ΕΘΝΙΚΟ ΜΕΤΣΟΒΙΟ ΠΟΛΥΤΕΧΝΕΙΟ

Σχολή Μηχανολόγων Μηχανικών Τομέας Πυρηνικής Τεχνολογίας

ΜΕΤΡΗΣΕΙΣ ΤΗΣ ΣΥΓΚΕΝΤΡΩΣΗΣ ΤΟΥ ΙΣΟΤΟΠΟΥ ΚΟΣΜΙΚΗΣ ΠΡΟΕΛΕΥΣΗΣ ⁷Be ΣΤΟ ΑΕΡΟΖΟΛ ΤΗΣ ΑΤΜΟΣΦΑΙΡΑΣ ΚΑΙ ΣΤΟ ΝΕΡΟ ΤΗΣ ΒΡΟΧΗΣ

ΔΙΠΛΩΜΑΤΙΚΗ ΕΡΓΑΣΙΑ του **ΚΩΝΣΤΑΝΤΙΝΟΥ Ε. ΜΠΑΣΙΑ**

Φοιτητή της Σχολής Μηχανολόγων Μηχανικών ΕΜΠ

Επίβλεψη: Αν. Καθηγητής, Μ.Ι. Αναγνωστάκης Συνεργασία: Δ.Ι. Καράγγελος & Μ.Ι. Σάββα

AOHNA 2013

Η παρούσα Διπλωματική Εργασία εκπονήθηκε στον Τομέα Πυρηνικής Τεχνολογίας του ΕΜΠ, κατά το χρονικό διάστημα Ιουνίου 2012 - Ιουλίου 2013 υπό την επίβλεψη του Αν. Καθηγητή Μ.Ι. Αναγνωστάκη, ο οποίος διατύπωσε το αντικείμενο της εργασίας σύμφωνα με τα ειδικότερα ενδιαφέροντά μου.

Επιθυμώ να εκφράσω τις ειλικρινείς ευχαριστίες μου στον Αναπληρωτή Καθηγητή κ. Μ.Ι. Αναγνωστάκη για την ευκαιρία που μου έδωσε να εκπονήσω Διπλωματική Εργασία στον Τομέα Πυρηνικής Τεχνολογίας του ΕΜΠ και τη βοήθεια που μου προσέφερε και τον προσωπικό χρόνο που διέθεσε ώστε να ολοκληρωθεί.

Επίσης, θα ήθελα να ευχαριστήσω τον διδάκτορα κ. Δ.Ι. Καράγγελο για την καταλυτική συμβολή του, τον προσωπικό χρόνο που αφιέρωσε και το ενδιαφέρον και την επιμέλεια που επέδειξε σε όλα τα πειραματικά μέρη της εργασίας.

Ακόμα, θέλω να ευχαριστήσω την υποψήφια διδάκτορα κ. Μ.Ι. Σάββα για την ουσιαστικότατη συμβολή της στην εκπόνηση της παρούσας Διπλωματικής Εργασίας, με ιδιαίτερα χρήσιμες υποδείξεις και παρατηρήσεις και το χρόνο που αφιέρωσε όπου αλλού χρειάστηκε.

Επιπλέον, θα ήθελα να ευχαριστήσω και το λοιπό προσωπικό του Εργαστηρίου Πυρηνικής Τεχνολογίας για τη βοήθειά του και το κλίμα συνεργασίας.

Τέλος, θα ήθελα να ευχαριστήσω τον κ. Αναστάσιο Αδαμόπουλο του Τμήματος Ποιότητας Ατμόσφαιρας του Υ.Π.Ε.Κ.Α. για την προθυμία του να παράσχει τα δεδομένα από τις μετρήσεις του όζοντος, συμβάλλοντας στην αρτιότητα της εργασίας.

> Κωνσταντίνος Ε. Μπασιάς Αθήνα, Ιούλιος 2013

Πίνακας περιεχομένων

Κεφάλαιο 1: Εισαγωγή	
1.1 Σκοπός και αντικείμενο της εργασίας	5

Κεφάλαιο 2: Το ισότοπο ⁷Βε στην ατμόσφαιρα

2.1 Εισαγωγή
2.2 Κοσμικές ακτίνες και προϊόντα αντιδράσεων τους με τους πυρήνες τη ατμόσφαιρας
2.3 Το ισότοπο ⁷ Be
2.4 Εξάρτηση του ρυθμού παραγωγής του ⁷ Be από τον κύκλο της ηλιακή δραστηριότητας
2.5 Εξάρτηση του ρυθμού παραγωγής από το γεωμαγνητικό πλάτος και το υψόμετρο
2.6 Παράγοντες εποχιακής διακύμανσης της συγκέντρωσης του ⁷ Be στην κατώτερη ατμόσφαιρα
2.7 Απόθεση του ⁷ Be μέσω της βροχής
2.8 Απόθεση του ⁷ Βε μέσω του χιονιού
2.9 Το όζον και η συσχέτιση του με το ⁷ Be

Κεφάλαιο 3: Προσδιορισμός της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα και συσχέτιση με τον ηλιακό κύκλο και τη συγκέντρωση του Ο₃

3.1 Εισαγωγή	39
3.2 Πρωτόκολλο μέτρησης συγκέντρωσης ⁷ Be στον αέρα	39
3.3 Διόρθωση της συγκέντρωσης του ⁷ Be από προηγούμενες μετρήσεις 4	42
3.4 Διερεύνηση της συσχέτισης της συγκέντρωσης του ⁷ Be με τον αριθμό τω ηλιακών κηλίδων	υν 43
3.4.1 Συσχέτιση της συγκέντρωσης ⁷ Βe και του αριθμού ηλιακών κηλίδων κατ την καλοκαιρινή περίοδο	τά 46
3.4.2 Συσχέτιση συγκέντρωσης ⁷ Βe και αριθμού ηλιακών κηλίδων κατά τ χειμερινή περίοδο	τη 49
3.5 Συσχέτιση συγκέντρωσης ⁷ Be και Ο ₃	50
3.5.1 Συσχέτιση συγκέντρωσης 7 Be και Ο $_3$ στα όρια της πόλης	51
3.5.2 Συσχέτιση συγκέντρωσης 7 Be και Ο $_3$ στο κέντρο της πόλης	54
3.6 Συμπεράσματα 5	56

Κεφάλαιο 4: Προσδιορισμός της συγκέντρωσης του ⁷Be στο νερό της βροχής και του χιονιού

4.1 Εισαγωγŕ	
--------------	--

4.2 Διαδικασία δειγματοληψίας υγρών κατακρημνίσεων στο ΕΠΤ-ΕΜΠ
4.3 Επεξεργασία και ανάλυση δειγμάτων υγρών κατακρημνίσεων στο ΕΠΤ-ΕΜΠ 59
4.4 Μέθοδοι επεξεργασίας του νερού της βροχής που μελετήθηκαν στο πλαίσιο της παρούσας Δ.Ε
4.4.1 Μέθοδος της πλήρους εξάτμισης του δείγματος
4.4.2 Μέθοδος επεξεργασίας του νερού της βροχής χρήσει ρητίνης ανταλλαγής κατιόντων
4.4.3 Σύγκριση των μεθόδων επεξεργασίας δειγμάτων νερού
4.5 Συμπεράσματα για την επεξεργασία δειγμάτων υγρών κατακρημνίσεων 72

Κεφάλαιο 5: Ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του ⁷Βe

5.1 Εισαγωγή
5.2 Ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του ⁷ Βe υπό αίθριο καιρό
5.2.1 Ανασκόπηση των πειραμάτων για τη μελέτη της ημερήσιας κύμανσης της συγκέντρωσης του ⁷ Βε στο αέρα υπό αίθριο καιρό που πραγματοποιήθηκαν στο παρελθόν
5.2.2 Μετρήσεις της ημερήσιας μεταβολής της συγκέντρωσης του ⁷ Βe υπό αίθριο καιρό που πραγματοποιήθηκαν στο πλαίσιο της παρούσας Δ.Ε
5.3 Ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του ⁷ Βe υπό βροχόπτωση85
5.3.1 Ανασκόπηση παλαιότερων μετρήσεων της ημερήσιας μεταβολής της συγκέντρωσης του ⁷ Be υπό βροχόπτωση85
5.3.2 Μετρήσεις της ημερήσιας μεταβολής της συγκέντρωσης του ⁷ Βe υπό βροχόπτωση, που πραγματοποιήθηκαν στα πλαίσια της παρούσας Δ.Ε87
5.4 Μετρήσεις της ημερήσιας μεταβολής της συγκέντρωσης του ⁷ Be υπό συνθήκες χιονόπτωσης
5.5 Συμπεράσματα
Κεφάλαιο 6: Επίλογος
6.1 Συμπεράσματα και μελλοντικά βήματα96
Βιβλιογραφία99
Παράρτημα Α

Κεφάλαιο 1:

