

FONDUL RADIOACTIV ÎN ZONA DE COASTĂ A MĂRII NEGRE

Dr. Romul-Mircea MĂRGINEANU¹

Dr. Ana-Maria BLEBEA-APOSTU¹

*Dr., prof. univ. Octavian-Gheorghe
DULIU²*

Dr. Carmen VARLAM³

Dr. Vasile PĂTRAȘCU⁴

¹ Institutul Național de Cercetare-Dezvoltare pentru Fizică și Inginerie Nucleară „Horia Hulubei”, București-Măgurele, România

² Universitatea din București, România

³ Institutul Național de Cercetare-Dezvoltare pentru Tehnologii Criogenice și Izotopice, Rm. Vâlcea, România

⁴ Institutul Național de Cercetare Dezvoltare Marină „Grigore Antipa”, Constanța, România

RADIATION BACKGROUND OF BLACK SEA COASTAL ENVIRONMENT

The main objective of the project is to establish the level of radiation background and its sources in the Black Sea coastal environment.

Marine samples will be collected in the Black Sea Coast area. The content of different radionuclides will be analyzed and the results will be used in a GIS application. The gamma emitting radionuclides will be measured in ultralow radiation background in the Romanian underground laboratory in salt mine in Slanic-Prahova.

The main expected result is an up to date quantification of the radiation sources of the background of the Black Sea coastal environment.

Introducere

Marea Neagră reprezintă cel mai mare bazin eulinic din lume având o suprafață de 423.000 km², un volum estimat la 547.000 km³ (Murray et al., 1989) și un bazin hidrografic cu o suprafață de aproximativ 1.864.000 km² (Kholodov, 2006) (Figura 1). Astfel, raportul dintre suprafața bazinului hidrografic și suprafața acvatoriului este de aproximativ 4,4 – o valoare intermediară între cea a Mării Caspice (9,8) (van der Leedn et al., 1990) și a Lacului Baikal (14,1), precum și cea a Oceanelor Atlantic (0,23) și Pacific (0,04) (Kholodov, 2006).

Rețeaua hidrografică ce alimentează Marea Neagră este destul de neuniform distribuită, cei mai importanți tributari fiind dispuși în zona Alpină, urmați de cei din zona nordică a Platformei Ruse.



Figura 1. Bazinul hidrografic al Mării Negre (după Philippe Rekacewicz, UNEP/GRID - Arendal, <http://enrin.grida.no/>)

Astfel, Dunărea reprezintă cea mai importantă sursă de material sedimentar, transportând anual o cantitate de material terigen estimată la $83,6 \times 10^6$ tone, urmată de râurile din regiunea Caucazului: Rioni, Inguri și Cioroh cu un debit solid de $18,8 \times 10^6$ tone, ceea ce face ca râurile din zona Alpină să contribuie cu circa 71,6 % din debitul solid ce alimentează Marea Neagră. Restul revine în mare proporție râurilor din zona sudică ce străbat flancul nordic al peninsulei Anatolia, cele mai importante fiind Sakarya, Kizilirmak, și Yesilirmak cu un debit solid anual de $35,6 \times 10^6$ tone și cu o pondere de 24,9 %. Și, în final, râurilor din zona nordică Nistru, Bug și Nipru având un debit solid total estimat la $5,1 \times 10^6$ tone și o pondere redusă de numai 3,5%, aportul solid anual total fiind estimat la $143,1 \times 10^6$ tone (Kholodov, 2006).

Sursa principală de apă a Mării Negre o constituie râurile tributare, cu un debit anual de 346 km³ și precipitațiile estimate la 129 km³ anual. Bilanțul hidrografic prezintă un excedent de circa 372 km³ ce se varsă în mările Azov (32 km³) și Marmara (340 km³) anual.

