

CONSIDERATIONS TO THE DEVELOPMENT OF A MODERN METHOD TO EVALUATE WATER RADIOACTIVITY FROM BĂIȚA, BIHOR AREA

CONSIDERAȚII PRIVIND ELABORAREA UNEI METODE MODERNE DE EVALUARE A RADIOACTIVITĂȚII APELOR UZATE DIN ZONA BĂIȚA, BIHOR

Alexandra Elena DOROFTEI^{1*}, Tudor Andrei RUSU¹, Mircea RÎȘTEIU²

¹Technical University of Cluj-Napoca, Faculty of Materials and Environmental Engineering, Department Environmental Engineering and Sustainable Development Entrepreneurship, 103-105 Muncii Ave, Cluj-Napoca, Romania

²1st December 1918 University of Alba Iulia, Faculty of Science, Department of Engineering and Exact Sciences, 11-13 Nicolae Iorga Street, Alba Iulia, Romania

Abstract: This paper presents a short study of the environmental factors from the uranium mines in Băița, Bihor area and the development of a modern experimental module of an electronic device that can measure the radioactive isotopes from natural and industrial waters. The basic idea was to use a PIN- based sensor which can convert radioactive isotopes energy into readable electric signal. The electronic device was designed to measure continuously and in real time the radioactive isotopes from natural and industrial waters.

Keywords: radioactivity, pollution, mine waters, anionic exchange, environmental monitoring, scattering energy, semiconductors, real time values.

Rezumat: Lucrarea prezintă un scurt studiu al factorilor de mediu din zona minelor uranifere de la Băița, Bihor și dezvoltarea dezvoltarea modulului experimental al unui sistem electronic ce poate măsura izotopii radioactivi din apele naturale și industriale. Ideea de bază a fost folosirea unui senzor bazat pe o dioda PIN ce poate transforma energia izotopilor radioactivi într-un semnal electric detectabil. Dispozitivul a fost conceput astfel încât să poată determina în mod continuu și în timp real izotopii radioactivi din apă.

Cuvinte cheie: radioactivitate, poluare, ape de mină, schimb anionic, monitorizarea factorilor de mediu, energie de împrăștiere, semiconductori, valori instantanee.

1. Introduction

Băița, Bihor is a area situated in the N-V side of Romania, well knowed for its complex mineral resources. With the start of exploitation and processing of this radioactive minerals, in 1950, the surrounding environment was contaminated with radioactive elements like Uranium, Radium and Radon. Although uranium mining activities brought great benefits for industrial and science fields, the big disadvantage is the pollution left behind. The exploitation cessed in 1995, due to the exhaustion of the ore deposits. [1]

The mine water derived from contaminated sources (aquifers or surface), which now is flowing naturally, poses threats to human and ecosystem health that is why a complex environmental monitoring is necessary.

1. Introducere

Situată în N-V României, Băița, Bihor este o zonă foarte cunoscută pentru resursele sale minerale complexe. O data cu începerea exploatării și procesării mineralelor radioactive, în 1950, mediul înconjurător a fost contaminat cu diverse elemente radioactive ca Uraniu, Radium și Radonul. Deși activitatea de extragerea a minereului de uraniu a adus mari beneficii pentru domeniul industrial și cel al științei, marele dezavantaj este poluarea rezultată. Exploatarea a fost oprită în anul 1995 datorită epuizării minereului util.[1]

Apele de mină rezultate din sursele contaminate (acvifer sau ape de suprafață), reprezintă o reală amenințare pentru sănătatea umană și ecosisteme, fiind necesară o monitorizare a factorilor de mediu cât mai complexă.

Today, at the outputs of the industrial water basins, filtering batteries are organized that have the main role the reduction of the radioactive isotopes of Uranium and Radium content below regulation limits (0,021 mg/dm³). Each two weeks, labs experts take water samples and evaluate the radioactive isotopes form water (according to STAS 1574/1-84), then based on the results, make recommendations.[2]

Because of the difficult procedure, sampling time is extremely large (half month), and in between sampling process, the water might be contaminated with hard and longtime radioactive particles. Another problem is that the active materials, after filtering, become radiation contaminated waste. A large effort for minimizing this must be carried out, and in order to achieve the maximum performance, it is necessary to implement an innovating filtering process in batteries: the water flow should be automated filtered only when the radiation level of particles is higher than regulation limits.