Εισαγωγή

1.1 Σκοπός και αντικείμενο της εργασίας

Αντικείμενο της παρούσας Διπλωματικής Εργασίας (Δ.Ε.) είναι η μελέτη της μεταβολής της συγκέντρωσης του 7Βε τόσο στον ατμοσφαιρικό αέρα όσο και στις υγρές ατμοσφαιρικές κατακρημνίσεις. Σε παλαιότερη εργασία [Δ.Ε. Παπανδρέου Σ., 2009] αναπτύχθηκε πρωτόκολλο για τη δειγματοληψία και γ-φασματοσκοπική ανάλυση φίλτρων αέρα, με σκοπό τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης του ⁷Be στα ατμοσφαιρικά αερολύματα, χρήσει του ανιχνευτή XtRa του Εργαστήριου Πυρηνικής Τεχνολογίας του ΕΜΠ (ΕΠΤ-ΕΜΠ). Σε επόμενη εργασία [Δ.Ε. Σάββα Μ., 2009] εισήχθη μια νέα γεωμετρία γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης φίλτρων αέρα, με στόχο την αύξηση της απόδοσης ανίχνευσης των φωτονίων του ⁷Be, καθώς και τη βελτίωση της επαναληψιμότητας και της ακρίβειας στις αναλύσεις. Στο πλαίσιο της παρούσας εργασίας επιχειρήθηκε η συσχέτιση της συγκέντρωσης του ⁷Be στην ατμόσφαιρα με το πλήθος των ηλιακών κηλίδων, καθώς επίσης και με τη συγκέντρωση του όζοντος στην ατμόσφαιρα. Επιπλέον, αναπτύχθηκε πρωτόκολλο επεξεργασίας δειγμάτων υγρών κατακρημνίσεων, με σκοπό τη βελτίωση της υπάρχουσας μεθοδολογίας προσδιορισμού της συγκέντρωσης του κοσμικής προέλευσης ⁷Be στο νερό των κατακρημνίσεων.

Η Δ.Ε. αποτελείται από έξι κεφάλαια, τα οποία παρουσιάζονται συνοπτικά στη συνέχεια:

Στο 2° κεφάλαιο της Δ.Ε. γίνεται βιβλιογραφική ανασκόπηση, για το ισότοπο ⁷Be. Περιγράφεται ο μηχανισμός παραγωγής και απόθεσής του στη Γη, καθώς και οι παράγοντες που επηρεάζουν τις παραπάνω διαδικασίες, ενώ παρουσιάζονται και οι παράμετροι που επιδρούν στην κύμανση της συγκέντρωσής του στην ατμόσφαιρα και στις υγρές κατακρημνίσεις. Τέλος, παρουσιάζονται ορισμένα στοιχεία για το όζον (O₃), μια χημική ένωση η οποία παρουσιάζει ενδιαφέρον καθώς, όπως και το ⁷Be, παράγεται κατά κύριο λόγο στη στρατόσφαιρα και μπορεί να χρησιμοποιηθεί ως ιχνηλάτης αερίων μαζών στρατοσφαιρικής προέλευσης.

Στο 3° κεφάλαιο περιγράφεται το πρωτόκολλο δειγματοληψίας και ανάλυσης για τη μέτρηση της συγκέντρωσης του ⁷Be στον ατμοσφαιρικό αέρα που ακολουθείται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ. Στη συνέχεια, εξηγείται ο λόγος για τον οποίο σε μερικές από τις

παρελθούσες μετρήσεις, χρειάστηκε να εφαρμοσθούν διορθώσεις, ώστε οι τιμές στις συγκεντρώσεις του ⁷Be που είχαν προσδιορισθεί να είναι πιο κοντά στην πραγματικότητα. Στη συνέχεια, η συγκέντρωση του ⁷Be επιχειρήθηκε να συσχετιστεί με τον ηλιακό κύκλο και τέλος, επιχειρήθηκε έλεγχος συσχέτισης και με τη συγκέντρωση του όζοντος χωριστά, για τα όρια και το κέντρο της πόλης, με σκοπό να διερευνηθεί το κατά πόσο οι υψηλές συγκεντρώσεις όζοντος στην ευρύτερη περιοχή είναι προϊόν της κατακόρυφης μεταφοράς αερίων μαζών, του φωτοχημικού φαινομένου ή συνδυασμού αμφότερων των μηχανισμών.

Στο 4° κεφάλαιο περιγράφεται η διαδικασία δειγματοληψίας και ανάλυσης δειγμάτων υγρών ατμοσφαιρικών κατακρημνίσεων που ακολουθείται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ. Στη συνέχεια, μελετώνται καινούργιες μέθοδοι για την επεξεργασία των δειγμάτων που στόχο έχουν τη βελτίωση της επιπέδων ακρίβειας κατά τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης του ⁷Be στη βροχή ή το χιόνι. Επιλέγεται και προτείνεται η μέθοδος που οδηγεί στα πιο ικανοποιητικά αποτελέσματα.

Στο 5° κεφάλαιο μελετάται η ημερήσια μεταβολής της συγκέντρωσης του ⁷Be στα κατώτερα στρώματα της ατμόσφαιρας, χρήσει δεδομένων που λήφθηκαν από μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν στο ΕΠΤ-ΕΜΠ στο παρελθόν, καθώς και από μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν στο πλαίσιο της παρούσας Δ.Ε. Αρχικά, μελετήθηκε η μεταβολή της συγκέντρωσης του ισοτόπου υπό αίθριο καιρό, ενώ στη συνέχεια πραγματοποιήθηκε μελέτη της μεταβολής της συγκέντρωσής του στον αέρα και στο νερό της βροχής κατά τη διάρκεια βροχερής ημέρας. Τέλος, μελετάται η μεταβολή της συγκέντρωσής του ισοτόπου στον αέρα κατά τη διάρκεια ενός περιστατικού χιονόπτωσης.

Τέλος, στο 6° κεφάλαιο γίνεται μια σύνοψη της Διπλωματικής Εργασίας, παρουσιάζονται τα συμπεράσματα που προέκυψαν και διατυπώνονται σκέψεις και προτάσεις για μελλοντικές εργασίες.

Κεφάλαιο 2: Το ισότοπο ⁷Βε στην ατμόσφαιρα

2.1 Εισαγωγή

Στο παρόν κεφάλαιο παρουσιάζονται στοιχεία για το ισότοπο ⁷Be, το οποίο είναι ένα ραδιενεργό ισότοπο κοσμικής προέλευσης που ανιχνεύεται στα ατμοσφαιρικά αερολύματα. Αρχικά, αναφέρονται οι τρόποι παραγωγής του από την κοσμική ακτινοβολία και οι παράγοντες που επηρεάζουν τη ροή κοσμικής ακτινοβολίας στη Γη και κατ' επέκταση την παραγωγή του ισοτόπου. Στη συνέχεια, περιγράφονται οι μηχανισμοί απόθεσής του στο έδαφος και οι παράγοντες που την επηρεάζουν. Τέλος, παρουσιάζονται ορισμένα στοιχεία για το όζον (O₃), μια χημική ένωση της οποίας η συγκέντρωση έχει γίνει προσπάθεια στη βιβλιογραφία να συσχετιστεί με τη συγκέντρωση του ⁷Be, καθώς αμφότερα παράγονται κατά κύριο λόγο στη στρατόσφαιρα και μπορούν να χρησιμοποιηθούν ως ιχνηλάτες αερίων μαζών στρατοσφαιρικής προέλευσης

2.2 Κοσμικές ακτίνες και προϊόντα αντιδράσεων τους με τους πυρήνες της ατμόσφαιρας

Οι κοσμικές ακτίνες είναι – κατά κύριο λόγο – υψηλής ενέργειας φορτισμένα σωματίδια, που προέρχονται από το διάστημα και βομβαρδίζουν τη Γη από όλες τις κατευθύνσεις. Αποτελούνται από πρωτόνια, πυρήνες ήλιου, πυρήνες βαρύτερων στοιχείων, καθώς και ηλεκτρόνια, ποζιτρόνια και άλλα υποατομικά σωματίδια, που μπορεί να φτάσουν ενέργειες μέχρι 3·10²⁰ eV [T. Stanev, 2004].

Τα σωματίδια που φτάνουν στη Γη προερχόμενα από τον Ήλιο συνήθως δεν ξεπερνούν σε ενέργεια τα 10⁸ eV, φθάνοντας περιστασιακά τα 10⁹ eV (με συχνότητα περίπου μια φορά το χρόνο) και σπανιότερα τα 10¹⁰ eV (με συχνότητα περίπου μια φορά τη δεκαετία) [R. A. Mewaldt, 1996]. Τα περισσότερα από τα σωματίδια με ενέργειες από 10⁸ eV μέχρι 10¹⁴ eV που φτάνουν στη Γη προέρχονται από υπερκαινοφανείς αστέρες, μαύρες τρύπες και περιστρεφόμενους αστέρες νετρονίων εντός του γαλαξία, ενώ η ακτινοβολία με υψηλότερη ενέργεια προέρχεται κατά 99% από εξωγαλαξιακές πηγές, κυρίως ενεργούς γαλαξίες. Φθάνοντας στη Γη, τα σωματίδια υψηλής ενέργειας αλληλεπιδρούν με τους πυρήνες των στοιχείων της ατμόσφαιρας κυρίως, αλλά και του εδάφους, προκαλώντας τη δημιουργία υποατομικών σωματιδίων, όπως πιόνια (π⁺, π⁻ και π⁰), μιόνια (μ⁻), αντιμιόνια (μ⁺) και ποζιτρόνια, ή την παραγωγή ραδιενεργών ισοτόπων, όπως ³H, ⁷Be, ¹⁰Be, ¹⁴C, ²²Na, ²⁶Al και ³⁶Cl.