Litoralul românesc are 244 km lungime între brațul Musura la nord și Vama Veche la sud. Relieful este format din țărnișă cu altitudine joasă, plaje (cca. 80%) și țărnișă relativ înaltă cu faleze (cca. 20%). Din punct de vedere geografic, geomorfologic și genetic țărnișă românească actuală este considerată ca făcând parte din două unități majore: unitatea nordică și cea sudică, despărțite de promontoriul Midia. Unitatea sudică se divide în 2 subunități – de tranziție cu faleze și cordoane litorale întinse (Cap Midia-Cap Singol) din care face parte și Stațiunea Mamaia, și sudică (Cap Singol – granița cu Bulgaria).

Zona de coastă a României este influențată în special de apele marine din zona de nord datorită sistemului general al circulației de la nord la sud.

Temperatura este, probabil, variabila oceanografică cel mai des măsurată. Straturile de la suprafață au o temperatură apropiată de cea a aerului, cu mici diferențe datorate inerției mediului acvatic în procesul de acumulare și de cedare a energiei calorice. Temperatura medie anuală este de 11°C în nord-vest și de 16°C în sud-est. Caracteristic pentru masele de apă din Marea Neagră este faptul că, sub adâncimea de 200 m, temperatura rămâne, practic, constantă 8 - 9°C, cu tendința slabă de creștere spre fund.

Marea Neagră este una din cele mai periclitate mări ale lumii de către activitățile umane. Calitatea mediului înconjurător și, în special, a mediului marin poate fi ținută sub control numai dacă cele 6 țări care o mărginesc cooperează strâns pentru limitarea poluării mediului acvatic. În unele cazuri se impune cooperarea tuturor celor 17 țări ale căror râuri aparțin bazinului Mării Negre.

Poluarea radioactivă a Mării Negre

Poluarea radioactivă a Mării Negre este cât se poate de reală. În bazinul Mării Negre se află și Centrala nucleară de la Cernobîl, cea care în 26 aprilie 1986, prin accidentul care a distrus complet unitatea 4 a generat cea mai mare poluare cu produși radioactivi a mediului înconjurător ca urmare a utilizării în scopuri pașnice a energiei nucleare. O bună parte din inventarul de radionuclizi eliberați în mediu de către acest accident au ajuns în Marea Neagră.

Din acest motiv, cunoașterea fondului de radiații din zona litorală a Mării Negre este de un real interes, atât din punct de vedere economic, cât și turistic, dat fiind faptul că anual milioane de oameni își petrec concediul pe plajele acestei mări.

Fondul de radiații poate avea mai multe surse: radiația cosmică, radiația telurică generată de radionuclizii naturali existenți în sol și, respectiv, radiațiile emise de radionuclizi artificiali (emisii de rutină, accidente nucleare etc.).

Radiația cosmică

Radiația cosmică a fost pusă în evidență în urma măsurărilor efectuate de Victor F. Hess în perioada 1911-1913, care a stabilit că odată cu altitudinea crește nivelul de ionizare a aerului (V. F. Hess, 1912). Radiația cosmică este împărțită în 2 mari categorii:

Radiația cosmică primară – formată în majoritate din protoni 90% și nuclee de heliu 9%, iar într-o foarte mică măsură <1% electroni, raze gamma și nuclee grele (până la Fe). Dependența energetică se întinde pe aproape 21 de ordine de mărime.

Radiația cosmică secundară provine din interacția radiației cosmice primare cu nucleele din atmosfera terestră. În urma acestui fenomen, un număr imens de particule secundare ajung la nivelul solului. La energiile mari ale particulelor cosmice procesele care au loc duc la generarea în număr

foarte mare de cuante γ și e^\pm secundari ce formează cascadele electromagnetice.

Protonul, particula α sau nucleele grele, ciocnind un nucleu din aer, va produce particule secundare, în special mezonii π^0 , π^\pm , K^\pm sau K^0 , precum și o mulțime de hadroni secundari și de alte fragmente nucleare. Astfel, foarte puține particule grele ating nivelul mării, în locul lor rămânând cuante γ și un număr considerabil de miuoni.