On the other hand, the filtering batteries are located in industrial area, not on the underground water that washes former mines, outcropped deposits, or local geological falls. The uncontrolled contaminated water will flow naturally, and will continuously contaminate the surrounding environment.

All these point of view argue for careful evaluation of the water quality form the radiation point of view. Around the world, directly, or indirectly water quality is evaluated real time in measuring organized stations. Up to today, in Romania there are not such monitoring systems.

Today's real time measurements are focused on using Geiger or radon methods. The Geiger tube method is well developed and easy to be used in the lab and dry measurement conditions.

Resuming literature, there are differences in protection from radiation approaching methods, because of differences between Alpha, Beta, Gamma rays and neutrons behaviours. The gamma rays are present in the environment, can penetrate walls and it is difficult to block them. On the other side, the Alpha particles, only have a short range and generally cannot even penetrate a sheet of paper: this is the reason that many counter tubes cannot detect them, unless they have a very thin mica window. Beta particles have fewer presence, they have a longer range and can penetrate thin sheets of metal. Most counter tubes are mainly designed for detecting gamma rays while, within certain limitations, also being sensitive to beta particles.[3]

În prezent, la ieșirea din bazinele industriale, apa de mină trece prin celulele în lucru pentru reducerea concentrației izotopilor radioactivi de Uraniu și Radium sub limitele legale (0,021 mg/dm³). La fiecare două săptămâni, laboranții iau probe de apă pentru analiza concentrației de Radium și Uraniu (conform STAS 1574/1 – 84), apoi în urma rezultatelor obținute, fac recomandările necesare.[2]

Datorită perioadei îndelungate de desfășurare a procedurii de luare a probelor și analiza lor, apa poate fi puternic cotoaminată cu particule radioactive. Altă problemă este aceea că, după epurare, rășinile sintetice folosite sunt contaminate, devenind la rândul lor deșeuri radioactive. Este necesar să se găsească soluții în vederea minimizării acestor deșeuri și a reducerii poluării, cea mai eficientă fiind implementarea unui sistem inovator de filtrare și anume: fluxul de apă ar trebui filtrat în mod automat doar când nivelul de radioactivitate este mai mare decât limitele legale impuse.

Pe de altă parte, celulele de filtrare sunt amplasate în zona industrială, nu în zona apelor subterane ce spală fostele locații miniere și haldele de steril. Apele contaminate sunt lăsate să curgă la întâmplare, fapt ce poluează în mod constant mediul înconjurător.

Toate aceste puncte prezentate mai sus susțin necesitatea unei evaluări cât mai atente a calității apelor din punct de vedere radioactiv. În lume, direct, sau indirect, calitatea apelor este evaluată în timp real în diverse stații de monitorizare. Până în prezent, în România nu există implementate astfel de sisteme.

Măsurătorile în timp real sunt realizate cu precădere utilizând metoda Geiger sau cu radon. Metoda bazată pe tubul Geiger este bine dezvoltată și ușor de utilizat în laborator.

Rezumând literatura, există diferențe între metodele de abordare ale radioprotecției, acestea fiind datorate diferitelor tipuri de radiații Alfa, Beta, Gamma cât și comportamentului neutronilor. Razele gamma sunt prezente în mediu, pot pătrunde cu ușurință pereții și sunt dificil de stopat. Pe de altă parte, particulele Alfa au rază scurtă de acțiune, în general putând fi absorbite de o foaie de hârtie. Din această cauză, multe dintre detectoare nu le pot distinge, decât dacă au o mica fereastră din mică. Particulele Beta sunt prezente mai rar, au o rază de acțiune mai largă și pot penetra o foaie subțire de metal. Majoritatea contoarelor de radiații sunt proiectate pentru detectarea razelor gamma, și cu câteva limitari, pot fi sensibile și la particulele beta.[3]

As a measure of existence of Uranium, or Radium, some part of the industry uses radon measurement techniques. A wide variety of methods to measure radon and its decay products have been developed in time.

Our objective was to develop an experimental module of an electronic device that can measure continuously and in real time the radioactive isotopes from natural and industrial waters. The real time procedure was designed to respond to the compliance requirement of the decontamination stations with environment legislation, and second, to prevent adverse environmental effects caused by the hazardous waste.