Η παραγωγή υποατομικών σωματιδίων και ραδιενεργών ισοτόπων από την κοσμική ακτινοβολία περιγράφεται ενδεικτικά από τις ακόλουθες αντιδράσεις:

$$p^{+} \rightarrow p^{+} + \pi^{+} + \pi^{-} + \pi^{0}$$
$$\pi^{+} \rightarrow \mu^{+} + \nu_{\mu}$$
$$\pi^{0} \rightarrow e^{-} + e^{+}$$
$$^{14}N + \ _{0}^{1}n \rightarrow \ _{3}^{10}Be + \ _{2}^{4}He + \ _{1}^{1}p$$
$$^{14}_{7}N + \ _{0}^{1}n \rightarrow \ _{3}^{16}C + \ _{1}^{1}p$$
$$^{35}_{20}Cl + \ _{0}^{1}n \rightarrow \ _{17}^{36}Cl + \ _{2}^{4}He$$

2.3 Το ισότοπο ⁷Be

Το ⁷Be είναι ισότοπο του Βηρυλλίου και ένα από τα ισότοπα που παράγονται από τον κατακερματισμό ελαφρών πυρήνων της ατμόσφαιρας, από την κοσμική ακτινοβολία. Το ενεργειακό κατώφλι παραγωγής του είναι περίπου 20 MeV [Μ. Yoshimori, 2005] και η παραγωγή του στην ατμόσφαιρα από πρωτόνια και νετρόνια κοσμικής προέλευσης περιγράφεται κατά κύριο λόγο από τις ακόλουθες πυρηνικές αντιδράσεις:

$${}^{12}_{6}C + {}^{1}_{1}p \rightarrow {}^{7}_{4}Be + {}^{6}_{3}Li \\ {}^{12}_{6}C + {}^{1}_{0}n \rightarrow {}^{7}_{4}Be + {}^{6}_{2}He \\ {}^{14}_{7}N + {}^{1}_{1}p \rightarrow {}^{7}_{4}Be + {}^{2}_{2}He \\ {}^{14}_{7}N + {}^{1}_{0}n \rightarrow {}^{7}_{4}Be + {}^{3}_{3}Li \\ {}^{16}_{8}O + {}^{1}_{1}p \rightarrow {}^{7}_{4}Be + {}^{10}_{5}B \\ {}^{16}_{8}O + {}^{1}_{1}p \rightarrow {}^{7}_{4}Be + {}^{7}_{3}Li + {}^{3}_{2}He \\ {}^{16}_{8}O + {}^{1}_{0}n \rightarrow {}^{7}_{4}Be + {}^{10}_{4}Be \\ {}^{16}_{8}O + {}^{1}_{0}n \rightarrow {}^{7}_{4}Be + {}^{10}_{4}Be \\ {}^{16}_{8}O + {}^{1}_{0}n \rightarrow {}^{7}_{4}Be + {}^{2}_{2}He + {}^{4}_{2}He \\ {}^{16}_{8}O + {}^{1}_{0}n \rightarrow {}^{7}_{4}Be + {}^{6}_{2}He + {}^{4}_{2}He \\ \end{array}$$

Διασπάται προς το σταθερό ισότοπο ⁷Li με ηλεκτρονική σύλληψη (Electron Capture, EC), εκπέμποντας φωτόνιο ενέργειας 477.60 keV με ποσοστό εκπομπής 10.52% [Radiation Decay v4]:

$${}^7_4Be + {}^0_{-1}e \rightarrow {}^7_3Li + v_e$$

Ο ρυθμός διάσπασης των ισοτόπων που διασπώνται με ηλεκτρονική σύλληψη εξαρτάται από την ηλεκτρονιακή πυκνότητα στον πυρήνα. Η απλή ηλεκτρονιακή δομή του Be (1s², 2s²) έχει ως συνέπεια η ηλεκτρονιακή πυκνότητά του να εξαρτάται σε μεγάλο βαθμό από τις συνθήκες πίεσης, τη χημική μορφή στην οποία βρίσκεται και το υλικό στο οποίο φιλοξενείται, έχοντας αντίκτυπο στο χρόνο ημίσειας ζωής του ισοτόπου, ο οποίος παρουσιάζει μικρές διακυμάνσεις, και στην περίπτωση κρυσταλλικού πλέγματος είναι ίσος με 53.25 ± 0.04 ημέρες [T. Ohtsuki et al., 2007]. Ενδεικτικά, στο Σχήμα 2.1 παρουσιάζεται ο χρόνος ημιζωής του ⁷Be υπολογισμένος σε μέρες, σε σχέση με το υλικό στο οποίο φιλοξενείται το ισότοπο. Η κύμανση του χρόνου ημιζωής είναι της τάξης του 0.2%. Μεγαλύτερη εξάρτηση παρουσιάζει ο χρόνος ημιζωής του από τις ενώσεις που σχηματίζει, παρουσιάζοντας διαφορά της τάξης του 1.5% στις πιο συχνά απαντώμενες στη φύση ενώσεις του ισοτόπου, μεταβαλλόμενος από 53.416 ± 0.006 στο $Be(OH)_2$ σε 54.226 ± 0.006 στο BeO [Chih-An Huh, 1999]. Η εξάρτηση αυτή του χρόνου ημιζωής από την ένωση στην οποία απαντάται το ⁷Be θεωρείται αμελητέα στις μελέτες της συγκέντρωσής του στο περιβάλλον.



Σχήμα 2.1 Ο χρόνος ημιζωής του ισοτόπου ⁷Be υπολογισμένος σε μέρες σε εξάρτηση με το υλικό που φιλοξενείται [Τ. Ohtsuki et al., 2007]

Καθώς παράγεται από την κοσμική ακτινοβολία, ο ρυθμός παραγωγής του ⁷Be εξαρτάται από τη ροή κοσμικής ακτινοβολίας στη Γη, η οποία κατά κύριο λόγο εξαρτάται από την ηλιακή δραστηριότητα, το υψόμετρο και το γεωμαγνητικό πλάτος.

2.4 Εξάρτηση του ρυθμού παραγωγής του ⁷Be από τον κύκλο της ηλιακής δραστηριότητας

Κυρίαρχο ρόλο στη προστασία της ζωής πάνω στη Γη από τη γαλαξιακή σωματιδιακή ακτινοβολία παίζει το μαγνητικό πεδίο του Ήλιου, εκτρέποντας μέρος της σωματιδιακής ακτινοβολίας που εισέρχεται στην ηλιόσφαιρα. Η ένταση του μαγνητικού πεδίου του ήλιου παρουσιάζει αυξομειώσεις, ακολουθώντας κύκλο κυμαινόμενης διάρκειας, με μέση τιμή 22 ετών. Οι μεταβολές στο μαγνητικό πεδίο του Ήλιου επηρεάζουν την ποσότητα της κοσμικής ακτινοβολίας που φθάνει στη Γη, ώστε κατά την περίοδο έξαρσης της ηλιακής δραστηριότητας, το ισχυρότερο μαγνητικό πεδίο του Ήλιου εκτρέπει μεγαλύτερη ποσότητα γαλαξιακής ακτινοβολίας, με αποτέλεσμα και η παραγωγή των κοσμογενών ισοτόπων να μειώνεται.

Τα φαινόμενα που επηρεάζουν την ένταση του μαγνητικού του πεδίου του Ήλιου περιλαμβάνουν την εμφάνιση των ηλιακών κηλίδων, τις ηλιακές εκλάμψεις και την κύμανση στην ταχύτητα και πυκνότητα του ηλιακού ανέμου.

Οι ηλιακές κηλίδες είναι σκοτεινοί σχηματισμοί στην επιφάνεια του Ήλιου, οι οποίες εμφανίζονται όταν δημιουργούμενες μαγνητικές ανωμαλίες μειώνουν τη ροή θερμότητας από το εσωτερικό του Ήλιου στη φωτόσφαιρα. Αυτό έχει ως συνέπεια η θερμοκρασία στην περιοχή της ανωμαλίας να είναι ~2000 Κ χαμηλότερη από ότι στις υπόλοιπες περιοχές τις επιφάνειας του ήλιου και να φαίνονται σκοτεινότερες (Σχήμα 2.2).

Οι ηλιακές κηλίδες σχηματίζονται από τη στρέβλωση των μαγνητικών γραμμών του Ήλιου που τυλίγονται και αναδύονται από το εσωτερικό του, σχηματίζοντας βρόχους επάνω από την επιφάνειά του. Συνήθως εμφανίζονται ανά ζεύγη διαφορετικής πολικότητας, αρχικά ως μικρές φόρμες που έχουν ακανόνιστο σχήμα και αναπτύσσονται μέσα σε λίγες ημέρες στο πλήρες μέγεθός τους, με διάμετρο που συνήθως κυμαίνεται από 2500 έως 50000 km και διάρκεια ζωής από λίγες ημέρες έως λίγες εβδομάδες. Έχουν την τάση να συγκεντρώνονται σε δύο μεσαίου πλάτους ζώνες, εκατέρωθεν του ισημερινού. Πρωτοεμφανίζονται σε γεωγραφικά πλάτη περίπου 35° βόρεια και νότια.