Radioactivitatea naturală a mediului, seriile naturale ale ^{232}Th și ^{238}U

Radionuclizii naturali ^{232}Th și ^{238}U se dezintegrează în nuclee stabile numai după o serie de pași ce implică dezintegrări α și β . În plus, pe lângă radiația α și β , de asemenea radiația γ este emisă în timpul dezintegrărilor acestor radionuclizi din seriile ^{232}Th și ^{238}U .

Radionuclizi de origine cosmogenă

Radiația cosmică poate genera un număr foarte mare de reacții nucleare, în urma cărora rezultă nuclee instabile. În lista radionuclizilor de origine cosmogenă trebuie menționați: tritiul, ^{14}C , ^7Be etc.

Tritiul este produs natural de către componenta neutronică a razelor cosmice în reacție cu azotul atmosferic, cu o medie în emisfera Nordică de 5 unități de tritiu (TU) (Zimmermann, 1967).

Tritiul este în mare măsură dispersat în atmosferă ca vapori de apă, provenind de la interacțiile razelor cosmice și ca produs al activității nucleare. Tritiul devine parte a ciclului biologic și este prezent în precipitații și în apele de suprafață de unde poate fi regăsit în sistemul apelor subterane.

Urmare a testelor nucleare efectuate în atmosferă până în 1963, conținutul în precipitații a atins câteva mii de unități de tritiu. Între 1963 și 1966 s-a produs o oprire totală a testelor. Din 1967 până în 1980 au fost efectuate teste nucleare numai de China și Franța. Începând cu anul 1980, nu au mai avut loc experiențe în atmosferă.

Emisiile combinate ale surselor naturale și antropogene conduc la un inventar global de 53×10^{18} Bq, ceea ce este cam de 50 de ori mai mare decât nivelul tritiului datorat numai surselor naturale. Okada și Momoshima în 1993 au estimat că nivelele curente ale tritiului în apa de suprafață, de adâncime și în precipitații sunt între 0,1 și 8 Bq/L. Bazându-se pe aceste concentrații ei estimează că nivelul tritiului în corpul uman este de 1,7 Bq/L.

C-14 este izotopul radioactiv al carbonului și este prezent în cantități foarte mici comparativ cu izotopii stabili ^{12}C și ^{13}C , (^{14}C - 1 atom la 10^{12} atomi de carbon stabili). Producerea, pentru prima dată postulată de Libby în 1955, are loc în straturile înalte ale atmosferei în urma ciocnirii razelor cosmice producătoare de neutroni în prezența atomilor de azot cu o rată de producere de ^{14}C de $1,0 \times 10^{15}$ Bq/an. Odată produs, acesta se oxidează la $^{14}\text{CO}_2$ și

sub forma dată este încorporat în ciclul global de carbon. ^{14}C și se dezintegrează β pentru a forma nucleul stabil al azotului.

Radioactivitatea antropogenă

Datorită situației sale intracontinentale, Marea Neagră joacă rolul unui imens bazin de acumulare a diferiților produși ai activității umane, parveniți în urma unor deversări controlate sau în urma unor accidente. La aceasta trebuie adăugat și caracterul meromictic al Mării Negre, ceea ce face ca volumul imens de apă aflat sub picnolină (cca 90% din volumul total al Mării Negre) să fie practic izolat de cel aflat deasupra acesteia, inclusiv circulația ciclonală principală și cea secundară ce transportă continuu, în sens antiorar, apele purtate de principalii tributari, Dunărea și Niprul (Livingston et al., 1988; Polikarpov et al., 1992), contribuind la dispersia elementelor radioactive artificiale de-a lungul întregului țarm.

Exceptând cele două episoade de poluare radioactivă masivă – testele nucleare atmosferice ce s-au încheiat în anul 1963 prin semnarea tratatului de interzicere a exploziilor nucleare atmosferice și accidentul de la Cernobîl – în Marea Neagră nu au fost înregistrate niciun fel de alte evenimente nucleare, astfel încât radioactivitatea de fond este determinată de prezența celor trei categorii de radionuclizi naturali: ^{238}U , ^{232}Th și ^{40}K și ai descendenților acestora.