2. Materials and devices

The main idea was the use of a PIN- based sensor which can convert radioactive isotopes energy into readable electric signal. In order to do this, we utilized the following materials:

• PIN photodiodes

Semiconductor materials have introduced new possibilities in solid-state dosimetry, allowing registration of radiation in real time. Semiconductor detectors are attractive for applications in radiation dosimetry for many reasons.

When a particule strikes on the surface of the photodiode, the electron within the crystal structure becomes stimulated. If the light energy is greater than the band gap energy E_g , the electrons are pulled up into the conduction band leaving holes in their place in the valence band. These electron-hole pairs (e-h) occur throughout the P-layer, depletion layer and N-layer materials.

In the depletion layer, the electric field accelerates these electrons toward the N-layer and the holes toward the P-layer. Therefore, the electron-hole pairs that are generated proportionally to the amount of the incident light are collected in the N and P-layers. This results in a positive charge in the P-layer and negative charge in the N-layer. [4]

At first, we utilized a PIN photodiode from Hamamatsu, but because of the high price (100 Euro/piece), we choosed a cheaper one, from Vishay, which has mainly the same technical characteristics. [5, 6]

• Operational Amplifier

The operational amplifier is a DC-coupled high-gain electronic voltage amplifier with two differential inputs and a single-ended output. In this configuration, it can produce an output potential much larger than the potential difference between

Pentru a determina existența Uraniului sau a Radiului, o parte a industriei folosește tehnici de măsurare ale radonului. O mare varietate de metode au fost dezvoltate în timp pentru a determina radonul și produșii săi de dezintegrare.

Obiectivul nostru a fost dezvoltarea modulului experimental al unui sistem electronic ce poate măsura în mod continuu și în timp real izotopii radioactivi din apele naturale și industriale. Procedura a fost dezvoltată astfel încât să corespundă cererilor stațiilor de epurare, conform legislației de mediu, și în al doilea rând pentru a preveni efectele adverse asupra mediului cauzate de acești poluanți.

2. Materiale și dispozitive

Ideea de bază a fost utilizarea unui senzor bazat pe o diodă PIN ce poate transforma energia izotopilor radioactivi într-un semnal electric detectabil. La realizare, am folosit următoarele:

• Diodele PIN

Materialele semiconductoare au adus noi posibilitați în domeniul determinărilor, permițând o înregistrare a radiației în timp real. Detectoarele cu semiconductori sunt tot mai utilizate în dozimetria radiațiilor.

Când o particulă lovește suprafața unei fotodiode, electronii prezenți în cristalul semiconductor sunt excitați. Dacă energia particulelor este mai mare decât banda energetică neocupată, electronii se deplasează către zona de conducție, lăsând în urma lor goluri în banda de valență. Perechile de electroni-goluri apar în stratul P, regiunea intrinsecă cât și în stratul N.

În regiunea intrinsecă, câmpul electric accelerează electronii către stratul N iar golurile către stratul P. Astfel, pentru fiecare cuantă absorbită, se generează o pereche electron-gol, ce este apoi absorbită de straturile N și P. Rezultatul este o sarcină pozitivă în stratul P și una negativă în stratul N. [4]

Inițial am utilizat o diodă PIN din gama Hamamatsu, dar datorită prețului ridicat (100 Euro/buc), am ales o variantă mai ieftină a acesteia, de la Vishay, ce are în mare parte aceleași caracteristici tehnice. [5, 6]

• Amplificatorul operațional

Amplificatorul operațional este un amplificator diferențial de curent continuu cu curent rezidual redus și zgomot propriu mic. Acesta furnizează la ieșire o tensiune egală cu replica amplificată a tensiunii dintre cele două intrari, are o

• **Pulse generator**

We utilized a general purpose pulse generator with high performance, that provides up to +/- 5V and variable frequency from 10 kHz to 100 kHz.

• **Power source**

Also we needed two power sources, namely: one which provides ± 5 V operating power to the amplifier and the other one that provides the 24V reverse bias for the PIN diode.

Power sources required special attention because the signal applied to the operational amplifier input rises to specific noise of normal supply sources.

