <sup>210</sup>Pb au fost determinate prin testarea a patru proceduri de digestie diferite. Reziduul obținut poate încă conține o anumită cantitate de <sup>210</sup>Po (Edgington și Robbins, 1975; Macklin Rania et al., 2014), prin urmare aceasta este redigerată prin metoda de digestie HF (Aalto și Nittroer, 2012) cunoscută pentru digestia completă a probelor.

Pentru acest studiu s-au ales zece probe de sediment lacustre cu geneze diferite din zone diferite ale României (Tabelul III.2.1)

Tabelul III.2.1 – Locațiile și caracteristicile lacurilor analizate

Locație	Lac	Geneză	Geologie
<b>Carpații Orientali, Parcul Național Munții Rodnei</b>	Lacul Buhăescu		Roci metamorfice: diferite tipuri de șist, gnais, amfiboloți, carbonați;
	Lacul Știol	lacuri glaciare	Depozite sedimentare: diferite tipuri de argilă, calcare, gresii și conglomerate.
	Lacul Muced		
<b>Carpații Orientali Centrali</b>	Lacul Sfânta Ana	lac vulcanic	Roci vulcanice: diferite dacite.
	Lacul Roșu	lac de baraj natural	Roci sedimentare: șisturi, calcare, gresii, conglomerate, andeziți, dolomiți.
<b>Estul României, Câmpia Română</b>	Lacul Sărat	lac de meandru	Depozite sedimentare: loess, gresii.
<b>Delta Dunării</b>	Lacul Merhei		
	Lacul Uzlina	lacuri deltaice	Depozite sedimentare: nisip, nămol, roci transportate de Dunăre.
	Lacul Iacob		
	Lacul Cruhlig		

Cele patru metode de digestie au fost următoarele: Benedik and Vrecek, 2001 (No1), Edgington and Robbins, 1975 (No2), Macklin Rania et al., 2014 (No3) și o metodă proprie (No4). 0.3-1 g din fiecare probă au fost supuse digestiei: cu 0.3 ml de traser <sup>209</sup>Po și fără traser, pentru a evita contaminarea reziduului. Sumarul acizilor folosiți este vizibil în Fig. III.2.1.

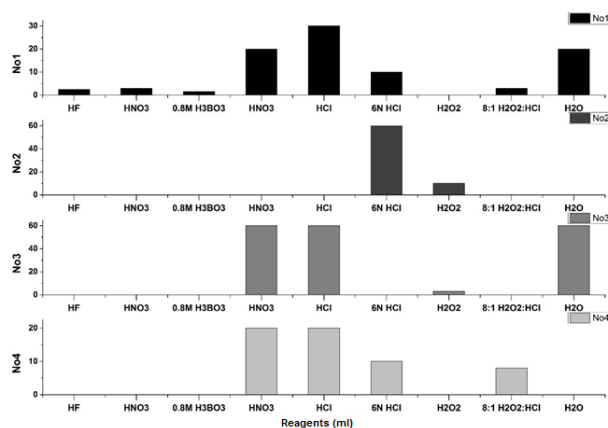


Fig. III.2.1 – Sumarul acizilor folosiți

Rezultatele arată că doar probele din unul din lacuri (Lacul Muced) pot fi supuse digestiei complete prin toate metodele, deoarece acesta se află într-o stare incipientă de turbărie.

Procentul maselor digerate pentru fiecare probă arată că metoda No1 furnizează o digestie completă, care nu depinde de compoziția minerală a probelor. A doua cea mai bună metodă este No3: cea mai mică cantitate de sediment rămânând după lacul vulcanic (13%), urmată de lacurile glaciare (32%), iar cea mai mare cantitate de reziduu rămânând în cazul lacurilor deltaice (57%). Cea mai mare cantitate de reziduu a rămas după aplicarea metodei No2 (61%).

Activitatea totală a probelor a fost calculată din suma activităților rezultate din procedura de digestie și din digerarea cantității de reziduu prin metoda HF (No1). Rezultatele obținute prin metoda No1 sunt considerate a fi digerate complet și activitățile obținute prin celelalte metode sunt comparate cu acestea. Fără digestia reziduului, metoda No3 furnizează o digestie de 73%, No2 de 56% și No4 de 59%. 28% din fracțiunea de  $^{210}\text{Po}$  rămasă în structura cristalină a mineralelor rămâne după metoda No4, 23% după No3 și 21% după No2 (Fig. III.2.2). După aplicarea modelului CRS pe probele de sediment, este vizibilă o variație medie de 9% în vârste comparativ cu metoda HF, aceasta fiind sub nivelul de confidență 2σ a activităților măsurate.

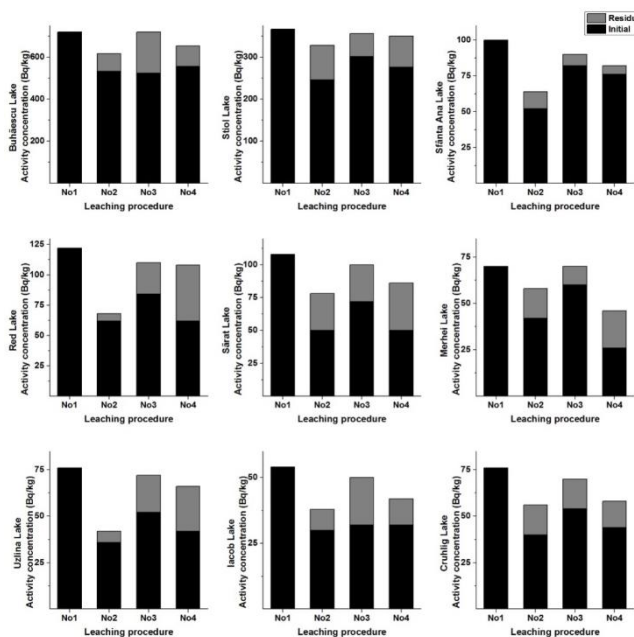


Fig. III.2.2 – Activitățile după fiecare metodă de digestie

## IV. STUDII DE DATARE

Din cauza surselor sale,  $^{210}\text{Pb}$  este distribuit prin circulație atmosferică și este depozitat pe suprafața Pământului prin precipitații. Solurile, sedimentele, zăpada, gheața și rezervoarele de apă colectează  $^{210}\text{Pb}$ , furnizând informații despre schimbările de mediu pe o perioadă de până la 200 ani (Walling and He, 1999a,b; Walling et al., 2003; Mabit et al., 2008).

Unul din cei mai importanți parametri ai ciclului  $^{210}\text{Pb}$  în mediu este fluxul atmosferic al acestuia, care poate varia între  $0.1 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$  și  $360 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$  (Mabit et al., 2014). Depunerea  $^{210}\text{Pb}$  pe suprafața Pământului este mai mare în cazul continentelor decât în cea a oceanelor și variază sezonally, depinzând de longitudine, de condiții meteorologice și geologice.

### IV.1. Contaminarea cu $^{137}\text{Cs}$ în regiunea Transilvaniei(România) după accidentul Centralei Nucleare de la Chernobîl

$^{137}\text{Cs}$  este un radionuclid artificial care provine din testele de arme nucleare și din accidentele nucleare. S-au măsurat valori pentru inventarul atmosferic al acestui izotop în timpul accidentului nuclear de la Cernobîl și s-au raportat valori de peste  $1480 \text{ kBq m}^{-2}$  în proximitatea accidentului (De Cort et al., 1998). Până în anul 2017 aceste valori s-au înjumătățit, deoarece nu au fost raportate noi surse în ultimii 30 de ani pe teritoriul Europei. În acest studiu s-au efectuat măsurători ample de  $^{137}\text{Cs}$  în centrul, nordul și vestul României pentru a stabili distribuția acestui radioizotop după un timp de înjumătățire de la accidentul nuclear.

S-au eșantionat în total 153 probe de sol din regiunea Transilvaniei: Carpații Orientali (14-34), Podișul Transilvaniei (1-13; 50-61; 105-124), Carpații Meridionali (35-49) și două campanii de prelevare care includ probe din toată regiunea Transilvaniei (62-104, 125-153) (Fig. IV.1.1). În plus, 13 probe au fost din zona ganiței Moldovei cu Ucraina și din Delta Dunării pentru comparare.

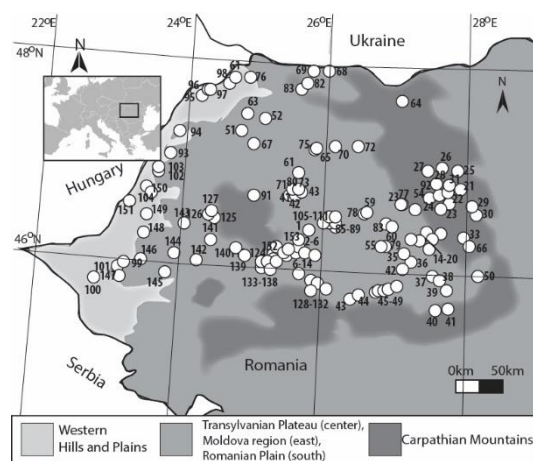


Fig. IV.1.1 – Locațiile probelor de sol

Depunerea radioactivă cauzată de accidentul nuclear de la Cernobîl a fost în principiu una uscată și distribuită uniform pe zona afectată, însă din cauza depunerilor umede au avut loc și cazuri izolate de concentrații crescute (De Cort et al., 1998). Datele  $^{137}\text{Cs}$  obținute ale activităților au fost în intervalul  $0.4 \pm 0.1$  și  $301.1 \pm 3.0 \text{ kBq m}^{-2}$ . Media aritmetică a valorilor a fost de  $20.5 \text{ kBq m}^{-2}$ , iar cea geometrică de  $8.3 \text{ kBq m}^{-2}$ . S-au observat două hotspot-uri: Iezeru-Ighiel (I) și Tulgheș (II) (Fig. IV.1.2). Locația acestora este în concordanță cu direcția de propagare a norului radioactiv, aceasta fiind una sud-vestică.