Poluarea radioactivă, cauzată de cele două episoade menționate mai sus a inclus în principal radionuclizii produși de fisiune de viață medie ^{90}Sr ($T_{1/2} = 28,8$ ani) și ^{137}Cs ($T_{1/2} = 30,17$ ani), ca și pe cei de viață scurtă ($^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$, ^{103}Ru , ^{106}Ru , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{125}Sb , ^{131}I , ^{134}Cs , $^{140}\text{Ba}/^{140}\text{La}$, ^{141}Ce , ^{144}Ce), la care se adaugă actinidele de viață lungă ^{239}Pu și ^{241}Am . În final însă, principalii poluanți radioactivi biologic semnificativi rămân numai ^{90}Sr și ^{137}Cs . Din acest motiv, distribuția poluanților radioactivi s-a extins de la volumul superficial de apă la sedimente, fiind înglobați apoi de organismele marine filtratoare, ajungând în final în organismele din vârful piramidei trofice – peștii.

Din datele din literatură, se remarcă impactul major pe care l-a avut accidentul de la Cernobîl asupra radioactivității apei Mării Negre. Conform acestor date, contribuția ^{90}Sr provenind de la Cernobîl, datorită relativei vecinătăți a centralei nucleare-electrice, precum și specificului contaminării cu radionuclizi în urma exploziei reactorului 4, a fost de circa 100-300 TBq, ceea ce a determinat creșterea rapidă a conținutului acestuia în stratul de deasupra picnolinei (Egorov et al., 1999). O cantitate relativ egală estimată la 160 TBq a fost transportată de Dunăre și Nipru (Voitsekovich, 2001).

Cu toate acestea, poluarea cu ^{90}Sr a apelor Mării

Negre, estimată la nivelul anului 2006 ca fiind de 1770 ± 790 TBq, este cauzată în proporție de 80 % de testele nucleare din anii '50 - '60 și numai 20 % de accidentul de la Cernobîl (Egorov et al. 2006). În cazul ^{137}Cs , poluarea a fost și mai mare, astfel încât inventarul total de cesiu provenit de la Cernobîl poate fi estimat la o valoare cuprinsă între 338 și 1400 TBq. Aceste valori trebuie comparate cu cele ante-Cernobîl, situație în care inventarul total de ^{90}Sr era ușor superior celui de ^{137}Cs .

Impactul puternic al accidentului de la Cernobîl a fost evidențiat și în sedimentele superficiale colectate din diferitele zone ale bazinului Mării Negre. Măsurările efectuate în zona de șelf din dreptul Deltei Dunării, estuarului Niprului și Bugului, precum și în jurul Capului Tarkhankut din Peninsula Crimeea au indicat un inventar total de ^{137}Cs cuprins între 10 și 40 kBq/m² (Egorov et al., 2006, Voitsekovich et al., 2006), față de inventarul pre-Cernobîl al ^{137}Cs înregistrat în anul 1981 pentru sedimentele de fund, cuprins între 1 și 8 kBq/m² pentru zonele de șelf și sub 0,2 kBq/m² pentru zonele abisale (Vakulovsky et al, 1982), ceea ce indică o creștere cuprinsă între 5 și 10 ori în perioada post Cernobîl.

Determinările de ^{90}Sr și ^{137}Cs datorate accidentului de la Cernobîl, făcute de Egorov (2002) în țesuturile algelor marine din genul *Cystosteira*, ale midiilor *Mytilus galloprovincialis* și ale peștilor din specia *Merlangius merlangius euxinus* au remarcat o creștere considerabilă a acestora, dar în scurt timp după aceasta, conținuturile au scăzut rapid în decurs de câțiva ani după care scăderea s-a încetinit. Per ansamblu însă, atât ^{90}Sr , cât și ^{137}Cs au fost eliminați din țesuturile organismelor marine cu un timp de înjumătățire variind între 4 și 8 ani, pe când doza maximă absorbită de aceste organisme a fost între 5,5 și 20 % din doza absorbită datorată izotopului natural ^{210}Pb (Polikarpov, 1998).