Σχήμα 2.2 Οι ηλιακές κηλίδες την 28η Νοεμβρίου 2011 από το αρχείο του Solar and Heliospheric Observatory (SOHO). Κάτω δεξιά φαίνονται συγκριτικά τα μεγέθη της Γης και του Δία

Κατά την εξέλιξη του ηλιακού κύκλου νέες κηλίδες εμφανίζονται πλησιέστερα του ισημερινού, με τις τελευταίες να εμφανίζονται σε γεωγραφικά πλάτη ανάμεσα σε 5 και 10 μοίρες, οπότε και αρχίζουν να εμφανίζονται οι κηλίδες του δεύτερου μισού του κύκλου με αντίθετη πολικότητα. Η πολικότητα των ηγούμενων κηλίδων κάθε ημισφαιρίου αντιστρέφεται κάθε 11 χρόνια περίπου, ακολουθώντας τον ηλιακό κύκλο. Κατά τη διάρκεια του κύκλου, ο αριθμός των κηλίδων κυμαίνεται μεταξύ της πλήρους εξαφάνισή τους ως ενός μεταβαλλόμενου μέγιστου πλήθους (Σχήμα 2.3). Για τον υπολογισμό του αριθμού των ηλιακών κηλίδων χρησιμοποιείται η συνάρτηση που εισήχθη από τον Ελβετό αστρονόμο και μαθηματικό Rudolf Wolf και είναι δείκτης προσδιορισμού του ημερήσιου συνολικού πλήθους ηλιακών κηλίδων που αργότερα συστηματοποιήθηκε από το Sunspot Index Data Center (SIDC) στις Βρυξέλλες. Το πλήθος R των ηλιακών κηλίδων κηλίδων υπολογίζεται από τη σχέση:

$$R = k \cdot (10 \cdot g + f)$$

όπου:

f ο αριθμός των μεμονωμένων κηλίδων

g ο αριθμός των ομάδων κηλίδων, οι οποίες κατά μέσο όρο περιέχουν 10 κηλίδες.

k παράγοντας που εμπεριέχει άλλες παραμέτρους της μέτρησης, όπως τη θέση, το μέσο και τις συνθήκες παρατήρησης.



Σχήμα 2.3 Κύμανση του πλήθους του διεθνούς αριθμού ηλιακών κηλίδων από το 1745 [http://spaceweather.com]

Οι ηλιακές κηλίδες αυξάνουν την ένταση του μαγνητικού πεδίου του Ήλιου σε σημαντικό βαθμό, μειώνοντας την ποσότητα της γαλαξιακής κοσμικής ακτινοβολίας που εισέρχεται στα ενδότερα του ηλιακού συστήματος. Κατά συνέπεια, τις χρονικές περιόδους που ο ηλιακός κύκλος φθάνει στα μέγιστά του, η παραγωγή κοσμογενών ισοτόπων, όπως του ⁷Be, στη Γη είναι ελάχιστη [H. Hötzl et al., 1991, F. Cannizzaro et al., 2003].



Σχήμα 2.4 Μηνιαία συγκέντρωση του ⁷Be στον αέρα και αριθμός των ηλιακών κηλίδων για το χρονικό διάστημα 1982-2004 [S. Rizzo et al., 2010]

Στο Σχήμα 2.4 φαίνεται η μέση μηνιαία συγκέντρωση του ⁷Be στην κατώτερη ατμόσφαιρα, παράλληλα με τον μέσο μηνιαίο αριθμό των ηλιακών κηλίδων για το διάστημα 1982-2004, σε μετρήσεις που έγιναν στο Palermo της Ιταλίας [S. Rizzo et al., 2010]. Η μικρή διαφορά φάσης που παρατηρείται είναι αποτέλεσμα του μεγάλου χρονικού διαστήματος που απαιτείται ώστε να φθάσει το ⁷Be από την υψηλότερη στρατόσφαιρα στο επίπεδο του εδάφους, όπου έχουν γίνει οι μετρήσεις.

Στο Σχήμα 2.5 παρουσιάζεται η συσχέτιση της μέσης ετήσιας συγκέντρωσης του ⁷Be στην κατώτερη ατμόσφαιρα και του μέσου αριθμού ηλιακών κηλίδων το διάστημα 1982-2002 [F. Cannizzaro et al., 2004]. Ο συντελεστής συσχέτισης είναι r = -0.72, για n=21 και όπως διαπιστώθηκε στα πλαίσια της Δ.Ε. είναι στατιστικά σημαντικός ($t_0 = -4.522$), κάτι που επιβεβαιώνει την αναμενόμενη αρνητική συσχέτιση μεταξύ του πλήθους των ηλιακών κηλίδων και της συγκέντρωσης του ⁷Be.



Σχήμα 2.5 Συσχέτιση μεταξύ του πλήθους των ηλιακών κηλίδων και της μέσης ετήσιας συγκέντρωσης ⁷Be στον αέρα για την περίοδο 1982-2002 [F. Cannizzaro et al., 2004]

Ένα άλλο φαινόμενο το οποίο επηρεάζει τα επίπεδα της κοσμικής ακτινοβολίας που φτάνει στη Γη είναι οι ηλιακές εκλάμψεις. Πρόκειται για εκρήξεις στην επιφάνεια του Ήλιου σε περιοχές κοντά σε ηλιακές κηλίδες, πιθανώς λόγω μηχανισμών του φαινομένου της μαγνητικής επανασύνδεσης [Η.Takasaki, 2004]. Κατά τη βίαια απελευθέρωση μαγνητικής ενέργειας, απελευθερώνεται αυξημένη ποσότητα ηλεκτρομαγνητικής ακτινοβολίας, ενώ παράλληλα εκτοξεύονται δισεκατομμύρια τόνοι σωματιδίων υψηλής ενέργειας στο διάστημα, αυξάνοντας την παραγωγή των κοσμογενών ισοτόπων στη Γη. Καθώς οι ηλιακές εκλάμψεις έχουν

μικρή διάρκεια, που κυμαίνεται από λίγα λεπτά έως λίγες ώρες, θεωρείται ότι δεν έχουν ιδιαίτερη επίδραση στη μεταβολή της συγκέντρωσή των κοσμογενών ισοτόπων [D. Lal et al., 1957]. Οι εκλάμψεις ακολουθούν τον 22ετή κύκλο του Ήλιου, κάνοντας πιο συχνή την εμφάνισή τους τις περιόδους που ο αριθμός των ηλιακών κηλίδων φθάνει στο μέγιστο.

Ο ηλιακός άνεμος είναι ένα ακόμα φαινόμενο που έχει επίδραση στην κοσμική ακτινοβολία που εισέρχεται στην γήινη ατμόσφαιρα. Πρόκειται για τη συνεχή ροή φορτισμένων σωματιδίων, κυρίως πρωτονίων και ηλεκτρονίων που η κινητική τους ενέργεια τους επιτρέπει να διαφύγουν από το βαρυτικό πεδίο του Ήλιου. Τροφοδοτείται από τις θερμότερες περιοχές του στέμματος του Ήλιου. Η ροή του, αν και ακτινική, δεν είναι ομοιόμορφη, με ταχύτητα που κυμαίνεται από ~800 km/s όταν πηγάζει από στεμματικές οπές και έως 300 km/s από την ισημερινή ζώνη. Το Σχήμα 2.6 παρουσιάζει την ταχύτητα του ηλιακού ανέμου σε συνάρτηση με το γεωγραφικό πλάτος του Ήλιου, όπως μετρήθηκε από το διαστημόπλοιο Οδυσσέας το διάστημα 02/1992 έως 10/1997 [D.J. McComas et al., 1997].



S. Pole

Σχήμα 2.6 Η ταχύτητα του ηλιακού ανέμου σε συνάρτηση με το γεωγραφικό πλάτος του Ήλιου, όπως παρατηρήθηκε από το διαστημόπλοιο "Οδυσσέας" [D.J. McComas et al., 1997].

Το μαγνητικό πεδίο που φέρει ο ηλιακός άνεμος σκεδάζει μέρος της γαλαξιακής κοσμικής ακτινοβολίας που έχει εισέλθει στην ηλιόσφαιρα. Η ταχύτητα και η πυκνότητα του ηλιακού ανέμου έχουν επίδραση στην ποσότητα της γαλαξιακής ακτινοβολίας που φθάνει στα ενδότερα του ηλιακού συστήματος, καθώς φέρει και ισχυρό μαγνητικό πεδίο. Κατά τη πρόοδο του ηλιακού κύκλου, η υψηλότερη ροή μάζας και ενέργειας του ηλιακού ανέμου παρατηρείται κατά τα ηλιακά ελάχιστα, όταν ο αριθμός των στεμματικών οπών είναι μεγαλύτερος (Σχήμα 2.7) [S. Bravo et al., 1996, I.S. Veselovsky et al., 2000]. Η ροή ηλιακού ανέμου, όμως, έχει μικρότερη επίδραση στη ροή κοσμικής ακτινοβολίας στη Γη, με αποτέλεσμα να παίζει δευτερεύοντα ρόλο στη διακύμανση της συγκέντρωσης των κοσμογενών ισοτόπων.