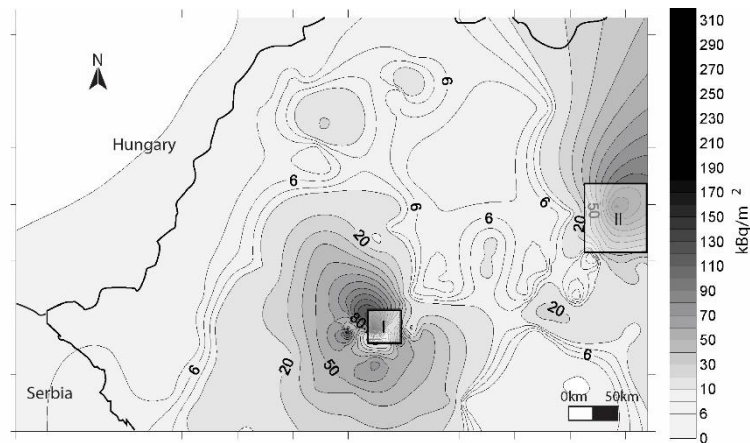


Fig. IV.1.2 – Distribuția activităților de  $^{137}\text{Cs}$

Considerând geomorfologia Transilvaniei, această regiune poate fi clasificată în trei sub-regiuni: Dealurile și Câmpia de Vest, Podișul Transilvaniei și Carpații. Aceste zone sunt bine diferențiate, luând în considerare altitudinile medii și cantitățile anuale medii de precipitații. Dealurile și Câmpia de Vest sunt caracterizate prin cele mai mici valori de  $^{137}\text{Cs}$  ( $2.6 \pm 0.1 \text{ kBq m}^{-2}$ , cu valori în intervalul  $0.4\text{-}6.3 \text{ kBq m}^{-2}$ ). Valorile caracteristice Podișului Transilvaniei sunt cuprinse între  $0.4\text{-}78.3 \text{ kBq m}^{-2}$ , cu o medie geometrică de  $6.0 \pm 0.1 \text{ kBq m}^{-2}$ . Media geometrică pentru Munții Carpați a fost de  $18.3 \pm 0.6 \text{ kBq m}^{-2}$ , cu o minimă de  $0.7 \text{ kBq m}^{-2}$  și o maximă de  $301.1 \text{ kBq m}^{-2}$ . Cele mai joase valori s-au observat în Carpații Meridionali ( $0.7\text{-}84.2 \text{ kBq m}^{-2}$ ). Carpații Orientali și Occidentali au prezentat valori medii mai înalte:  $12.0 \text{ kBq m}^{-2}$  ( $2.2\text{-}124.0 \text{ kBq m}^{-2}$ ) și, respectiv,  $28.9 \text{ kBq m}^{-2}$  ( $5.8\text{-}301.1 \text{ kBq m}^{-2}$ ).

Luând în considerare zonele cardinale, se poate observa că zona sudică a Transilvaniei a primit cea mai mare cantitate de  $^{137}\text{Cs}$  (în medie  $16.3 \text{ kBq m}^{-2}$ ), pe când zonele nordice și vestice au fost mai puțin expuse ( $2.9 \text{ kBq m}^{-2}$ ). Analizând probele în funcție de expunerea versanților se poate observa că cele cu expunere estică au fost expuse la o medie de  $27.8 \text{ kBq m}^{-2}$ , iar cele sud-vestice, nordice, vestice și sud-estice the south-western au arătat medii de  $11.5\text{-}14.7 \text{ kBq m}^{-2}$ , cele mai joase valori înregistrându-se pe versanții cu expunere sudică, nord-vestică și nord-estică ( $6.9\text{-}7.9 \text{ kBq m}^{-2}$ ).

## IV.2. Fluxul atmosferic, transportul și balanța masică de $^{210}\text{Pb}$ și $^{137}\text{Cs}$ (Begy et al., 2017)

Din cauză că fluxul și inventarul de  $^{210}\text{Pb}$  sunt două din principalii parametri pe care se bazează metoda  $^{210}\text{Pb}$ , s-au calculat fluxurile și inventarele de  $^{210}\text{Pb}$  și  $^{137}\text{Cs}$ . S-au analizat depunerile de radioizotopi din carote de sediment și turbă din șase regiuni ale României. Din cauză că s-a presupus că în regiunile sud-estice ale României s-a depus o cantitate mai mică din izotopii de interes, s-au comparat cele două regiuni (Fig. IV.2.1). Distribuția spațială a radionuclidului  $^{210}\text{Pb}$  a fost analizat în lunca lacului Roșu.



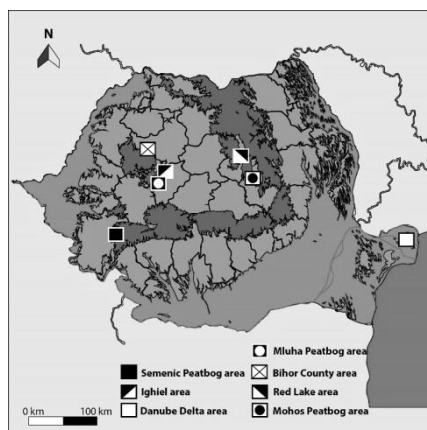


Fig. IV.2.1 – Punctele de prelevare

Rezultatele arată că distribuția fluxului de  $^{210}\text{Pb}$  înregistrează valori maxime în zona turbării Semenic, din cauza prezenței apelor termale și a faliiilor transversale caracteristice zonei. Valorile scad spre estul și nordul țării (Fig. IV.2.2).

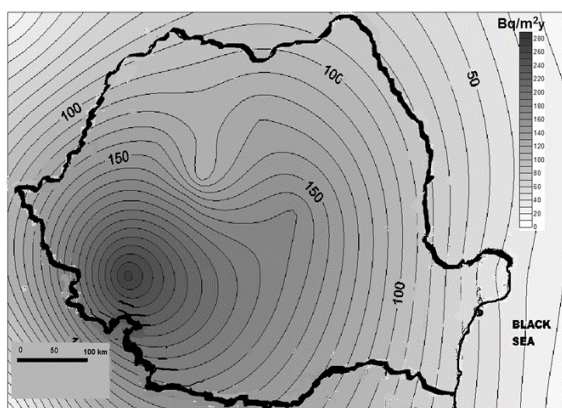


Fig. IV.2.2 – Harta fluxului de  $^{210}\text{Pb}$  al României

Transportul și balanța masică de  $^{210}\text{Pb}$  al Lacului Roșu arată că zona sudică a acestui lac este expus la fluxuri considerabil mai mari de  $^{210}\text{Pb}$ , cu valori maxime de  $628 \pm 94 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ . Valoarea minimă ( $126 \pm 29 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ ) se înregistrează în brațul estic al lacului, unde schimbul de apă este foarte rapid din cauza distanței mici pe care o parcurge apa (440 m). Din această cauză depunerea  $^{210}\text{Pb}$  este limitată. Media fluxului măsurat în sedimente ( $309 \pm 48 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ ) este de 2.4 ori mai mare ca depunerile atmosferice de  $^{210}\text{Pb}$  ( $129 \pm 2 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ ) și doar 0.84% din fluxul de  $^{210}\text{Pb}$  măsurat în bazinul hidrografic ajunge în sediment.

### IV.3. Studii de datare aplicate pe Delta Dunării

Fiind una din cele mai mari lunci ale Europei, Delta Dunării este alcătuită din sute de lacuri. Caracteristicile acestora sunt influențate de fluxurile sezoniere și interanuale ale apelor cauzate de canale de transport, inundații și curgeri de apă subvegetale. Variabilitatea condițiilor în lacuri duce la diferențe în comunitățile de floră și faună (Oosterberg et al., 2000; Buijse et al., 2002). În plus, habitatele naturale sunt expuse la factori de stres antropici cum ar fi eutrofizarea (Coops et al., 1999) și impactele geomorfologice, în special din anul 1970, din cauza construcției de diguri și baraje, pescuit, activități agricole (Cremer et al., 2004) și apă contaminată. Circulația apei în deltă este complexă, deoarece se leagă o serie de canale majore și minore, având nivele de apă variabile în timp și spațiu datorită factorilor precum precipitațiile, evaporația, inundațiile și

secetele periodice. Dinamica este influențată și de procesele de eroziune și sedimentare care sunt capabile să formeze peisajul.

Influențele antropice au fost întotdeauna prezente în zona Deltei Dunării. În trecut activitățile tradiționale precum vânatul, pescuitul, horticultura, apicultura etc. au avut loc în limitele capacității ecologice a sistemului. În ultimele decenii însă, aceste activități au crescut și au devenit dominante, unele dezvoltându-se pe scară industrială (WWF, 2007).

Dunărea este reglementată prin sute de baraje și rezervoare, dintre care peste 150 sunt construite pe teritoriul României. Aceste rezervoare stochează în prezent până la  $22 \cdot 10^9 \text{ m}^3$  de apă. Barajele construite pe afluenții Dunării reduc cantitatea de sediment considerabil, captându-o în rezervoare (Constantinescu et al., 2015). Înaintea construcției a barajelor de după 1950 pe râurile Jiu, Olt, Argeș, Ialomița și Siret acestea au furnizat o treime din cantitatea de sediment, după care aportul de sediment a scăzut cu 69% în cazul Râului Jiu, cu 67% în cazul Râului Argeș și în cu 48% în cazul râurilor Siret și Prut (Rădoane, 2008). În plus mai mult de 600 de baraje au fost construite pe afluenții din Bulgaria după al Doilea Război Mondial. Descărcarea de sedimente a scăzut la 9.1% din cantitatea originală ( $4.4 \cdot 10^6 \text{ t an}^{-1}$ ) (Levashova et al., 2004) și materialul suspendat este cu 60% mai puțin decât în condițiile anterioare (McCarney-Castle et al., 2012). Cu toate acestea impactul major asupra depunerii de sedimente au avut-o construcția barajelor și a hidrocentralelor Porțile de Fier I și II, care combinate cu celelalte structuri reglatoare au redus cantitatea de sediment de la  $1846 \text{ kg s}^{-1}$  (1840-1970) la  $962 \text{ kg s}^{-1}$  (1971-2000) (Bondar, 2008).