Proiectul RACE - BS ERA.NET

Proiectul „Radiation background of Black Sea coastal environment” se desfășoară în cadrul FP7 BLACK SEA ERA.NET – Pilot Joint Call, Networking on Science and Technology in the Black Sea Region. Scopul major al acestui proiect constă în identificarea surselor fondului de radiații în zona de coastă a Mării Negre. Obiectivele specifice ale proiectului sunt: (i), colectarea, transportul, depozitarea și condiționarea probelor marine; (ii), măsurarea radionuclizilor gama și beta emițători; (iii), măsurarea fluxului de muoni atmosferici pe mare și pe uscat și (iv), optimizarea spațială a schemei de prelevare a probelor.

Probele marine vor fi colectate din zona de coastă a Mării Negre, ulterior fiind analizat conținutul de radionuclizi din aceste probe. Rezultatele obținute

în urma analizei vor fi înregistrate și procesate într-o aplicație de tip GIS. Radionuclizii gama emițători vor fi măsuțați în fond de radiații ultra-scăzut, în laboratorul subteran al IFIN-HH din mina de sare de la Slănic Prahova, România. Fluxul de mioni va fi măsurat pe țarm și pe mare, iar datele vor fi transfere rate către aplicația GIS.

Pentru dezvoltarea aplicației GIS este necesară parcurgerea următoarelor etape: (i) definirea factorilor de influență și în consecință a datelor necesare; (ii) determinarea algoritmului de optimizare spațial cel mai potrivit și completarea schemei inițiale de prelevare/măsurare; (iii) punerea la punct a transferului și informațiilor din și către această aplicație a punctelor de prelevare/măsurare captate prin GPS; (iv) efectuarea analizelor adecvate privind contribuția fiecăreia dintre sursele naturale și artificiale de radiații la constituirea fondului de radiații și generarea unor hărți tematice corespunzătoare acestora.

Rezultatul așteptat al proiectului constă în cuantificarea surselor fondului de radiații din zona de coastă a Mării Negre. Rezultatele specifice sunt: (i) armonizarea procedurilor de prelevare; (ii) stabilirea procedurilor de colectare, transport și depozitare a probelor; (iii) identificarea și cuantificarea radionuclizilor gama emițători din zona de coastă a Mării Negre; (iv) separarea radiochimică și cuantificarea nivelului de uraniu și toriu; (v) cuantificarea tritiului, ^{90}Sr și ^{14}C în apă, precipitații, sol și sedimente (vi), cuantificarea tritiului și ^{90}Sr în peștii colectați din Marea Neagră; (vii) cuantificarea contribuției fluxului de mioni la fondul de radiații; (viii) crearea bazei de date GIS cu datele obținute în urma măsurărilor și (ix), elaborarea de hărți tematice.

În realizarea proiectului sunt implicate șase instituții partenere din trei țări:

Institutul Național de C&D pentru Fizică și Inginerie Nucleară „Horia Hulubei”, București-Măgurele, România – coordonator proiect Dr. Romul-Mircea Mărgineanu;

Institutul Național de Cercetare-Dezvoltare pentru Tehnologii Criogenice și Izotopice, Rm.Vâlcea, România – responsabil proiect Dr. Carmen Varlam;

Institutul Național de Cercetare - Dezvoltare Marină „Grigore Antipa”, Constanța, România – responsabil proiect Dr. Vasile Pătrașcu;

Institutul de Ecologie și Geografie al Academiei de Științe a Republicii Moldova (IEG-ASM), Republica Moldova – responsabil proiect Dr. Vasile Stegărescu;

Laboratorul de Monitorizare a Expunerii Populației, Centrul Național de Radiobiologie și Protecție Radiologică (NCRRP), Bulgaria – responsabil proiect chim. Rositsa Totseva;

Facultatea de Fizică, Universitatea din București, România – responsabil proiect Prof. Univ. Dr. Octavian-Gheorghe Duliu.