Σχήμα 2.7 Η κύμανση με το χρόνο του αριθμού δεκάδων ηλιακών κηλίδων (συνεχής γραμμή) και της επιφάνειας που καλύπτουν οι στεμματικές οπές ως ποσοστό της επιφάνειας του δίσκου του Ήλιου (διακεκομμένη) με τις περιστροφές Carrington 1515-1912, διάστημα που αντιστοιχεί στην περίοδο ετών 1967-1996 [S. Bravo et al., 1996].

Η περιστροφή του Ήλιου κάνει τα υψηλής και χαμηλής ταχύτητας ρεύματα ηλιακού ανέμου να εναλλάσσονται. Στα σημεία που τα υψηλής ταχύτητας ρεύματα ηλιακού ανέμου φθάνουν τα χαμηλής ταχύτητας δημιουργούνται περιοχές αυξημένης πυκνότητας σωματιδίων. Οι διακυμάνσεις του μαγνητικού πεδίου που είναι αποτέλεσμα αυτής της διακύμανσης της πυκνότητας προκαλούν αλληλεπιδράσεις με το μαγνητικό πεδίο της Γης, μέσω του φαινομένου της μαγνητικής επανασύνδεσης, δημιουργώντας οπές στο μαγνητικό πεδίο της Γης. Αυτό έχει ως συνέπεια την αύξηση της ροής του πλάσματος στην ατμόσφαιρα και την πρόκληση μαγνητικών καταιγίδων με περίοδο 27 ημερών στη Γη, που σχετίζεται με την περίοδο περιστροφής του Ήλιου γύρω από τον άξονά του [Β. Veenadhari et al., 2012]. Γεωμαγνητικές καταιγίδες μπορούν να προκληθούν και από εκτίναξη στεμματικής μάζας, η οποία είναι έκρηξη ηλιακού ανέμου και άνοιγμα μαγνητικών γραμμών του πεδίου του Ήλιου που αλληλεπιδρούν με το μαγνητικό πεδίο της Γης. Οι περισσότερες προέρχονται από ενεργές περιοχές στην επιφάνεια του Ήλιου, όπως ομάδες ηλιακών κηλίδων και ακολουθούν και αυτές τον κύκλο του Ήλιου. Κατά το ηλιακό μέγιστο παρατηρούνται περί τις τρεις εκτινάξεις κάθε μέρα, ενώ κατά το ηλιακό ελάχιστο μία κάθε πέντε περίπου μέρες. Φαινόμενα όπως οι γεωμαγνητικές καταιγίδες μπορούν να επιδράσουν στην παραγωγή κοσμογενών ισοτόπων, όμως η μεταβολή στη συγκέντρωση τους είναι δύσκολα μετρήσιμη, λόγω του θορύβου που εισάγεται από τη μεταβολή των μετεωρολογικών συνθηκών που επίσης προκαλούν.

2.5 Εξάρτηση του ρυθμού παραγωγής από το γεωμαγνητικό πλάτος και το υψόμετρο

Όπως το μαγνητικό πεδίο του Ήλιου, έτσι και το μαγνητικό πεδίο της Γης προστατεύει εν μέρει τον πλανήτη από την κοσμική ακτινοβολία, εκτρέποντας ένα ποσοστό της κοσμικής ακτινοβολίας, το οποίο διαφορετικά θα έφθανε στη Γη. Αναπόφευκτα ένα μέρος της κοσμικής ακτινοβολίας φθάνει στη Γη, με το μεγαλύτερο ποσοστό της να εισέρχεται στην ατμόσφαιρα από μεγαλύτερα γεωγραφικά πλάτη. Το πολύ χαμηλότερο γεωμαγνητικό κατώφλι (δηλαδή η ελάχιστη ενέργεια που απαιτείται ώστε ένα φορτισμένο σωματίδιο να εισέλθει στην ατμόσφαιρα), που παρατηρείται κοντά στους πόλους έχει ως συνέπεια η ροή κοσμικής ακτινοβολίας να είναι πολύ υψηλότερη εκεί, με αποτέλεσμα και ο ρυθμός παραγωγής των κοσμογενών ισοτόπων και ειδικότερα του ⁷Be στη στρατόσφαιρα να είναι πολύ μεγαλύτερος σε μεγαλύτερα γεωγραφικά πλάτη [D. Lal et al., 1957].

Το γεωμαγνητικό κατώφλι για φορτισμένα σωματίδια σε υψόμετρο 450 km πάνω από τη μέση ακτίνα της Γης (6821.2 km από το κέντρο) υπό ενεργές γεωμαγνητικές συνθήκες φαίνεται στο Σχήμα 2.8 [D.F. Smart et al., 1999]. Αυτό που έχει ενδιαφέρον είναι ότι, ενώ στη νότια Ασία ξεπερνά τα 14 GV, κοντά στους γεωμαγνητικούς πόλους το κατώφλι είναι μικρότερο του 1 GV. Η έλλειψη συμμετρίας οφείλεται στην απόκλιση μεταξύ γεωγραφικών και μαγνητικών πόλων και στην ανομοιομορφία του μαγνητικού πεδίου της Γης.



Σχήμα 2.8 Καμπύλες σταθερής ενέργειας γεωμαγνητικού κατωφλίου φορτισμένων σωματιδίων για 450km υψόμετρο σε συνάρτηση με το γεωγραφικό μήκος (οριζόντιος άξονας) και το γεωγραφικό πλάτος (κατακόρυφος) [D.F. Smart et al., 1999]

Εξάρτηση του ρυθμού παραγωγής παρατηρείται και από το υψόμετρο, καθώς οι συγκρούσεις με τους πυρήνες της ατμόσφαιρας εξασθενούν τις κοσμικές ακτίνες όσο διεισδύουν στην ατμόσφαιρα. Ο μέγιστος ρυθμός παραγωγής του ισοτόπου παρατηρείται στη στρατόσφαιρα, ενώ μειώνεται πλησιάζοντας στην επιφάνεια της θάλασσας, όπου πρακτικά μηδενίζεται. Στο Σχήμα 2.9 φαίνεται ο ρυθμός παραγωγής του ⁷Be στην τροπόσφαιρα και συνολικά στην ατμόσφαιρα, συναρτήσει του γεωμαγνητικού πλάτους [D. Lal et al., 1957]. Όπως φαίνεται από το Σχήμα 2.9, στην τροπόσφαιρα ο ρυθμός παραγωγής είναι σχετικά σταθερός. Στη στρατόσφαιρα αντίθετα παρατηρείται μεγάλη κύμανση, που επηρεάζει και το συνολικό ρυθμό παραγωγής ⁷Be.



Σχήμα 2.9 Ο ρυθμός παραγωγής πυρήνων ⁷Be συναρτήσει του γεωγραφικού πλάτους στην τροπόσφαιρα και συνολικά [D. Lal et al., 1957].

Καμπύλες του ρυθμού παραγωγής του ισοτόπου συναρτήσει του υψομέτρου και του γεωγραφικού πλάτους παρουσιάζονται στο Σχήμα 2.10 για συνθήκες σταθερής θερμοκρασίας και πίεσης [Lal D. et al., 1967]. Για τα μεγάλα γεωμαγνητικά πλάτη ο ρυθμός παραγωγής του ισοτόπου βαίνει αυξανόμενος με το υψόμετρο μέχρι και τα 30 km, ενώ για μικρότερα γεωμαγνητικά πλάτη παρατηρείται μέγιστος ρυθμός παραγωγής γύρω στα 20 km.



Σχήμα 2.10 Καμπύλες σταθερού ρυθμού παραγωγής του ⁷Be ανά m³min σε σχέση με το υψόμετρο και το γεωμαγνητικό πλάτος για συνθήκες σταθερής θερμοκρασίας και πίεσης [Lal D. et al., 1967].

2.6 Παράγοντες εποχιακής διακύμανσης της συγκέντρωσης του ⁷Be στην κατώτερη ατμόσφαιρα

Μετά την παραγωγή του, το ⁷Be δημιουργεί γρήγορα χημικούς δεσμούς, κυρίως με το Ο και το ΟΗ. Ανήκοντας στις αλκαλικές γαίες, το στοιχείο του Be είναι ιδιαίτερα δραστικό και προσκολλάται στα ατμοσφαιρικά αερολύματα, οπότε και ακολουθεί την κίνηση των αερίων μαζών. Εξαρτώμενο από την κίνηση των αερίων μαζών, παρουσιάζει εποχιακή περιοδικότητα στη συγκέντρωσή του στην κατώτερη ατμόσφαιρα.

Το ⁷Be αποτίθεται στην επιφάνεια του εδάφους, είτε κατευθείαν από τον αέρα λόγω βαρύτητας (ξηρή απόθεση), είτε με τις σταγόνες της βροχής ή τις νιφάδες του χιονιού (υγρή απόθεση). Η υγρή απόθεση περιλαμβάνει δύο μηχανισμούς. Στο μηχανισμό «rainout» τα αερολύματα που περιέχουν ⁷Be συμμετέχουν στους πυρήνες συμπύκνωσης της βροχής, οπότε περιέχονται στις σταγόνες ή τις νιφάδες, ενώ στο

μηχανισμό «washout» παρασύρονται από τις κατακρημνίσεις στην πορεία τους προς την επιφάνεια.