Pentru acest studiu s-au prelevat în total 13 probe de sediment din trei lacuri: Lacul Merhei (ME15, ME16, MEII19, MEII20 și MEII21), Lacul Matia (MA18, MA20 și MAII17) și Lacul Cruhlig (CR1, CR2, CRII1, CRII2 și CRII3). Localizarea lacurilor și a punctelor de prelevare este vizibilă în Fig. IV.3.1. și Fig. IV.3.2.

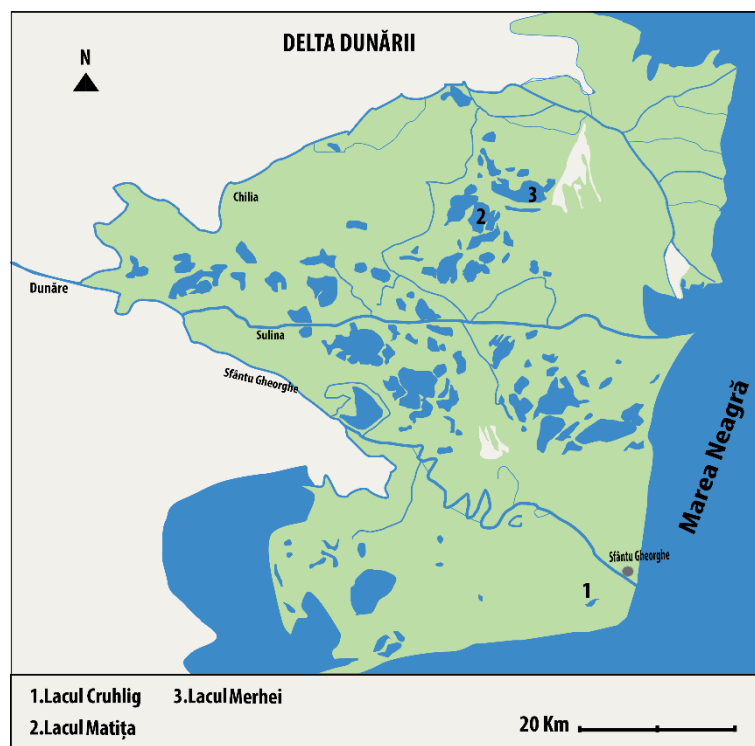


Fig. IV.3.2 – Localizarea lacurilor

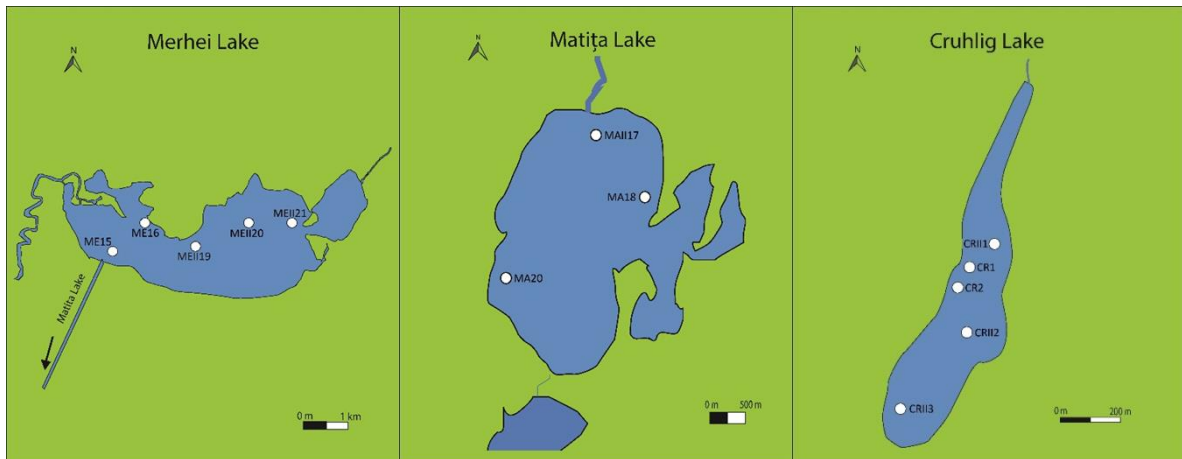


Fig. IV.3.2 – Localizarea punctelor de prelevare

Următoarele patru subcapitole se axează pe patru posibile cauze ale schimbărilor ratelor de sedimentare în zona deltei. Pe parcursul ultimelor decenii au fost raportate o serie de inundații cu debite extrem de mari, care sunt în stare de a schimba morfologia lacurilor prin erodarea și depunerea unor cantități semnificative de sediment. Variațiile în granulometrie și în compoziția sedimentelor poate fi datorată existenței unei activități eoliene puternice, care poate genera un adaos de material depus. Un surplus de material organic poate fi datorat și eutrofizării. Activitățile antropice, în special construcția de baraje, pot limita aportul de sediment și pot duce la procese de eroziune de-a lungul principalelor cursuri de apă.

### **Inundații**

Debitul multianual al Dunării se schimbă constant, depinzând de perioada luată în considerare. Media multianuală pentru ultimii 122 ani a fost de  $5420 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  la stația hidrometrică de la Orșova. În general fluxul minim al Dunării se înregistrează la începutul primăverii, în toamnă sau iarnă și cele mai scăzute debite sunt măsurate în perioada iernii când temperaturile sunt joase și formarea gheții este mare. În perioada 1965-2012 s-au înregistrat 24 inundații cu debite mai mari de  $10,000 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ . Aceste valori au fost măsurate la stația Baziaș și sunt rezumate în *Tabelul IV.3.1*.

Cele trei lacuri analizate nu sunt în aceeași măsură influențate de inundațiile sus menționate. Complexul Matia-Merhei este susceptibil la o serie dintre acestea, ambele lacuri analizate având câte șase canale de alimentare și ca rezultat o circulare complexă a apei. Inundațiile din ultimii 10-15 ani sunt vizibile în ratele de sedimentare crescute ale fiecărei carote și partea estică a sistemului lacustru a primit o cantitate mare de sediment în perioada 1976-1988, când au avut loc 8 inundații majore. Conform ratelor de sedimentare ale lacului Merhei, partea vestică a lacului (ME15 și ME16) primește o cantitate de sediment cu o ordine de mărime mai mică și nu este expusă la aporturi mari de sediment. Pe de altă parte, carotele situate în estul lacului arată variații mai mari și sedimentări semnificativ crescute pentru ultimii 30 de ani.

Lacul Cruhlig, fiind cel mai izolat dintre lacurile analizate, este situat în sudul Deltei Dunării la sud de brațul Sf. Gheorghe. În partea nordică a lacului, atât la malul estic cât și la cel vestic (CR1, CR2 și CRI1), se pot detecta inundațiile de înainte de anul 1970. Acestea au schimbat albia lacului în așa fel încât CRI1 și CRI3 primesc de două ori mai mult sediment decât înaintea construcției centralei hidroelectrice Porțile (Begy et al., 2016b), partea sudică a lacului fiind mai expusă la inundațiile din anii optzeci și nouăzeci. Distribuția spațială a

ratelor de sedimentare reflectă distribuția depunerii de sediment spre malul estic, unde depunerile de sediment sunt de 7.25 ori mai mari pentru punctele CRII1 și CRII3 (Begy et al., 2016b).

Tabelul IV.3.1 – Debite maxime (ANAR, 2012)

Nr.	Anul	Debit maxim ( $m^3 s^{-1}$ )
1	1965	12,250
2	1966	10,810
3	1967	11,050
4	1968	10,500
5	1970	13,040
6	1974	12,100
7	1975	12,150
8	1976	11,400
9	1977	12,200
10	1979	10,900
11	1980	11,900
12	1981	14,800
13	1982	10,500
14	1987	11,610
15	1988	12,690
16	1998	10,280
17	1999	11,100
18	2000	12,000
19	2004	10,800
20	2005	12,900
21	2006	15,800
22	2009	10,700
23	2010	13,350
24	2011	10,200

#### Existența unei surse de sediment exterioare

Similaritățile dintre conținutul de apă, porozitate, densitate și LOI (Fig. IV.3.3), lipsa picurilor în concentrațiile de  $^{210}Pb$  total și scăderea lentă în concordanță cu vârstele în cazul carotelor MEII19, MEII20 și MEII21 prelevate din lacul Merhei duc la concluzia existenței unei surse exterioare de sediment.

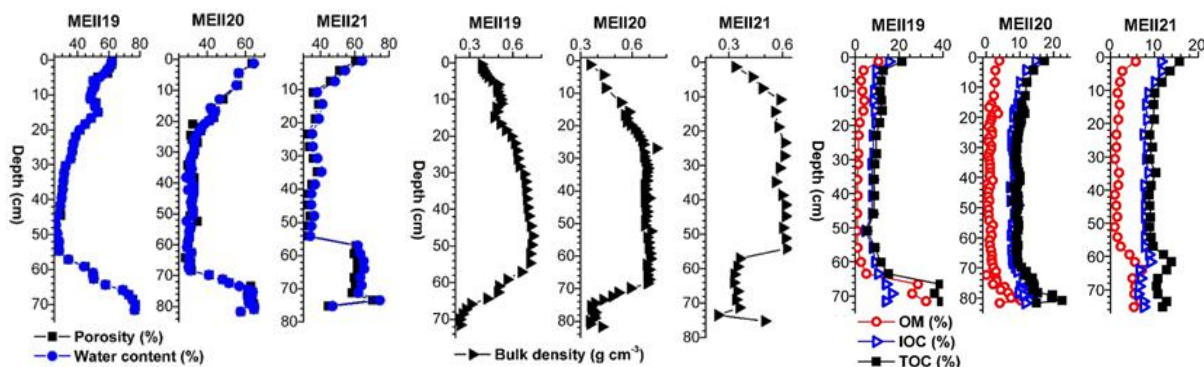


Fig. IV.3.3 – Conținutul de apă, porozitatea, densitatea și valorile LOI ale carotelor analizate

S-au efectuat măsurători granulometrice pentru a determina dacă sunt similarități în distribuția granulelor carotelor și pentru a vedea dacă există o corelație între cele trei carote. Rezultatele obținute se pot vedea în Fig. IV.3.4.