Bibliografie

1. Cornell, R.M. (1993). Adsorption of cesium on minerals: A review. *J Radioanal. Nucl. Chem.* 171, 483-500.
2. Egorov, V.N., Povinec, P.P., Polikarpov, G.G., Stokozov, N.A., Gulin, S.B., Kulebakina, L.G., Osvath, I. (1999). ^{90}Sr and ^{137}Cs în the Black Sea after the Chernobyl NPP accident: inventories, balance and tracer applications. *J. Environmental Radioactivity*, 49 (3), 137-156.
3. Egorov, V.N., Polikarpov, G.G., Gulin, S.B., Osvath, I., Stokozov, N.A. Lazorenko, G.E. (2006) XX years of radioecological response studies of the Black Sea to the Chernobyl NPP accident. Presented at the First Biannual Scientific Conference „Black Sea Ecosystem 2005 and Beyond”, Istanbul, 8-10 May 2006.
4. Kholodov, V.N. (2006). Geochimia proceselor sedimentare, Geos, Moscova (în limba rusă).
5. Libby, W. Radiocarbon Dating, 2nd Ed.; University of Chicago Press: Chicago, 1955.
6. Livingston, H.D., Buesseler, K.O., Izdar, E., & Konuk, T. (1988). Characteristics of Chernobyl fallout in the Southern Black Sea. In: Radionuclides: a tool for oceanography. J.C.Guay, P. Guegueniat, & R.J.Pentreath (Eds.), Essex: UK Elsevier. 204-216.
7. Murray, J. W. Jannasch, H. W. Honjo, S. Anderson, R. F. Reeburgh, W. S. Topparallel, Z. Friederich, G. E. Codispoti L. A. Izdar E. (1989) Unexpected changes in the oxic/anoxic interface in the Black Sea, *Nature* 338, 411 - 413 (doi:10.1038/338411a0).
8. Okada, S., Momoshima, N. (1993). Overview of tritium: characteristics, sources, and problems. *Health Physics* 65(6):595-609.
9. Polikarpov, G.G., Livingston, H.D., Kulebakina, L.G., Buesseler, K.O., Stokozov, N.A., Casso, S.A. (1992). Inflow of Chernobyl ^{90}Sr to the Black Sea from the Dnieper River. *Estuarine, Coastal and Shelf, Science*, 34, 315 - 320.
10. Polikarpov, G.G. (1998). Conceptual model of responses of organisms, populations and ecosystems in all possible dose rates of ionizing radiation in the environment. Proc. of RADOX 96-97 conference, Norwich/Lowestoft, 8-11 April, 1997. *Radiation Protection Dosimetry*, 75, 181-185.
11. V. F. Hess (1912). „Über Beobachtungen der durchdringenden Strahlung bei sieben Freiballonfahrt”. *Physikalische Zeitschrift* 13: 1084-1091.
12. Vakulovsky, S.M., Krasnopevtsev, Yu.V., Nikitin, A.I., Chumichev, V.B. (1982). Distribution of ^{137}Cs and ^{90}Sr between the water and bottom sediments in the Black sea in 1977. *Okeanologia*, v.XXII, issue 6, Moscow, 1982, pp.966-969 (in lb. rusa).
13. Voitsekhoverych, O.V. (2001). Project status report of the Ukrainian Hydrometeorological Institute (UHMI), Central geophysical observatory (CGO), Marine Branch of UHMI (2001). National Report for the IAEA Regional Technical Co-operation Project RER/2/003 „Marine Environmental Assessment in the Black Sea”. UHMI, Kiev-Sevastopol, 83 p.
14. Zimmermann, U., Munnich, K. O. and Roether, W., (1967). Downward movement of soil moisture traced by means of hydrogen isotopes. In: *Isotope Techniques in the Hydrologic Cycle*, Geophysical Monograph Series 11, American Geophysical Union.