Η εποχιακή διακύμανση της συγκέντρωσης του ⁷Be στην κατώτερη ατμόσφαιρα εξαρτάται κυρίως από μετεωρολογικούς παράγοντες, όπως η ανταλλαγή αερίων μαζών μεταξύ στρατόσφαιρας και τροπόσφαιρας, η μείωση της σταθερότητας της τροπόσφαιρας κατά τη διάρκεια των θερμότερων μηνών, η κίνηση των αερίων μαζών από τα μέσα γεωγραφικά πλάτη προς τα υψηλότερα και η υγρή απόθεση [H.W. Feely et al., 1988]. Η ανταλλαγή αερίων μαζών μεταξύ στρατόσφαιρας και του ευνοείται κατά τους θερμότερους μήνες, όταν η αύξηση του όγκου της τροπόσφαιρας που προκαλείται από τη θέρμανση του αέρα, έχει ως αποτέλεσμα την λέπτυνση του διαχωριστικού συνόρου μεταξύ των τροπόσφαιρας και στρατόσφαιρας, που είναι γνωστό και ως «τροπόπαυση» [Kulan A, 2006]. Η λεπτότερη τροπόσφαιρα και έχει αυξητική επίδραση στη συγκέντρωσή του ⁷Be στην τροπόσφαιρα, καθώς ο ρυθμός παραγωγής του στην στρατόσφαιρα είναι μεγαλύτερος αυτού στην τροπόσφαιρα.

Τους θερμότερους μήνες του χρόνου παρατηρείται και η ασταθέστερη ατμόσφαιρα, καθώς ειδικότερα στα μέσα γεωγραφικά πλάτη, προκαλούνται έντονα ανοδικά ρεύματα αερίων μαζών. Η θέρμανση της επιφάνειας του εδάφους από την ηλιακή ακτινοβολία προκαλεί τη θέρμανση του αέρα στην επιφάνεια του εδάφους. Εξαιτίας της θέρμανσης, οι θερμές αέριες μάζες μεταφέρονται προς τα πάνω και οι ψυχρότερες προς τα κάτω. Αυτή η κίνηση οδηγεί σε μείωση της σταθερότητας της τροπόσφαιρας κατά τη διάρκεια των θερμότερων μηνών και έχει ως αποτέλεσμα μεγαλύτερη κατακόρυφη μεταφορά αερίων μαζών. Το χειμώνα, που η τροπόσφαιρα είναι σχετικά σταθερότερη, δεν παρατηρείται το φαινόμενο στην ίδια κλίμακα. Καθώς ο ρυθμός παραγωγής του ⁷Be αυξάνεται με το υψόμετρο, η διαδικασία αυτή έχει αυξητική επίδραση στη συγκέντρωσή του στην κατώτερη ατμόσφαιρα. Τα αποτελέσματα πολλών μετρήσεων έχουν οδηγήσει σε μια εποχιακή συσχέτιση της συγκέντρωσης του ⁷Be στην επιφάνεια του εδάφους, με τις μέγιστες συγκεντρώσεις να παρατηρούνται την άνοιξη και το καλοκαίρι και τις ελάχιστες το φθινόπωρο και το χειμώνα.

Ένας άλλος παράγοντας που επηρεάζει τη συγκέντρωση του ⁷Be στην ατμόσφαιρα είναι η οριζόντια μεταφορά των αερίων μαζών. Ο παράγοντας της οριζόντιας κίνησης αερίων μαζών είναι ευκολότερα παρατηρήσιμος στους πόλους, όπου η σταθερότητα των πολικών αέριων μαζών δεν επιτρέπει την κατακόρυφη μεταφορά αερίων μαζών από την ανώτερη πολική τροπόσφαιρα προς την επιφάνεια, ακόμα και κατά τη διάρκεια του θέρους. Παρόλα αυτά, κι εδώ παρατηρούνται εποχιακές μεταβολές της συγκέντρωσης του, που στην Αρκτική παρουσιάζει μέγιστο στο τέλος του χειμώνα και τις αρχές της άνοιξης (Σχήμα 2.11), εποχή που συμπίπτει με την άφιξη αερίων μαζών που πιστεύεται ότι προέρχονται από μικρότερα γεωγραφικά πλάτη. Ομοίως, στην Ανταρκτική η συγκέντρωση του ⁷Be στον αέρα σχετίζεται με το ρυθμό εισροής αερίων μαζών από μικρότερα γεωγραφικά πλάτη [H.W. Feely et al., 1988].



Σχήμα 2.11 Η μέση μηνιαία συγκέντρωση του ⁷Be σε τρεις περιοχές της αρκτικής [Η.W. Feely et al., 1988]

Ένας ακόμα σημαντικός παράγων που επηρεάζει τη συγκέντρωση του ⁷Be στην κατώτερη ατμόσφαιρα είναι και οι υγρές ατμοσφαιρικές κατακρημνίσεις (βροχή και χιόνι). Η υγρή απόθεση απομακρύνει τα αερολύματα της ατμόσφαιρας, μειώνοντας τη συγκέντρωσή του ⁷Be στον αέρα. Είναι πολύ πιο αποτελεσματική από την ξηρή απόθεση και ευθύνεται περίπου για το 90% της συνολικής απόθεσης. Μετά από βροχή ή χιονόπτωση παρατηρούνται μικρότερες συγκεντρώσεις του ισοτόπου ⁷Be στον αέρα, συνεπώς υπάρχει αρνητική συσχέτιση μεταξύ τους. Στο Σχήμα 2.12 απεικονίζεται η συγκέντρωση του ⁷Be παράλληλα με το ρυθμό κατακρημνίσεων στην περιοχή του Miami των ΗΠΑ. Όπως διαπιστώνεται από το Σχήμα αυτό, οι χαμηλές καλοκαιρινές συγκεντρώσεις συμπίπτουν με περίοδο υψηλών βροχοπτώσεων [H.W. Feely et al., 1988].



Σχήμα 2.12 Η μέση μηνιαία συγκέντρωση του ⁷Be στο Miami και οι μηνιαίες κατακρημνίσεις [H.W. Feely et al., 1988]

Ο συνδυασμός των παραπάνω παραγόντων έχει διαφορετικό αντίκτυπο από περιοχή σε περιοχή. Για παράδειγμα, στο Σχήμα 2.13 παρουσιάζεται η μέση εποχιακή συγκέντρωση του ⁷Be στον αέρα της Granada, στην Ισπανία [M. Azahra et al., 2003]. Οι μεγαλύτερες συγκεντρώσεις μετρήθηκαν το καλοκαίρι, ενώ οι μικρότερες το φθινόπωρο και το χειμώνα. Αυτή η συμπεριφορά στη συγκέντρωση του ισοτόπου αντιπροσωπεύει τις περισσότερες περιοχές στα μέσα γεωγραφικά πλάτη. Οι χαμηλότερες συγκεντρώσεις τα έτη 2000 και 2001 πιθανώς σχετίζονται με το ηλιακό μέγιστο αυτής της περιόδου [Μ. Azahra et al., 2003]. Παρόμοια συμπεριφορά συναντάται σε μέσα γεωγραφικά πλάτη στο νότιο ημισφαίριο, όπως φαίνεται στο Σχήμα 2.14, για τρεις περιοχές της Νότιας Αμερικής, με τις υψηλότερες συγκεντρώσεις να παρατηρούνται πάλι το καλοκαίρι και τις χαμηλότερες το χειμώνα [H.W. Feely et al., 1988]. Αντίθετα, σε μετρήσεις που έγιναν στην Ιαπωνία τα έτη 2002-2004 και που παρουσιάζονται στο Σχήμα 2.15, φαίνεται ότι η μέγιστη συγκέντρωση του ⁷Be στον αέρα στο Tokyo εμφανίζεται στα μέσα της άνοιξης και του φθινοπώρου, διάστημα που συμπίπτει με το πέρασμα ζεύγους κυκλώνα αντικυκλώνα από την Ιαπωνία. Κατά την περίοδο αυτή, η διαμόρφωση της υψηλής και χαμηλής ατμοσφαιρικής πίεσης που προκύπτει δημιουργεί έντονα καθοδικά και ανοδικά ρεύματα αέρα, που πιθανώς εμπλουτίζουν την κατώτερη τροπόσφαιρα σε ⁷Be [M. Yoshimori, 2005].



Σχήμα 2.13 Η μέση εποχιακή συγκέντρωση του ⁷Be στον αέρα στη Granada της Ισπανίας από το χειμώνα του 1993 ως το φθινόπωρο του 2001. W=χειμώνας, Sp=άνοιξη, Sm=καλοκαίρι, F=φθινόπωρο [M. Azahra et al., 2003].



Σχήμα 2.14 Η μέση συγκέντρωση του ⁷Be σε τρεις περιοχές του νοτίου ημισφαιρίου [H.W. Feely et al., 1988].