The experimental module developed on the laboratory bench is shown in the following figure:

• **Generatorul de impulsuri**

Am folosit un generator standard de impulsuri, cu performanțe ridicate, amplitudine de +/- 5V și o frecvență variabilă între 10 și 100 kHz.

• **Sursa de alimentare**

Am utilizat două surse de alimentare și anume: una de ± 5 V ce asigură alimentarea amplificatorului operational, iar cea de 24V asigură polarizarea inversă a diodei PIN.

Sursa de alimentare a necesitat o atenție aparte datorită faptului că nivelul semnalului aplicat la intrarea amplificatorului operațional se ridică la nivelul zgomotului specific surselor obișnuite de alimentare.

Modul experimental dezvoltat în laborator este prezentat în figura de mai jos:

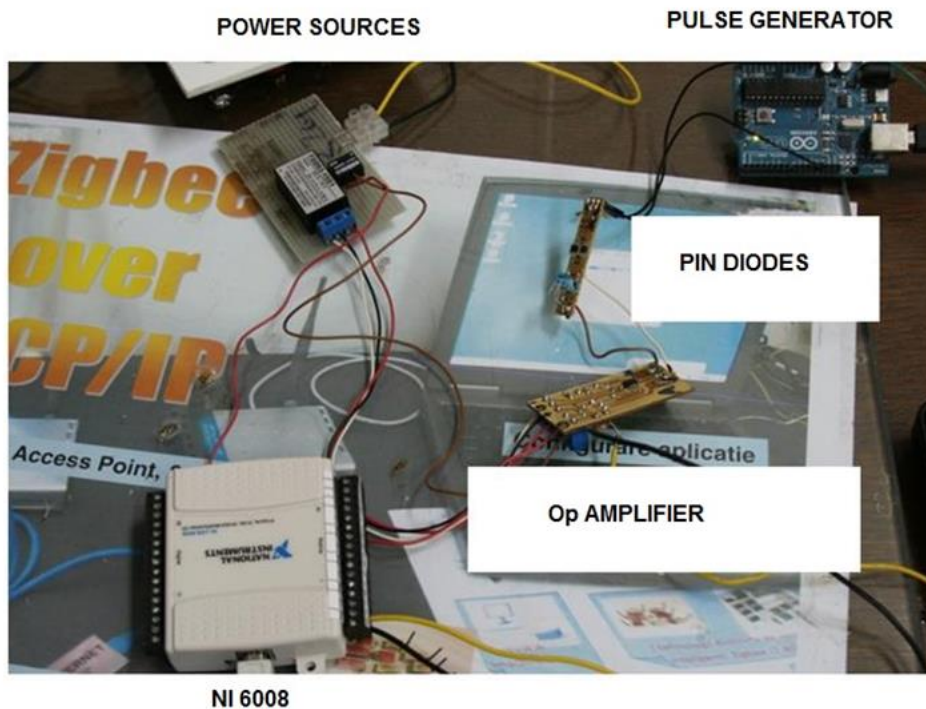


Figure 1. Experimental module.

In order to achieve long time measurements (tens of days), an experimental model was designed around a system of data acquisition and processing software from National Instruments.

The stand was designed to measure normal ambient atmospheric parameters, namely the effect of PIN diode discharge due to scattering energy.

We used four diodes connected properly to perform the following functions: increased sensitivity diode scattering energy and reduction of the influence of the ambient light (illumination is required to be near zero).

În vederea realizării unor măsurători pe o perioadă îndelungată (zeci de zile) a fost conceput un model experimental în jurul unui sistem de achiziție de date și software de procesare de la National Instruments. Standul a fost conceput pentru măsurarea parametrilor atmosferici normali, respective efectul de descărcare în diode PIN, datorită energiei de împrăștiere.

Am folosit patru diode conectate corespunzător pentru a îndeplini următoarele funcțiuni: creșterea sensibilității diodei la energia de împrăștiere și reducerea influenței luminii ambientale (este necesară iluminarea aproape spre zero).

Real time module was set to work in the National Instrument LabView package for its enhanced facilities.

DAQ Assistant provides facilities for automatic configuration corresponding data acquisition.

S-a folosit modulul Real time din pachetul LabView al National Instruments pentru facilitățile sale sporite.

DAQ Assistant oferă facilitățile de configurare automată a plăcii de achiziție de date corespunzătoare.