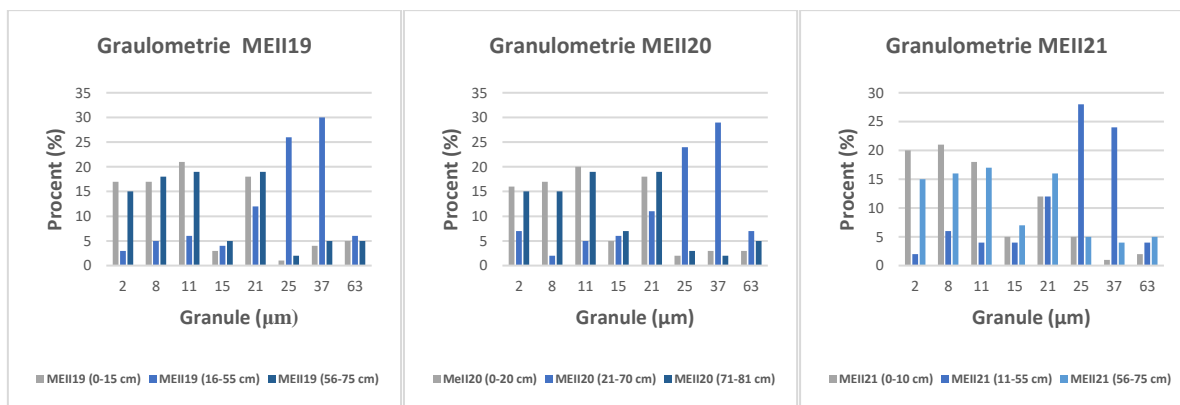


Fig. IV.3.4 – Granulometria carotelor analizate

Datele obținute arată că distribuția granulelor din primele și ultimele secțiuni ale carotelor sunt în concordanță și că distribuția granulelor este similară în cele trei carote, dovedind astfel că secțiunile de mijloc au aceeași sursă.

Grindul Letea s-a format când brațele Sf. Gheorghe și Sulina ale Dunării au construit loburi dominate de valuri cauzate de deplasarea mării (Gioșan et al., 2005) și este una din cele mai mari forme de relief eolian din zona Mării Negre (Preoteasa et al., 2009). Este compus din nisipuri clastice și are o contribuție locală din afluenții secundari ai brațului Sulina. Zonele sale exterioare sunt caracterizate prin nisipuri (predominant mica și cuarț) cu mărimi <0.20 mm și nisipuri marine cu mărimi de 0.22-0.26 mm (Preoteasa, 2008; Vespremeanu-Stroe et al., 2016). Vânturile caracteristice sunt din direcția nordică cu o distribuție bimodală de NV-NE (Preoteasa and Vespremeanu-Stroe, 2004) care se schimbă pe perioada lunilor de vară în S-SE (Giosan et al., 1999). Viteza medie a vântului este de 5-6.5 m s<sup>-1</sup> (Giosan et al., 1999). Ultima activitate eoliană care a profilat relieful a avut loc cu 240-70 ani în urmă (Preoteasa et al., 2009).

Având în vedere ultima activitate eoliană intensă, direcțiile de vânt predominante și granulometria raportată în literatura științifică, depunerile din secțiunile mijlocii ale carotelor ar putea avea originea din grindul Letea.

### ***Eutrofizarea***

Eutrofizarea deltei a dus la schimbări în floră și faună (în special în cazul peștilor) (Buijse et al., 2002). Aceasta problemă este mai accentuată vara când se regăsesc concentrații mai înalte de N și P (o cantitate semnificativă provenind din poluanți) și algele reduc capacitatea de penetrare a luminii. Cu toate acestea, eutrofizarea din anii 1960 a fost remediată complet și acest fenomen nu are în prezent impact pe lacurile analizate (Gastescu, 2009).

Din lacurile analizate o singură carotă prezintă un conținut mai înalt de material organic: MA18 din vestul lacului Matiaș. Materia organică are o pondere de 10% în medie pe toată lungimea carotei. Conform Oosterberg et al. 2000, zona de eșantionare a acestei carote este caracterizată prin vegetație acvatică scufundată și ape turbide. Unele carote din lacul Merhei (ME15 și MEI19) prezintă secțiuni cu cantități crescute de material organic, cauzat de vegetația acvatică plutitoare și scufundată temporal observabilă (Oosterberg et al., 2000).

### ***Influențe antropice – construirea barajelor***

Printre numeroasele construcții antropice din bazinul Dunării, cea mai importantă este construirea barajului Porțile de Fier. Implementarea sistemului hidroelectric și navigațional Porțile de Fier pe Râul Dunăre a fost bazată pe acordul dintre România și Iugoslavia din 1963 care a avut ca urmare construirea Porților de Fier I

în 1972 (localizată la km 942 al Dunării) și a Porților de Fier II în 1986 (la 68 km aval). Sistemul inferior este alcătuit din două baraje: una pe brațul principal al Dunării la km 862 și celălalt pe brațul secundar Gogoșula km 875, cele două baraje fiind separate de insula Ostrovul Mare.

Aria totală de drenaj în amonte de Porțile de Fier I este de 577,000 km<sup>2</sup>, reprezentând 250-300 km din râul Dunăre. Fluxul anual de apă al Dunării este de 110-220 10<sup>9</sup> m<sup>3</sup>, cu descărcări zilnice de 1500-15000 m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup>. Sedimentul suspendat este cuprins între 10<sup>-3</sup>-10<sup>-1</sup> kg m<sup>-3</sup>, iar volumul de sediment care intră în rezervor este de 7-30 10<sup>6</sup> t an<sup>-1</sup> (Laszlo, 2007).

Barajele au întrerupt transportul natural de sedimente al Dunării. Barajele Porțile de Fier rețin cca. două treimi din solizii suspendați. Din această cauză sedimentele transportate în deltă au scăzut de la 53 la 18 10<sup>6</sup> t an<sup>-1</sup> (Dutu et al., 2014), având ca urmare în eroziuni severe ale coastelor (Sommerwerk et al., 2009).

O reducere semnificativă a fluxului de sedimente este vizibilă după construirea Porților de Fier (Opreanu, 2010). Probele prelevate în amonte de Porțile de Fier I și în aval de Porțile de Fier II indică eroziuni de sediment, iar cele prelevate din rezervoarele celor două baraje atestă depuneri de sedimente. Trebuie menționat că cantitatea de sediment depusă în rezervorul porților de Fier II este mai mică, deoarece majoritatea este reținută de primul baraj (Opreanu et al., 2007).

Presupunând că trebuie să fie o scădere observabilă în ratele de sedimentare după implementarea celor două lacuri, s-au analizat ratele de sedimentare de dinainte și de după 1972. Cu toate acestea, delta este un mediu dinamic unde creșterile și scăderile ratelor de sedimentare nu pot fi atribuite unui singur eveniment ci a sumei mai multor evenimente care au loc în bazinul hidrografic al Dunării. *Tabelul IV.3.2* prezintă ratele de sedimentare dinaintea (1940-1972) și de după (1972-1983) construirea Porților de Fier. Tendințele crescătoare sunt marcate cu albastru, iar cele descrescătoare cu roșu.

*Tabelul IV.3.2 – Ratele de sedimentare medii de dinaintea și de după construirea Porților de Fier*

Lacul	Carota	Sedimentarea masică (g cm <sup>-2</sup> an <sup>-1</sup> )		Sedimentarea lineară (cm an <sup>-1</sup> )	
		Înainte de 1972	După 1972	Înainte de 1972	După 1972
Matița	MA18	0.21	<b>0.38</b>	0.22	<b>0.41</b>
	MA20	0.29	<b>0.58</b>	0.32	<b>0.69</b>
	MAII17	0.14	<b>0.27</b>	0.30	<b>0.45</b>
Merhei	ME15	0.10	0.11	0.32	0.32
	ME16	0.04	0.02	0.17	0.14
	MEII19	0.84	<b>0.53</b>	1.20	<b>0.67</b>
	MEII20	0.22	0.23	0.27	<b>0.44</b>
	MEII21	0.17	<b>0.26</b>	0.41	<b>0.55</b>
Cruhlig	CR1	0.10	<b>0.07</b>	0.63	<b>0.20</b>
	CR2	0.09	<b>0.05</b>	0.59	<b>0.22</b>
	CRIII1	0.45	<b>0.11</b>	0.30	<b>0.21</b>
	CRII2	0.28	<b>0.14</b>	0.10	<b>0.08</b>
	CRII3	0.26	<b>0.12</b>	0.18	<b>0.14</b>

Dintre lacurile analizate, lacul Matița este singurul lac care prezintă o creștere vizibilă după 1972, valorile crescând de 2 ori pentru ambele tipuri de sedimentări. Acest lucru înseamnă că lacul nu a fost afectat de retenția de sediment al Porților de Fier sau că au avut loc multiple fenomene de depunere și transport în zona lacului. Tendințele de sedimentare sunt similare în lacul Merhei: sedimentarea arată creșteri pentru carotele MEII20 și MEII21. Probele din zona vestică a lacului arată valori constante pentru ambele perioade.

Lacul Cruhlig a fost influențat prin scăderea ratelor de sedimentare, din cauza poziției sale izolate: cea masică a scăzut cu o medie de 54% și cea lineară cu 56%. Cel mai afectat este punctul CRIII1 cu o scădere de

75.25%, fiind situat în vecinătatea canalului care leagă lacul de brațul Sf. Gheorghe. CR2, CRII2 și CR3 arată scăderi similare (de 51.48%, 51.25% și 54.92%), pe când CR1 este cel mai puțin afectat (Begy et al., 2016b).

#### IV.4. Influențe antropice pe ratele de sedimentare ale lacurilor situate în zone geografice diferite (Simon et al., 2017)

Pentru acest studiu s-au ales patru lacuri din zone diferite ale României (Fig. IV.4.1). Două dintre acestea sunt situate în regiunea Carpaților având geneze diferite: Lacul Sf. Ana este format în craterul unui vulcan inactiv și este alimentat doar de scurgeri de suprafață (o carotă: SzA), pe când celălalt lac – Lacul Roșu – a fost format prin colapsul unui versant pe parcursul unei alunecări de teren (șase carote: trei din lacul în sine: LR3, LR4 și LR5, și trei din lacul acestuia de baraj: G1.1, G1.2 și G1.3), unul este un lac artificial de retenție din Podișul Transilvaniei: Lacul Vârșolț (o carotă: VIC), iar cel de-al patrulea este un lac caracterizat prin schimbări dinamice din zona Deltei Dunării: Matița (trei carote: MA18, MA20 și MA117).