Σχήμα 2.15 Η μέση εβδομαδιαία συγκέντρωση του ⁷Be στον αέρα στο Tokyo. Ο οριζόντιος άξονας παρουσιάζει τον αύξοντα αριθμό ημέρας του έτους. [Μ. Yoshimori, 2005]

2.7 Απόθεση του ⁷Be μέσω της βροχής

Λεπτομερής μελέτη της απόθεσης του ⁷Be μέσω της βροχής πραγματοποιήθηκε από τους A. Ioannidou et al. (2005). Κατά τη διάρκεια των ετών 1987 – 1992 συλλέχθηκαν δείγματα από όλα τα γεγονότα κατακρημνίσεων με δειγματολήπτες ενεργού επιφάνειας 1.12 m² στην οροφή του κτιρίου Θετικών Επιστημών του Αριστοτελείου Πανεπιστημίου Θεσσαλονίκης (20 m από την επιφάνεια της θάλασσας, 40°38' B, 22°58' A). Με το πέρας κάθε βροχόπτωσης, τα δείγματα νερού τοποθετούνταν σε δεξαμενές. Μετά την αφαίρεση των δειγμάτων νερού, το εσωτερικό των δειγματοληπτών ξεπλενόταν με 1L οξινισμένου αποσταγμένου νερού, που προστίθετο στο δείγμα. Μετά τη διαδικασία συλλογής, οι μεγάλοι όγκοι νερού βροχής συμπυκνώνονταν στο 1L μέσω εξάτμισης και υπόκειντο σε οξίνιση με 1 cm³ διαλύματος HNO₃ 65% ανά λίτρο νερού βροχής πριν την εξάτμιση, ώστε να προληφθεί κάθε απώλεια ατόμων ⁷Be από απορρόφηση στην επιφάνεια του χρησιμοποιούμενου δοχείου. Η συγκέντρωση του ⁷Be μετρήθηκε με ανιχνευτή HPGe υψηλής απόδοσης (42%), χαμηλού υποβάθρου και σε γεωμετρία Marinelli 1L.

Η συνολική συγκέντρωση του ⁷Be στο νερό της βροχής εξαρτάται από τη μάζα των αερολυμάτων που ξεπλύθηκαν και τον όγκο του νερού που συλλέχθηκε. Η συγκέντρωση του ισοτόπου, όμως, είναι μια ποσότητα ανεξάρτητη από το ύψος της βροχής. Παρόλα αυτά εξαρτάται από τη διάρκεια της βροχόπτωσης και την έντασή της για δεδομένο χρόνο. Η ανάλυση έδειξε ότι όσο ο ρυθμός κατακρημνίσεων ελαττώνεται, η συγκέντρωση του ⁷Be αυξάνεται (Σχήμα 2.16). Στην παραπάνω εργασία, γίνεται κατηγοριοποίηση των δειγμάτων νερού βάσει της διάρκειας της βροχόπτωσης σε σύντομες (<5h) και διαρκείς (>5h). Για δεδομένη διάρκεια βροχόπτωσης, τα συλλεχθέντα δείγματα βροχής μικρής ποσότητας έδειξαν μεγαλύτερες συγκεντρώσεις του ισοτόπου από τα δείγματα μεγάλης ποσότητας και συνολικά, δείγματα μικρής ποσότητας και μικρής διάρκειας βροχόπτωσης έφθαναν σε σχεδόν 5 φορές μεγαλύτερες συγκεντρώσεις ⁷Be από τα δείγματα διαρκών και έντονων βροχοπτώσεων (Σχήμα 2.17).



Σχήμα 2.16 Ο ρυθμός κατακρημνίσεων και συγκέντρωση του ¹³⁷Cs στο νερό της βροχής [A. loannidou et al, 2005].



Σχήμα 2.17 Συγκέντρωση του ⁷Be στο νερό της βροχής για σύντομη (αριστερά) και διαρκή (δεξιά) βροχόπτωση. Το μαύρο χρώμα αντιπροσωπεύει μικρή ποσότητα βροχής, ενώ το γκρίζο μεγάλη [A. loannidou et al, 2005].

Η συγκέντρωση του ⁷Be για βροχοπτώσεις μικρής έντασης μειώνεται περίπου στο μισό όταν η διάρκεια αυξάνεται, ενώ για βροχοπτώσεις μεγάλης έντασης η συγκέντρωση αυξάνεται ελαφρώς με τη διάρκεια. Αυτό σημαίνει ότι ακόμα και μια βροχόπτωση μεγάλης έντασης δεν καθαρίζει αποτελεσματικά την ατμόσφαιρα από τα αερολύματα και υπάρχουν αρκετά να παρασυρθούν ακόμα και μετά από ώρες βροχόπτωσης. Είναι επίσης ξεκάθαρο ότι το νερό βροχής μικρής διάρκειας και έντασης έχει τη μεγαλύτερη συγκέντρωση ⁷Be. Αυτό οφείλεται στο μικρότερο όγκο που καταλαμβάνουν οι μικρές σταγόνες και τη μεγαλύτερη επιφάνεια αναλογικά, που αυξάνει τη δυνατότητα σάρωσης, σε αντίθεση με τις μεγάλες σταγόνες, που ο λόγος επιφάνειας προς όγκο είναι μικρότερος. Επιπροσθέτως, οι ασθενείς βροχοπτώσεις σχετίζονται με μεγάλο ρυθμό εξάτμισης από την επιφάνεια της σταγόνας, λόγω της χαμηλότερης υγρασίας στην αέρια μάζα, αυξάνοντας τη συγκέντρωση του ισοτόπου, τελικά, στο νερό [Wogman N.A. et al., 1968].

Στη δημοσίευση Α. loannidou et al. (2005) αναφέρεται επίσης ότι η συγκέντρωση του ισοτόπου κατά της διάρκεια ενός γεγονότος βροχόπτωσης φθίνει εκθετικά με το χρόνο και στο δεύτερο μισό της βροχόπτωσης φθάνει τις 2.5 με 3 φορές μικρότερη από αυτή του πρώτου μισού. Το Σχήμα 2.18 δείχνει τη συγκέντρωση του ⁷Be στο νερό της βροχής για ένα γεγονός βροχόπτωσης. Η μεγαλύτερη ποσότητα του ⁷Be αποτίθεται κατά τις πρώτες ώρες. Την τελευταία ώρα της βροχής, η συγκέντρωση του ⁷Be αποτίθεται κατά τις πρώτες ώρες. Την τελευταία ώρα της βροχής, η συγκέντρωση του ⁷Be αυξάνεται ελαφρώς, πιθανώς λόγω της μικρότερης έντασης βροχόπτωσης, που είχε ως αποτέλεσμα καλύτερη σχετικά σάρωση των αερολυμάτων, λόγω του μεγαλύτερου λόγου επιφάνειας προς όγκο. Πάντως, η αύξηση αυτή ενδεχομένως δεν είναι στατιστικά σημαντική, κάτι που δεν είναι δυνατόν να ελεγχθεί, καθώς στην υπόψη εργασία δεν δίνονται καθόλου στοιχεία σχετικά με την αβεβαιότητα των αποτελεσμάτων.



Σχήμα 2.18 Κύμανση της συγκέντρωσης του ⁷Be και του ¹³⁷Cs στο νερό της βροχής κατά ένα γεγονός βροχόπτωσης. Οι δεκαδικοί αριθμοί για κάθε στάδιο της βροχόπτωσης δείχνουν το ρυθμό κατακρημνίσεων σε mm/h [A. loannidou et al., 2005].

2.8 Απόθεση του ⁷Βε μέσω του χιονιού

Λόγω της μικρής πυκνότητάς του, το χιόνι έχει το χαρακτηριστικό να καταλαμβάνει μεγαλύτερο όγκο και συνεπώς να έχει μεγαλύτερη ικανότητα σάρωσης των αερολυμάτων της ατμόσφαιρας και κατά συνέπεια και του ⁷Be. Εκτιμάται ότι η σαρωτική ικανότητά των νιφάδων του χιονιού είναι ~2 φορές υψηλότερη από αυτή των σταγόνων της βροχή [A. loannidou et al., 2005].

Μελέτη των μηχανισμών υγρής απόθεσης από το χιόνι έχει πραγματοποιηθεί στο παρελθόν από τους Υ. Ishikawa et al. (1994). Οι μετρήσεις της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα και το νερό του χιονιού και ο ρυθμός κατακρημνίσεων σε ισοδύναμη βροχόπτωση λήφθηκαν στο επίπεδο του εδάφους στην Onagawa (Ιαπωνία), κατά τη διάρκεια χιονόπτωσης στις 5 και 6 Μαρτίου 1992. Το δείγμα του χιονιού λήφθηκε σε δοχείο δειγματοληψίας με επιφάνεια 0.5 m² και βάθος 0.4m, στο οποίο προηγουμένως είχε προστεθεί αποσταγμένο νερό. Με το πέρας κάθε δειγματοληψίας, το συλλεχθέν δείγμα εξατμιζόταν πλήρως σε δοχείο πολυστυρενίου και ακολουθούσε γ-φασματοσκοπία. Τα αποτελέσματα έδειξαν ότι κατά τη διάρκεια της χιονόπτωσης, η συγκέντρωση του ⁷Be στον αέρα πέφτει γρήγορα κάτω από το όριο ανίχνευσης, όπως φαίνεται και στο Σχήμα 2.19. Αυτό υποδηλώνει τη λειτουργία του μηχανισμού «washout», που καθαρίζει αποτελεσματικά την ατμόσφαιρα από τα αερολύματα. Μετά το τέλος της χιονόπτωσης, η συγκέντρωση του ⁷Be αρχίζει να ανακάμπτει στην αρχική του τιμή, δείχνοντας την ανανέωση του αέρα μετά από περίοδο χαμηλής βαρομετρικής πίεσης.