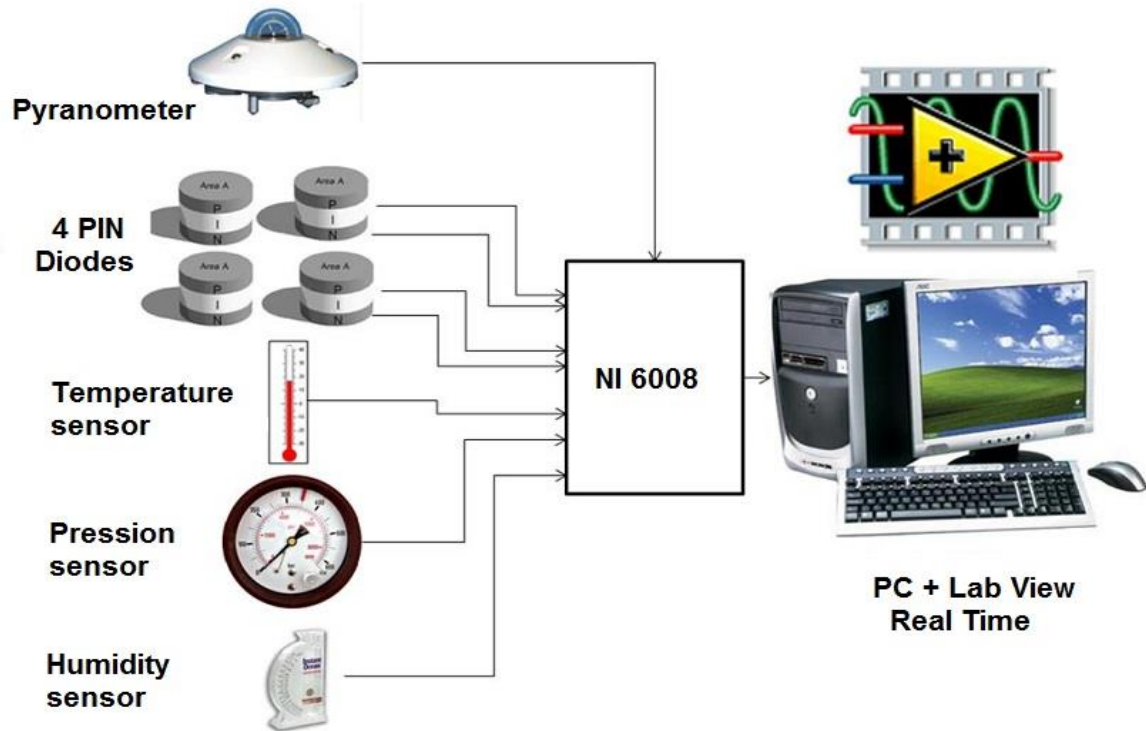


Figure 2. Acquisition data system.

Amplitude and Level Measurements module provides real-time pre-processing of the measurement data from the data acquisition system. This module was necessary because the large number of data (140,000 values in 24 hours). Thanks to the large number of data we also needed the the so-called operation application debugging facilities:

- threshold of measurement;
- amplitude of reference;
- table control data values;
- Live View screen.

Modulul Amplitude and Level Measurements oferă pre-procesare în timp real a datelor de la sistemul de achiziție date. Acest modul a fost necesar datorită numărului foarte mare de date (140000 valori în 24 de ore). Tot datorită numărului foarte mare de date, am avut nevoie de așa numitele facilități de depanare a funcționării aplicației, și anume:

- prag de măsură;
- amplitudine de referință;
- table de control valori date;
- ecran de vizualizare în timp real.

3. Results and Discussion

For time interval between 13:38 and 14:26, the values looks like as in the table below. The middle column represents the measured values (along with diodes noise). Right side value is a premium filter of the positive values, the four PIN diodes capturing energy scattering in the range 30-40 kEv.

3. Rezultate și discuții

Pentru intervalul orar 13:38 - 14:26, valorile sunt prezentate în tabelul de mai jos. Coloana din mijloc reprezintă valorile măsurate (împreună cu zgomotul diodelor). Valorile din dreapta reprezintă o primă filtrare a valorilor pozitive, cele patru diode PIN captând energia de împrăștiere în gama 30-40 kEv.

Table 1. Measured values.