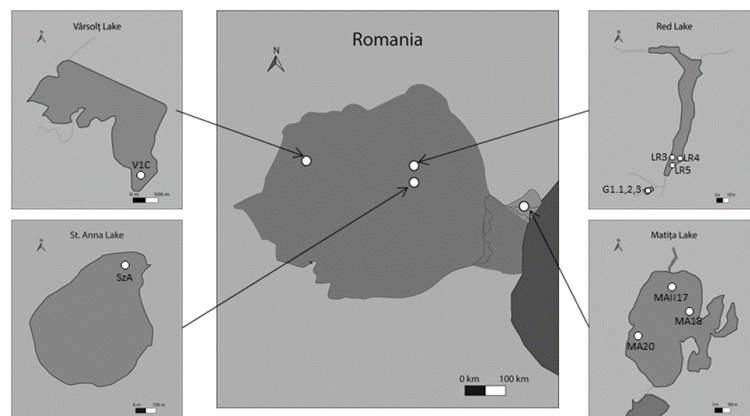


Fig. IV.4.1 – Locațiile carotelor prelevate

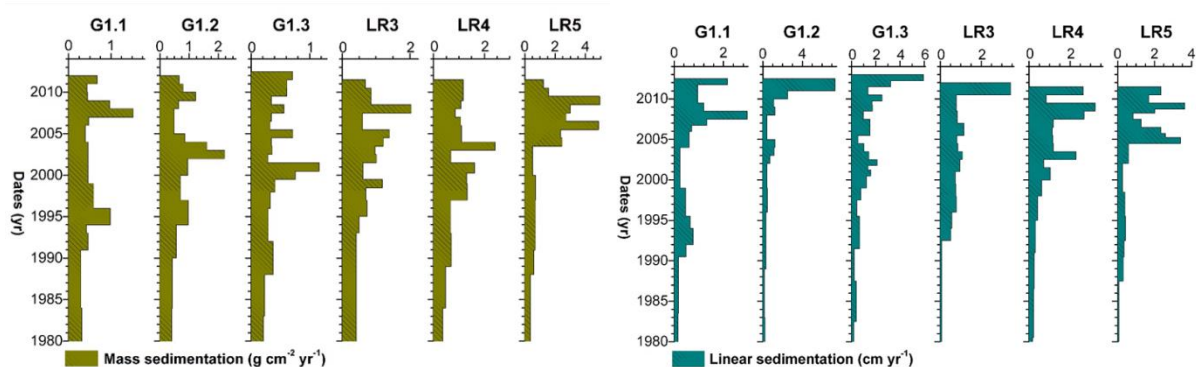
Toate aceste lacuri au fost analizate folosind metoda  $^{210}\text{Pb}$ , accentul punându-se pe ultimii 30 de ani. O serie de evenimente antropice influențează schimbarea ratelor de sedimentare, printre care se numără practicile agricole, industrializarea, urbanizarea dramatică și creșterea defrișărilor în ultimele decenii. După revoluția din anul 1989 cetățenii și-au primit înapoi pământurile, și, în anumite cazuri oamenii au început defrișări neautorizate care au alterat ciclul hidrologic. Navigarea lacustră poate fi deasemenea o sursă potențială a poluării chimice și fizice împreună cu turismul necontrolat – acesta fiind caracteristic în special Lacului Sf. Ana și Lacului Roșu (Gomoiu, 1996). Delta Dunării a fost influențată major de construcții hidrotehnice – în special de construcția hidrocentralei și sistemului de navigare Porțile de Fier construite în perioada 1972-1978 și în special de Porțile de Fier I. Acestea au captat o cantitate de sediment mare de la deltă împreună cu multiplele canale, baraje și diguri construite pentru alterarea curgerii naturale a apei. Concentrația de sediment suspendat în Dunăre este de  $10^{-3} - 10^{-1} \text{ kg m}^{-3}$ , iar cea de sediment de  $7 - 30 \cdot 10^6 \text{ tone an}^{-1}$  (BabicMladenovic et al., 2013). Pescuitul excesiv poate duce de asemenea la afectarea echilibrului natural al lacurilor (Sakan et al., 2011; Vukovic et al., 2014).

În cazul lacului Roșu ratele de sedimentare au început să crească la începutul anilor nouăzeci în cazul lacului de baraj de aproximativ 2 ori, iar pentru lacul în sine de 3 ori (Fig. IV.4.2). Zona estică a lacului arată tendințe crescătoare (de la  $0.38 \pm 0.04 \text{ g cm}^{-2}\text{an}^{-1}$  la  $1.76 \pm 0.21 \text{ g cm}^{-2} \text{an}^{-1}$ ) până la sfârșitul anilor nouăzeci, urmate de o serie de perioade cu sedimentări scăzute și crescute. Valori remarcabile sunt observate între anii 2000-2009, când valorile cresc de 4 ori față de cele din perioada anterioară. În cazul lacului de baraj sunt observabile valori relativ constante de  $0.33 \pm 0.04 \text{ g cm}^{-2} \text{an}^{-1}$  până în anii nouăzeci. Begy et al. (2009b) au găsit



o medie de  $1.32 \pm 0.31 \text{ g cm}^{-2} \text{ an}^{-1}$  și , respectiv,  $1.68 \pm 0.43 \text{ cm an}^{-1}$  pentru perioada 1991-2009. Perioada din urmă, cu ratele de sedimentare crescute, este atribuită cantității crescute de sediment suspendat și defrișărilor din bazinul hidrografic, care duc la eroziuni accentuate ale solului.

Tendențe similare pot fi observate în ratele de sedimentare ale Lacului Sfânta Ana (*Fig. IV.4.3*): sedimentarea incipientă de  $0.06 \pm 0.01 \text{ g cm}^{-2} \text{ an}^{-1}$  din 1980 se dublează ( $0.11 \pm 0.01 \text{ g cm}^{-2} \text{ an}^{-1}$ ) până în 2002, valoarea maximă de  $0.16 \pm 0.02 \text{ g cm}^{-2} \text{ an}^{-1}$  înregistrându-se în perioada 2002-2005.



*Fig. IV.4.2 – Sedimentarea masică și lineară a Lacului Roșu și a lacului său de baraj*

Atât Lacul Roșu, cât și lacul Sf. Ana sunt afectate de defrișări masive în perioada 2000-2006, când 4295 ha de pădure au fost tăiate în județul Harghita, din care 33.34 ha se află în bazinul hidrografic al Lacului Roșu. Potrivit Enea et al., 2012, eroziunea solului în bazinul hidrografic al Lacului Roșu a avut valori de  $0.83 \text{ tone ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ , până la  $1.14 \text{ tone ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ , cu valori izolate, extreme de  $5.28 \text{ tone ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ . Sursele defrișărilor sunt adesea aproape de bazinele hidrografice (amonte, în zone ascunse) ale râurilor principale și butucii sunt transportați ilegal pe cursurile de apă. Autoritățile locale au remarcat posibilitatea colmatării lacului și au construit trei baraje pe pârâurile Oii, Roșu și Licaș în anii 1960 pentru a reține aluviunile crescute ale lacului Roșu. Acestea au o capacitate relativ mică în comparație cu Lacul Roșu, două dintre ele ajungându-și capacitatea maximă de retenție. Un factor minor în creșterea ratelor de sedimentare este lipsa rădăcinilor în zonele defrișate, granulele putând ajunge în albia râurilor prin scurgeri de suprafață cauzate de precipitații, vânt, de topirea zăpezii etc. (Gancz et al., 2014).

Lacul Matia își primește aportul de sediment printr-o serie de canale și face parte dintr-un sistem de lacuri (*Fig. IV.4.3*). MA117 este situat în partea nordică a lacului la gura principalului canal de alimentare, transportul de sediment fiind mai accentuat aici decât depunerea acestuia. Aceasta poate explicarea de sedimentare relativ constante de  $0.35 \pm 0.03 \text{ g cm}^{-2} \text{ an}^{-1}$  până în 2006, precedată de o creștere de 7 ori. Valoarea maximă este vizibilă în perioada 2009-2010. Punctul vestic MA18 arată valori excepționale ( $1.59 \pm 0.21 \text{ g cm}^{-2} \text{ an}^{-1}$ ) pentru perioada 1980-1984, urmate de sedimentări relativ constante cu o medie de  $0.59 \pm 0.06 \text{ g cm}^{-2} \text{ an}^{-1}$  până în 2005. Valoarea maximă ( $3.14 \pm 0.42 \text{ g cm}^{-2} \text{ an}^{-1}$ ) este vizibilă în 2012. Perioadele de sedimentare ale punctului MA20 (estul lacului) se pot separa în două perioade: prima fiind 1980-1996, cu o medie de  $0.52 \pm 0.06 \text{ g cm}^{-2} \text{ an}^{-1}$ , iar a doua 1998-2012 cu media de  $1.16 \pm 0.21 \text{ g cm}^{-2} \text{ an}^{-1}$ .