13:38:45	1.742	1.742
	-3.015	0
	-1.273	0
13:38:46	1.62	1.62
	-2.862	0
	-1.243	0
.....		
14:25:59	0.968	0.968
	-2.292	0
	-1.324	0
		0
14:26:00	1.701	1.701

By interpreting the above values we can observe contribution to the photoelectric effect due to energy spreading from six sources of different intensity: intensity of reverse current (in microamperes) grouped into 6 classes.

Source 6 is actually natural background radiation.

Interpretând valorile prezentate în graficul de mai jos se observă contribuții la efectul fotoelectric datorită energiei de împrăștiere din partea a șase surse de intensități diferite: intensități ale curentului invers (în microamperi) grupate pe șase clase.

Sursa 6 este de fapt fondul natural de radiații.

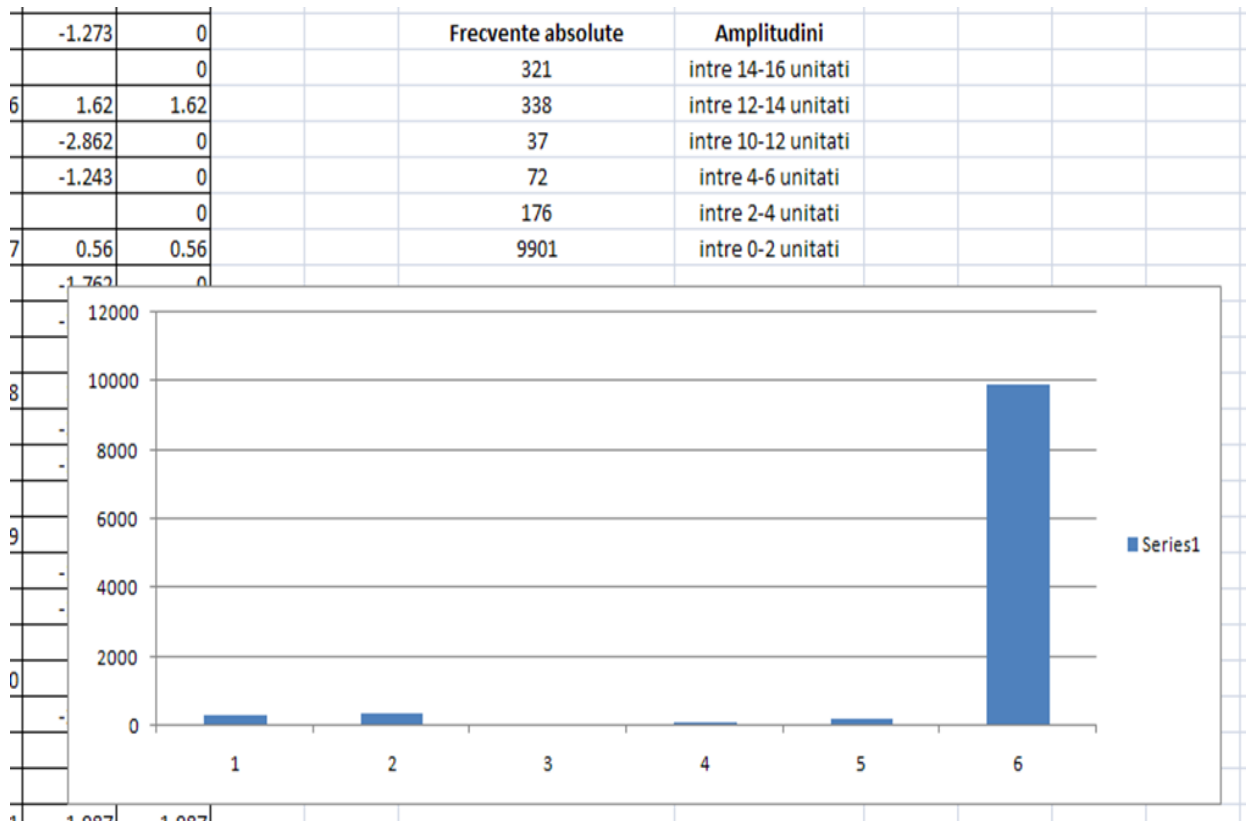


Figure 3. Determined values graphic.