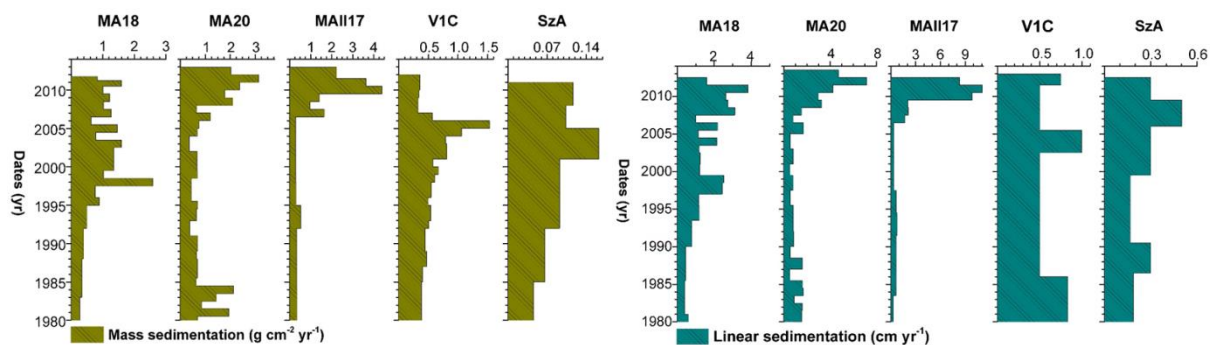


Fig. IV.4.3– Sedimentarea masică și lineară alacurilor Matia, Sf. Ana și Vârșolț

Este vizibilă tendință de creștere a ratelor de sedimentare în cazul lacului Vârșolț până în anul 2006, media fiind de  $0.53 \pm 0.05 \text{ g cm}^{-2} \text{ an}^{-1}$ . În perioada 2006-2007 sedimentările sunt maxime:  $1.53 \pm 0.18 \text{ g cm}^{-2} \text{ an}^{-1}$ , deoarece debitul solizilor a avut cea mai mare medie anuală ( $15.31 \text{ kg s}^{-1}$ ) (Moigrădean, 2013). Aceasta este urmată de o perioadă constantă de  $0.39 \pm 0.04 \text{ g cm}^{-2} \text{ an}^{-1}$ . Sedimentarea lineară arată trei maxime: 2010-2011 ( $0.75 \pm 0.08 \text{ cm an}^{-1}$ ), 2002-2004 ( $1.02 \pm 0.12 \text{ cm an}^{-1}$ ) și 1980-1984 ( $0.83 \pm 0.09 \text{ cm an}^{-1}$ ). Caracteristicile de colmatare ale lacului Vârșolț au fost măsurate în perioada 1979-2009 (Moigrădean, 2013) și arată că procesul a fost accentuat în primii 12 ani ( $0.39 \text{ m}^3 \text{ an}^{-1}$ ), și că acesta a scăzut în următorii 18 ani ( $0.19 \text{ m}^3 \text{ an}^{-1}$ ) – ceea ce se poate observa și în ratele de sedimentare – ca consecința reducerii ratei de eroziune locale au apărut schimbări în folosirea terenurilor. De asemenea, s-au efectuat lucrări pentru îmbunătățirea albiilor (Șerban et al., 2010).

## V. CONCLUZII

Metoda de datare folosind  $^{210}\text{Pb}$  acompaniată de radiomarkerul  $^{137}\text{Cs}$  este o tehnică geocronologică de mare importanță în studiile de mediu asupra arhivelor stocate în sedimente lacustre și acumulări de turbă. Această metodă s-a dovedit a fi utilă pentru stabilirea radiocronologiilor sedimentelor tinere (de până la 200 ani) și a determinării ratelor de acumulare ale acestora. Măsurarea radionuclizilor alfa emitenți constă într-un proces chimic complex de preparare și separare.  $^{210}\text{Pb}$  poate fi cuantificat prin progenitura sa,  $^{210}\text{Po}$ , folosind spectrometrie alfa. Unul dintre scopurile acestei teze a fost dezvoltarea unei metode de extracție mai rapide. În această teză sunt prezentate și cele mai frecvente aplicații ale radionuclizilor  $^{137}\text{Cs}$  și  $^{210}\text{Pb}$ . S-au efectuat măsurători ale concentrațiilor de radionuclizi și ale inventarelor și fluxurilor de  $^{137}\text{Cs}$  și  $^{210}\text{Pb}$  în diferite regiuni ale Transilvaniei. Datele obținute arată că metoda de datare  $^{210}\text{Pb}$  împreună cu modelul CRS și markerul  $^{137}\text{Cs}$  pot fi aplicate cu succes pe lacuri de origine diferită cum ar fi cele deltaice, vulcanice, glaciare, metamorfice și artificiale.

În ceea ce privește aplicațiile metodologice, cea mai comună metodă de digestie pentru prepararea surselor  $^{210}\text{Po}$  necesită un timp relativ îndelungat. Având în vedere acest aspect, metoda a fost îmbunătățită timpul de digestie fiind scăzut de la 2 săptămâni la 3-4 ore, păstrând randamentul chimic înalt și rezoluța bună a spectrelor. Metoda a fost testată pe materiale de referință cu rezultate satisfăcătoare. Cele mai bune rezultate s-au obținut în cazul probelor cu conținut înalt de material organic (probe de turbă). Această metodă de extracție poate fi folosită eficient în cazul următoarelor probe: plante medicinale, legume, tutun, îngrășăminte, ciuperci, licheni sau animale (bioacumulări în pești și alte organisme marine, erbivori etc.), când acestea trebuie analizate într-o perioadă scurtă de timp.

Din cauza limitărilor experimentale și a toxicității extreme ale HF, s-au testat patru metode alternative de digestie pentru a determina o combinație de acizi este cea mai adecvată pentru extragerea  $^{210}\text{Po}$  din structura cristalină a granulelor de sediment. Pentru un studiu comparativ s-au analizat probe de sediment din zece lacuri de mai multe tipuri (galciar, vulcanic, de baraj, de meandru, deltaic) caracterizate prin diferite roci vulcanice, metamorfice și sedimentare. Incertitudinile relative au fost de 8-9% în cazul modelului CRS și toate metodele asigură o extragere completă a poloniului în cazul lacurilor aflate în stadii incipiente de turbărie.

Deoarece  $^{137}\text{Cs}$  este cel mai folosit radiomarker în cazul cronologiilor recente, s-au efectuat măsurători care au rezultat în obținerea unei baze de date pentru  $^{137}\text{Cs}$  în sol pe teritoriul Transilvaniei. Rezultatele acestui studiu servesc ca o bază de date asupra poluării cauzate de accidentul Centralei Nucleare de la Cernobîl din 1986 în regiunea sus menționată.

Fiind parametri esențiali în procedura de datare  $^{210}\text{Pb}$ , fluxurile și inventarele  $^{137}\text{Cs}$  și  $^{210}\text{Pb}$  au fost calculate pentru carote de sol și turbă din locații diferite din România. Partea vestică a țării a fost reprezentată de probe din Carpații Occidentali (probe de sol din Ighiel și Băița-Plai și probe de turbă din Mluha și Semenice), cea centrală de probe din Carpații Meridionali (probe de sol din zona Lacului Roșu și de turbă din turbăria Mohoș) și cea estică de probe de sol din Delta Dunării.

În această teză s-au analizat lacuri atât din zona fluvială (lacurile Matia și Merhei), cât și din cea maritimă (Lacul Cruhlig) a Deltei Dunării folosind metoda de datare  $^{210}\text{Pb}$ , fiind posibil astfel un studiu reprezentativ al acestei regiuni geografice. Aceste lacuri sunt susceptibile la o serie de fenomene naturale și antropice, care influențează aportul de sediment. Cele 24 inundații majore din ultimii 50 de ani au cauzat schimbări semnificative în depunerea sedimentelor și, cum este cazul Lacului Merhei, o sursă adițională de

sediment poate origina din activități eoliene. Ca precursor al fenomenelor de eutrofizare, conținutul înalt de materie organică este caracterizată de vegetație scufundată unde se poate observa sezonal apă turbide. Construcția Centralei Hidroelectrice Porțile de Fier (ce servește și ca baraj) în anul 1972 a dus la retenția de milioane de tone de sediment anual, scăzând astfel aportul de sediment din zona deltei. Cu toate acestea, lacurile din delta marină sunt supuse la multiple fenomene de transport și depunere, arătând astfel tendințe crescătoare, deoarece alți factori naturali (inundații, furtuni, eroziunea malurilor etc.) și antropici (tăierea canalelor, construirea barajelor etc.) pot influența aportul de sediment. Aceste date servesc la înțelegerea diverselor modele de sedimentare în medii deltaice.

Din cauza ratelor de sedimentare crescute în ultimele decenii în zona Deltei Dunării, s-a întreprins un studiu preliminar cu scopul de a analiza aceste tendințe pe teritoriul României. Zona vestică a fost reprezentată de Lacul Vârșolț (Munții Apuseni, Carpații Occidentali), zona centrală de Lacul Sf. Ana și Lacul Roșu și lacul de baraj al acestuia (Carpații Orientali) și zona estică de Lacul Matița (Delta Dunării). Fiecare din aceste lacuri este influențat în mod diferit de factori naturali și antropogeni. Modelele de sedimentare precum și cantitatea și calitatea acestora sunt influențate de bazinele hidrografice ale acestora caracterizate prin zone rezidențiale, turistice sau de terenuri agricole. Toate regiunile sunt caracterizate de un echilibru climatic instabil, deoarece calitatea fizico-chimică și biologică a apelor și cantitatea materialului insolubil transportat sunt influențate de fenomene hidrologice cum ar fi precipitațiile, inundațiile, eroziunile, secetele etc. S-a constatat ca ratele de sedimentare au crescut de până la 8 ori în ultimul deceniu comparativ cu cele din anii optzeci. Posibilele motive variază de la regiune la regiune, dar includ schimbări climatice, creșterea precipitațiilor și prezența mai mare a inundațiilor în bazinele hidrografice lacurilor. O altă posibilă are reprezenta-o despăduririle.

Rezultatele prezentate în această teză se axează pe Transilvania (regiunile centrale și nord-vestice ale României) și, comparativ, Delta Dunării (zonă estică). Cu toate acestea, pentru o evaluare completă a României, s-ar putea analiza și zone sudice. Oltenia și Muntenia sunt zone caracteristice pentru terenuri agricole în bazinul hidrografic al Dunării, având altitudini descrescătoare de la nord la sud. Lacurile din această regiune sunt diferite din punct de vedere al originii și al compoziției geologice. Lacurile caracteristice sunt cele glaciare și de meandru, cu sedimente din roci sedimentare și metamorfice, care – dacă se supun analizelor – ar putea aduce noi informații despre fluxurile și inventarele de  $^{210}\text{Pb}$  și  $^{137}\text{Cs}$  și despre geocronologia și ratele de sedimentare din sudul României.