4. Costs

To the achievement of the module on the experimental stand, the following materials were used: four Vishay diodes, a TL 072 operational amplifier, a pulse generator, a power source ± 5V, 24V and other passive components.

4. Costuri

La realizarea modului pe standul experimental s-au utilizat următoarele materiale: 4 diode de tip Vishay, un amplificator operațional TL 072, un generator de impulsuri, o sursă de alimentare ±5V, 24V și alte componente pasive.

Table 2. Approximate costs of the experimental module.

Product	Quantity	Price/piece	Total price
Vishay PIN diode	4	20E	80E
Integrate circuit amplifier TL 072	1	2E	2E
Pulse generator	1	40E	40E
Power supply	1	20E	20E
Related passive components	1	5E	5E
Total:			147E (aprox 660 Lei)

The costs shown in the table above are for achieving the experimental stand module and may vary depending on various parameters.

In case that after calibration and testing, this module is approved for use in practice, will be necessary to make 13 such detectors for the studied area, which would mean a cost of about 1900 Euro.

5. Conclusion

Radioactive pollution has always been a problem, it is almost impossible to stop radioactivity from a mining uranium area due to both natural background and anthropogenic activities undertaken

By interpreting the experimental results, PIN diode, as sensor for measurements in real time, as International Atomic Energy Agency recommends, becomes a measuring equipment easy to use, inexpensive and not the last of all, portable.

Also, due to simple associated electronics, this system can be a measuring equipment for places where human presence is unauthorized, being a strong point in the field of radioactivity, thereby avoiding human exposure.

As stated, the present method requires some improvements like: improving receiving of results through a local and appropriate processing system; improving the performance of supply sources to reduce the noise of equipment; development of specific protection techniques in order to make simple measurements directly into the water.

References

- [1] Aurelian Florian, Georgescu Dan Petre, Popescu Mihai, Florescu Margareta Stela, Environmental impact assessment of the uranium mining activity in the Bihor district, IMWA Symposium: Water in Mining Environments, Cagliari, Italy, 2007

Costurile prezentate în tabelul de mai sus sunt cele pentru realizarea modulului pe standul experimental și pot varia în funcție de diverși parametri.

În cazul în care, după calibrare și testare, acest modul este aprobat pentru utilizarea în practică, pentru zona studiată, ar fi necesare 13 astfel de detectoare, ceea ce ar însemna un cost de aproximativ 1900 Euro.

5. Concluzii

Poluarea radioactivă a fost întotdeauna o problemă, este aproape imposibil să oprești radioactivitatea dintr-o zonă de exploatare uraniferă atât datorită fondului natural, cât și activităților antropice.

Interpretând rezultatele experimentale obținute, dioda PIN, ca senzor pentru măsurători în timp real, așa cum recomandă și Agenția Internațională pentru Energie Atomică, devine un echipament de măsură ușor de folosit, ieftin și nu în ultimul rând, portabil.

De asemenea, datorită electronicii aferente simple, acest sistem poate deveni un echipament de măsură pentru locuri nepermise prezenței umane, fiind un punct forte în domeniul radioactivității, astfel evitându-se expunerea umană.

După cum am specificat, metoda necesită dezvoltări ulterioare în sensul: îmbunătățirii furnizării de rezultate printr-un sistem de procesare local, propriu; îmbunătățirea performanțelor surselor de alimentare în scopul reducerii zgomotelor proprii ale echipamentelor; realizarea unor tehnici de protecție specifice în vederea realizării de măsurători simple direct în apă.

- [2] Adam Constantin Dorin, Achim Moise, Modele și metode de prognoză a concentrației radionuclizilor de uraniu și radium în apă, în curs de publicare, București, 2011
- [3] Ciobotaru Virginia, Socolescu Ana Maria, Poluarea și protecția mediului, Editura economică, București, 2008, ISBN 978-973-709-409-4
- [4] Microsemi - Watertown, The PIN Diode circuit designer's handbook, Microsemi Corporation, 1998
- [5] Hamamatsu Si PIN photodiode, S3590 series, 2014. Online at:
<http://www.hamamatsu.com/us/en/product/category/3100/4001/4103/S3590-08/index.html>
- [6] Vishay Silicon PIN Photodiode, VBPW34S, VBPW34SR, 2014. Online at:
<http://www.vishay.com/docs/81128/vbpw34s.pdf>