## **Mulțumiri**

În primul rând aș dori să-i mulțumesc domnului Lect. Dr. Begy Róbert-Csaba Begy, fără de care această teză nu ar fi fost posibilă. Colaborarea noastră a început în timpul studiilor mele de licență, când m-am simțit atrasă pentru prima dată de frumoasa ramură a radiocronologiei.

Prof. Dr. Cosma Constantin, fiindu-mi conducător de doctorat pentru o scurtă perioadă de timp, a fost o inspirație și un exemplu pentru toți cei care am studiat în domeniul radioactivității de mediu.

Aș dori să-i mulțumesc conducătoarei mele de doctorat, Conf. Habil. Dr. Gabor Alida Iulia pentru suportul continuu și pentru îndrumarea academică de pe parcursul tezei, în special pe ultima sută de metri.

Această teză nu ar fi putut fi scrisă fără sprijinul financiar al granturilor PN-II-RU-TE-2012-3-0351 (Radionuclides as tracers of the anthropic influence on the Danube Delta sedimentary processes – RADDEL), PN-III-P3-3.6-H2020-2016-0016 (Integrated absolute dating approach for terrestrial records of past climate using trapped charge methods) și PN-II-ID-PCE-2012-4-0530 (Millennial-scale geochemical records of anthropogenic impact and natural climate change in the Romanian Carpathian).

Mulțumesc colegilor din Laboratorul de Datare și Dozimetrie prin Termoluminescență, Institutul de Cercetări Interdisciplinare în Bio-Nano-Științe, și colegilor din biroul de doctoranzi A.1.10, Facultatea de Știința și Ingineria Mediului, Universitatea Babeș-Bolyai, pentru schimburile de opinii profesionale și personale și pentru ajutorul academic și administrativ. Dintre aceștia, aș dori să le mulțumesc în special colegilor Keresztesi Ágnes, Vasilache Daniela și Kelemen Szabolcs pentru conversațiile motivante și pentru tot suportul moral pe parcursul acestor ani.

Nu în ultimul rând sunt extrem de recunoscătoare familiei, în special mamei, pentru motivarea continuă, chiar și atunci când am fost în pragul de a renunța. Mulțumesc partenerului pentru suportul continuu, că mi-a fost alături pe acest drum nu întotdeauna ușor și că a crezut în mine, când eu nu mai puteam să cred în mine.

## Referințe

- Aalto R., Nittrouer C.A., 2012.  $^{210}\text{Pb}$  geochronology of flood events in large tropical river systems, *Philosophical Transactions of the Royal Society* 370:2040-2074.
- ANAR Report, 2012. Raport: Evaluarea Preliminara a Riscurilor de Inundatii – Dunarea ([http://www.rowater.ro/EPRI%20Rapoarte/PFRA%20Dunare\\_2.pdf](http://www.rowater.ro/EPRI%20Rapoarte/PFRA%20Dunare_2.pdf), accessed 01.15.2015).
- Appleby P.G., 2001. Chronostratigraphic techniques in recent sediments. In: Tracking Environmental Change using Lake Sediments, vol. 1 (eds. Last W.M., Smol J.P.), Basin Analysis Coring and Chronological Techniques. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, pp. 171-203.
- Appleby P.G., Oldfield F., 1978. The calculation of lead-210 dates assuming a constant rate of supply of unsupported  $^{210}\text{Pb}$  to the sediment, *CATENA* 5:1-8.
- Aycik G., Cetaku D., Erten H., Salihoglu I., 2004. Dating of Black Sea sediments from Romanian coast using natural  $^{210}\text{Pb}$  and fallout  $^{137}\text{Cs}$ , *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 259(1):177-180.
- Babic Mladenovic M., Kolarov V., Damjanovic V., 2013. Sediment regime of the Danube River in Serbia, *International Journal of Sediment Research* 28:470-485.
- Baskaran M., 2011.  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$  as atmospheric tracers and global atmospheric  $^{210}\text{Pb}$  fallout: a review, *Journal of Environmental Radioactivity* 102(5):500-513.
- Begy R., Cosma C., Horvath Z., 2009a. Sediment accumulation rate in the Red Lake (Romania) determined by Pb-210 and Cs-137 radioisotopes, *Romanian Journal of Physics* 54(9-10):943-949.
- Begy R., Cosma C., Timar A., 2009b. Recent changes in Red Lake (Romania) sedimentation rate determined from depth profiles of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  radioisotopes, *Journal of Environmental Radioactivity* 100(8):644-648.
- Begy R., Timar-Gabor A., Somlai J., Cosma C., 2011. A sedimentation study of St. Ana Lake (Romania) applying the  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  dating methods, *Geochronometria* 38(2):93-100.
- Begy R.-Cs., Dumitru O.A., Simon H., Stepoaie I., 2015b. An improved procedure for the determination of  $^{210}\text{Po}$  by alpha spectrometry in sediments samples from Danube Delta, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 303: 2553-2557.
- Begy R.-Cs., Kovacs T., Veres D., Simon H., 2016a. Atmospheric flux, transport and mass balance of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  radiotracers in different regions of Romania, *Applied Radiation and Isotopes* 111:31-39.
- Begy R.-Cs., Preoteasa L., Timar-Gabor A., Mihaiescu R., Tanaselia C., Kelemen Sz., Simon H., 2016b. Sediment dynamics and heavy metal pollution history of the Cruhlig Lake (Danube Delta, Romania), *Journal of Environmental Radioactivity* 153:167-175.
- Begy R.-Cs., Simon H., Kelemen Sz., Reizer E., Preoteasa L., 2015c. Determination of sedimentation rates of a northern Danube Delta lake by  $^{210}\text{Pb}$  method, *Carpathian Journal of Earth and Environmental Sciences* 10(4):191-194.
- Begy R.-Cs., Simon H., Reizer E., 2015a. Efficiency testing of Red Lake protection dam on Rosu stream by  $^{210}\text{Pb}$  method, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 303(3):2539-2545.
- Begy R.-Cs., Simon H., Vasilache D., Kelemen Sz., Cosma C., 2017.  $^{137}\text{Cs}$  contamination over Transylvania region (Romania) after Chernobyl Nuclear Power Plant Accident, *Science of the Total Environment* 599-600:627-636.
- Benedik L., Vrecek P., 2001. Determination of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  in environmental samples, *Acta Chimica Slovenica* 48:199-213.
- Bondar C., 2008. Hydromorphological balance of the Danube River Channel on the Sector between Bazias (km 1072.2) and Danube Delta Inlet (km 80.5). International Expert Conference on "The safety of navigation and environmental security in a transboundary context in the Black Sea basin". Odessa, Ukraine, 24-26 June 2008.
- Buijse A.D., Coops H., Staras M., Jans L.H., Van Geest G.J., Grift R.E., Ibelings B.W., Oosterberg W., Roozen F.C.J.M., 2002. Restoration strategies for river floodplains along large lowland rivers in Europe, *Freshwater Biology* 47:889-907.
- Caillet S., Arpagaus P., Monna F., Dominik J., 2001. Factors controlling  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  atmospheric deposition as revealed by sampling individual rain events in the region of Geneva, Switzerland, *Journal of Environmental Radioactivity* 53(2):241-256.
- Card J.W., Bell K., 1985. The relationship of soil  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$  geochemical dispersion patterns to uranium mineralization, *Journal of Geochemical Exploration* 23:101-115.
- Constantinescu S., Achim D., Rus I., Giosan L., 2015. Embanking the Lower Danube: From Natural to Engineered Floodplains and Back, in P. Hudson, H. Middelkoop (eds.), *Geomorphic Approaches to Integrated Floodplain Management of Lowland Fluvial Systems in North America and Europe*, Springer New York, pp. 259-281.
- Coops H., Hanganu J., Tudor M., Oosterberg W., 1999. Classification of Danube Delta lakes based on aquatic vegetation and turbidity, *Hydrobiologia* 415:187-191.

- Cremer H., Buijse A.D., Lotter A.F., Oosterberg W., Staras M., 2004. The palaeolimnological potential of diatom assemblages in floodplain lakes of the Danube Delta, Romania: a pilot study, *Hydrobiologia* 513:7-26.
- De Cort M., Dubois G., Fridman Sh.D., Germenchuk M.G., Izrael Yu. A., Janssens A., Jones A.R., Kelly G.N., Kvasnikova E.V., Matveenko I.I., Nazarov I.M., Pokumeiko Yu.M., Sitak V.A., Stukin E.D., Tabachny L.Ya., Tsaturov Yu.S., Avdyushin S.I., 1998. Atlas of caesium deposition on Europe after the Chernobyl accident. Luxembourg, Office for Official Publications of the European Communities 1998, ISBN 92-828-3140- X, Catalogue number CG-NA-16-733-29-C. EUR 16733, 1–63.
- Du P., Walling D.E., 2012. Using  $^{210}\text{Pb}$  measurements to estimate sedimentation rates on river floodplains, *Journal of Environmental Radioactivity*, 130:59-75.
- Dutu L.T., Provansal M., Le Coz J., Duțu F., 2014. Contrasted sediment processes and morphological adjustments in three successive cutoff meanders of the Danube delta, *Geomorphology* 204:154–164.
- Edgington D.N., Robbins J.A., 1975. Determination of the activity of lead-210 in sediments and soils. In: Lake Michigan Mass Balance Study, Volume 3-Metals, conventionals, radiochemistry and biomonitoring sample analysis techniques. (www.epa.gov/greatlakes/lmmb/methods, accessed 5 February 2015).
- Enea A., Romanescu G., Stoleriu C., 2012. Quantitative considerations concerning the surface-areas for the silting of the Red Lake (Romania) lacustrine basine, Water resources and wetlands, (Eds: Găștescu P., Lewis W. Jr., Brețcan P.), Conference Proceedings, 14-16 September 2012, Tulcea – Romania, pp. 119-123. ISBN: 978-606-605-038-8
- Florea N., Cristache C., Oaie G., Dului O.G., 2011. Concordant  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  ages of black sea anoxic unconsolidated sediments, *Geochronometria* 38:101.
- Gancz V., Lorent A., Apostol B., Petrila M., 2014. Metodologie de detectare și analiză a suprafețelor de padure afectate de disparități vegetative și forestiere, cu ajutorul seriilor multitemporale de imagini Landsat - experiment pe o zonă test, *Revista Padurilor* 5-6:56-63.
- Găstescu P., 2009. The Danube Delta biosphere reserve. Geography, biodiversity, protection, management, *Romanian Journal of Geography* 53:139-152.
- Giosan L., Bukuniewicz H., Panin N., Postolache I., 1999. Longshore sediment transport pattern along the Romanian Danube Delta Coast, *Journal of Coastal Research*, 15(4):859-871.
- Giosan L., Donnelly J.P., Vespremeanu E., Bhattacharya J.P., Olariu C., Buonaiuto F.S., 2005. River delta morphodynamics: Examples from the Danube Delta, *River Deltas – concepts, Models, and Examples*, SEPM Special Publication No. 83, ISBN 1-56576-113-8.
- Goldberg E.D., 1963. Geochronology with lead-210. In: *Radioactive Dating* I.A.E.A., Vienna, 121-131.
- Gomoiu M.T., 1996. Facts and remarks on the Danube Delta, *Geo-Eco-Marina* 1:70-82.
- Haliuc A., Hutchinson S.M., Florescu G., Feurdean A., 2016a. The role of fire in landscape dynamics: An example of two sediment records from the Rodna Mountains, northern Romanian Carpathians, *CATENA* 137:432-440.
- Haliuc A., Veres D., Hubay K., Begy R., Brauer A., Hutchinson S.M., Braun M., 2016b. Processes and controlling factors of lacustrine sedimentary dynamics over the last ~6000 years in Lake Ighiel, Apuseni Mts, Romania, Central and Eastern Europe Paleoscience Symposium: *From Local to Global*. Book of Abstracts 26(2):33-34.
- Hosono T., Alvarez K., Kuwae M., 2016. Lead isotope ratios in six lake sediment cores from Japan Archipelago: Historical record of trans-boundary pollution sources, *Science of the Total Environment* 559:24-37.
- IAEA, 2006. Applicability of monitored natural attenuation at radioactively contaminated sites (Technical reports series, ISSN 0074–1914 ; no. 445). Vienna: International Atomic Energy Agency, 117 p. ([https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/TRS445\\_web.pdf](https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/TRS445_web.pdf) accessed 5 February 2015).
- Jeffery G.H., Bassett J., Mendham J., Denney R.C., 1989. Vogel's textbook of quantitative chemical analysis (5th ed.), Longman Group UK Limited, 906 p.
- Koide M., Soutar A., Goldberg E.D., 1972. Marine geochronology with  $^{210}\text{Pb}$ , *Earth and Planetary Science Letters*, 14:442-446.
- Krishnaswamy S., Lal D., Marin J.M., Meybeck M., 1971. Geochronology of lake sediments, *Earth Planetary Science Letters*, 11:407-414.
- Laszlo F., 2007. Iron Gate sediments evaluation - Synthesis Report, UNDP-GEF Danube Regional Project, 99p. (<http://www.icpdr.org/main/resources/iron-gate-sediments-evaluation-synthesis-report>, accessed 09.11.2015).
- Levashova E.A., Mikhailov V.N., Mikhailova M.V., Morozov V.N., 2004. Natural and human-induced variations in water and sediment runoff in the Danube River mouth, *Water Resources* 31(3):235-246.
- Mabit L., Benmansour M., Abril J.M., Walling D.E., Meusburger K., Iurian A.R., Bernard C., Tarjan S., Owens P.N., Blake W.H., Alewell C., 2014. Fallout  $^{210}\text{Pb}$  as a soil and sediment tracer in catchment sediment budget investigations: A review, *Earth-Science Reviews*, 138:335-351.

- Mabit L., Benmansour M., Walling D.E., 2008. Comparative advantages and limitations of Fallout radionuclides ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$ ) to assess soil erosion and sedimentation, *Journal of Environmental Radioactivity* 99:1799-1807.
- Macklin Rania L., Jeevanram R.K., Kannan V., Govindarajua M., 2014. Estimation of Polonium-210 activity in marine and terrestrial samples and computation of ingestion dose to the public in and around Kanyakumari coast, India, *Journal of Radiation Research and Applied Sciences* 7(2):207–213.
- McCarney-Castle K., Voulgaris G., Kettner A. J., Giosan, L., 2012. Simulating fluvial fluxes in the Danube watershed: The ‘Little Ice Age’ versus modern day, *The Holocene* 22:91–105.
- McGinnis D.F., Bocaniov S., Teodoru C., Friedl G., Lorke A., Wuest A., 2006. Silica retention in the Iron Gate I reservoir on the Danube River: The role of side bays as nutrient sinks, *River Research and Applications* 22:441-456.
- Moigrădean O., 2013. The Analysis of the Silting Process of Vârșoț Reservoir, *Riscuri și Catastrofe* XII 13(2):75-86.
- Mudroch A., Azcue J.M., Mudroch P., 1996. Manual of Physico-Chemical Analysis of Aquatic Sediments. Routledge, 1. Edition. 320 p. ISBN 9781566701556.
- Oldfield F., Appleby P.G., 1984. A combined radiometric magnetic approach to recent geochronology in lakes affected by catchment disturbance and sediment redistributions, *Chemical Geology* 44:67-83.
- Oosterberg W., Staras M., Bogdan L., Buijse A.D., Constantinescu A., Coops H., Hanganu J., Ibelings B.W., Menting G.A.M., Năvodaru I., Török L., 2000. Ecological Gradients in the Danube Delta – Present State and Man-Induced Changes. RIZA Report Nr. 2000.015, RIZA the Netherlands, DDNI Romania and Danube Delta Biosphere Reserve Authority: 166 pp.
- Opreanu G., 2010. Identifying erosion areas along the Danube on the basis of grain-size and hydrologic parameters, *Geo-Eco-Marina* 16:101-106.
- Opreanu G., Oaie, G., Păun, F. 2007. The dynamic significance of the grain size of sediments transported and deposited by the Danube, *Geo-Eco-Marina* 13:111-119.
- Panin N., 1989. Danube Delta. Genesis, evolution and sedimentology. *Révue Roumaine Géologie, Géophysique, Géographie, Série Géographie*, 33: 25-36, București.
- Preiss N., Mélières M.-A., Pourchet M., 1996. A compilation of data on lead-210 concentration in surface air and fluxes at the air-surface and water-sediment interfaces, *Journal of Geophysical Research, D.Atmospheres* 101(D22):28847–28862.
- Preoteasa L., 2008. Relieful eolian din delta Dunării. Editura Universitara, ISBN 978-973-749-589-1, 165pp.
- Preoteasa L., Roberts H.M., Vespremeanu-Stroe A., Popa I., Duller G.A.T., 2009. Records of Climate Change over the Late-Holocene in the Danube Delta Coastal Dune System, *Revista de geomorfologie* 11:91-100.
- Preoteasa L., Vespremeanu-Stroe A., 2004. Analiza potențialului de transport eolian în Delta Dunării, *Studii și cercetări de oceanografie costieră* 1:47-66.
- Rădoane M., 2008. Raport DANUBERES, Nr. 9603/X2C20, Evaluarea impactului amenajărilor hidrotehnice din bazinul inferior asupra evoluției actuale a gurilor de vărsare ale Dunării, în *Impactul variabilității climatice și al intervențiilor antropice asupra regimului hidrologic al dunării și al dinamicii sedimentare costiere*, Programul AMTRANS.
- Sakan S., Dordevic D., Devic G., Relic D., Andelkovic I., Duricic J., 2011. A study of trace element contamination in river sediments in Serbia using microwave-assisted aqua regia digestion and multivariate statistical analysis, *Microchemical Journal* 99:492–502.
- Șerban G., Mirișan B., Câmpean I., Selagea H., 2010. Aspects regarding the Silting and Basin Dynamics of the Varsolt Reservoir (Crasna River), *Studia Universitatis Babeș-Bolyai, Geographia*, LV2, Cluj-Napoca.
- Simon H., Kelemen Sz., Begy R.-Cs., 2017. Anthropogenic influences on the sedimentation rates of lakes situated in different geographic areas, *Journal of Environmental Radioactivity* 137:11-17.
- Sommerwerk, N., Baumgartner, C., Bloesch, J., Hein, T., Ostojić, A., Paunović, M., Schneider-Jacoby, M., Siber, R., Tockner, K., 2009. The Danube River Basin, in: Tockner, K., Robinson, C.T., Uehlinger, U. (Eds.), *Rivers of Europe*, pp. 59-112.
- Szarlowicz K., Reczynski W., Misiak R., Kubica B., 2013. Radionuclides and heavy metal concentrations as complementary tools for studying the impact of industrialization on the environment, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 298:1323-1333.
- Vaaramaa K., Aro L., Solatie D., Lehto J., 2010. Distribution of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  in boreal forest soil, *Science of The Total Environment* 408 (24):6155-6171.
- Vespremeanu-Stroe A., Preoteasa L., Zăinescu F., Rotaru S., Croitoru L., Timar-Gabor A., 2016. Formation of Danube delta beach ridge plains and signatures in morphology, *Quaternary International*, <http://dx.doi.org/10.1016/j.quaint.2015.12.060>.
- Vukovic D., Vukovic Z., Stankovic S., 2014. The impact of the Danube Iron Gate Dam on heavy metal storage and sediment flux within the reservoir, *CATENA* 113:18–23.
- Walling D.E., Collins A.L., Sickingabula H.M., 2003. Using unsupported lead-210 measurements to investigate soil erosion and sediment delivery in a small Zambian catchment, *Geomorphology* 52:193-213.



- Walling D.E., He Q., 1999a. Improved models for estimating soil erosion rates from cesium-137 measurements, *Journal of Environmental Quality* 28(2):611-622.
- Walling D.E., He Q., 1999b. Using fallout lead-210 measurements to estimate soil erosion on cultivated land. *Soil Science Society of America Journal* 63:1404-1412.
- Winkler R., Rosner G., 2000. Seasonal and long-term variation of  $^{210}\text{Pb}$  concentration in air, atmospheric deposition rate and total deposition velocity in south Germany. *Science of the Total Environment* 263:57-68.
- World Wildlife Fund for Nature (WWF), 2007. Danube Delta: Ecology and Economy in Harmony, Vienna, 49p.