Η συγκέντρωση του ⁷Be στο νερό του χιονιού επίσης μειώνεται ταχέως, από το αρχικό επίπεδο των 4 Bq/l σε περίπου 1 Bq/l. Η αρχικά υψηλή ποσότητα, πιθανότατα δείχνει τη συνεισφορά στη συγκέντρωση του ⁷Be στο νερό του μηχανισμού απόθεσης washout, με το χιόνι να παρασύρει αερολύματα από τη μάζα αέρα κάτω από το σύννεφο, ενώ η τελευταία σταθερή τιμή που εμφανίζεται μεταξύ της περιόδου πολύ μικρής συγκέντρωσης ⁷Be στον αέρα στο επίπεδο του εδάφους δείχνει τη συνεισφορά του μηχανισμού rainout. Σύμφωνα με τη δημοσίευση [Υ. Ishikawa et al., 1994], ο μηχανισμός washout συνεισφέρει σημαντικά στην αλλαγή της συγκέντρωσης, ενώ ο μηχανισμός rainout είναι σημαντικός κατά την υπόλοιπη διάρκεια.



Σχήμα 2.19 Κύμανση της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα (a), στο νερό του χιονιού (b) και ρυθμός κατακρημνίσεων (c) [Y. Ishikawa et al., 1994].

Το Σχήμα 2.20 δίνει μια γενική εικόνα του μοντέλου καθαρισμού των αερολυμάτων από τις νιφάδες του χιονιού ή σταγόνες βροχής. Τα συμπυκνώματα σε ένα σύννεφο εμπεριέχουν ⁷Be προερχόμενο από «rainout» και σαρώνουν περισσότερα αερολύματα, και κατ' επέκταση ⁷Be, από την αέρια μάζα στην πορεία τους προς την επιφάνεια. Συνεπώς, οι νιφάδες του χιονιού στο επίπεδο του εδάφους περιέχουν ⁷Be από συνεισφορά και των δύο μηχανισμών. Η συγκέντρωση του ⁷Be στο χιόνι θα είναι υψηλότερη αρχικά. Αργότερα, καθώς τα αερολύματα σαρώνονται, η συγκέντρωσή τους στα στρώματα αέρα θα μειωθεί και συνεπώς, οι νιφάδες δεν θα συνεχίσουν να φέρουν την ίδια ποσότητα ⁷Be και γι' αυτό το λόγο η συγκέντρωση στις νιφάδες σε προχωρημένο στάδιο της χιονόπτωσης είναι μειωμένη και σχεδόν σταθερή, καθώς συνεισφέρει κυρίως ή και αποκλειστικά ο μηχανισμός «rainout».



Σχήμα 2.20 Εικονικό μοντέλο καθαρισμού των αερολυμάτων από κατακρημνίσεις. Με κύκλο απεικονίζονται οι νιφάδες ή οι σταγόνες της βροχής και με σημεία τα αερολύματα με ραδιενεργούς πυρήνες. Το Α αντιπροσωπεύει τον καθαρισμό από το μηχανισμό rainout, το B από το μηχανισμό washout και με C η ταυτόχρονη λειτουργία των δύο. [Y. Ishikawa et al., 1994]

Το Σχήμα 2.21 δείχνει μια γραμμική συσχέτιση μεταξύ της απόθεσης του ⁷Be και των κατακρημνίσεων (κυρίως χιονόπτωσης) που παρατηρήθηκαν από τα τέλη Δεκεμβρίου 1991 μέχρι τα τέλη Μαρτίου 1992 στην Oganawa και στο όρος Nabekura στην Ιαπωνία. Η γραμμικότητα της σχέσης πιθανότατα αντιπροσωπεύει τη μεγάλη συνεισφορά του μηχανισμού rainout.



Σχήμα 2.21 Συσχέτιση μεταξύ της απόθεσης του ⁷Be και των κατακρημνίσεων στην επιφάνεια του εδάφους στην Oganawa (κύκλοι) και στην κορυφή του όρους Nabekura (τρίγωνα) [Y. Ishikawa et al., 1994].

Σύμφωνα με το μοντέλο που απεικονίζεται στο Σχήμα 2.20, στην κορυφή του βουνού, το νερό του χιονιού θα περιέχει κυρίως ⁷Be προερχόμενο από το μηχανισμό rainout. Τα τρίγωνα στο Σχήμα 2.21 δείχνουν τη σχέση μεταξύ της απόθεσης του ⁷Be και της κατακρήμνισης (ισοδύναμο νερό βροχής) από μετατροπή της μάζας των δειγμάτων χιονιού, τα οποία συλλέχθηκαν από 0 – 10 cm και 10 – 20 cm στρωμάτων από την επιφάνεια στην κορυφή του όρους Nabekura (1100 m) από την επιφάνεια της θάλασσας. Αυτά τα δύο τρίγωνα βρίσκονται κοντά στην ευθεία αναδρομής που σχεδιάζεται για τα δεδομένα στην Onagawa. Αυτό σημαίνει ότι οι συγκεντρώσεις του ⁷Be στο νερό του χιονιού στην κορυφή ενός υψηλού βουνού είναι παραπλήσιες σε σύγκριση με το τι συμβαίνει σε χαμηλότερα υψόμετρα. Τα παραπάνω αποτελέσματα υποδηλώνουν ότι η απόθεση του ⁷Be για την κορυφή ενός βουνού και σε χαμηλότερα υψόμετρα, εκτός από την αρχή της χιονόπτωσης, είναι σχεδόν ίση και αποτέλεσμα της συνεισφοράς κατά κύριο λόγο του φαινομένου «rainout». Σύμφωνα με τους μοινιού είναι πιο αποτελεσματικός από τις σταγόνες της βροχής στο μηχανισμό «rainout».



Σχήμα 2.22 Σχέσεις μεταξύ μηνιαίας απόθεσης ⁷Be και κατακρημνίσεων Στο πάνω μέρος κάθε επί μέρους σχήματος υπάρχουν οι χειμερινές μετρήσεις, ενώ στο κάτω μέρος οι μετρήσεις κατά τη διάρκεια του υπόλοιπου χρόνου [Y. Ishikawa et al., 1994. Με αστερίσκο επισημαίνονται δεδομένα από άλλες μελέτες στην Ιαπωνία που παρατέθηκαν για σύγκριση στην παραπάνω δημοσίευση].

Τα αποτελέσματα που παρατίθενται στο Σχήμα 2.22 δείχνουν ότι τους χειμερινούς μήνες υπάρχει μεγαλύτερη κλίση της συνάρτησης αναδρομής του ρυθμού απόθεσης και του όγκου κατακρημνίσεων, από αυτή για τις παρατηρήσεις άνοιξης έως και φθινοπώρου. Πρέπει πάντως στο σημείο αυτό να επισημανθεί ότι δεν διατίθενται στοιχεία προκειμένου να αξιολογηθεί το κατά πόσον η διαφορά αυτή στην κλίση των συναρτήσεων είναι στατιστικά σημαντική. Επιπλέον, σε πολλές περιπτώσεις δεν διαπιστώνεται η ύπαρξη συσχέτισης, ειδικά για την περίοδο άνοιξης έως φθινοπώρου.

2.9 Το όζον και η συσχέτιση του με το ⁷Be

Το όζον (O₃) είναι τριατομικό αέριο, ασταθές, ισχυρά οξειδωτικό, ελαφρώς γαλάζιου χρώματος, που αποτελείται από 3 άτομα οξυγόνου με την ακόλουθη διάταξη (Σχήμα 2.23):



Σχήμα 2.23 Η μοριακή δομή του όζοντος

Παράγεται κυρίως σε ύψος από 15 έως 50 km από την επιφάνεια του εδάφους, όταν η αλληλεπίδραση μικρού μήκους κύματος υπεριώδους ακτινοβολίας με το διατομικό οξυγόνο (O₂) έχει ως συνέπεια την καταστροφή του ομοιοπολικού δεσμού του τελευταίου. Τα ελεύθερα άτομα που προκύπτουν κατ' αυτό τον τρόπο αντιδρούν πάλι με το διατομικό οξυγόνο, παρουσία καταλύτη (M), παράγοντας όζον, σύμφωνα με τις αντιδράσεις:

$$O_2$$
 + hv (λ <242 nm) \rightarrow 2 O
O + O_2 + M \rightarrow O_3 + M

Επιστρέφει στη διατομική του μορφή, αφού αντιδράσει με ατομικό οξυγόνο παρουσία υδροξυλίου (OH), μονοξείδιο του αζώτου (NO), ατομικό χλώριο (CI) ή βρώμιο (Br), σύμφωνα με τις χημικές αντίδρασεις:

$$O_3$$
 + hv (λ <315 nm) \rightarrow O_2 + O
 O_3 + O \rightarrow 2 O_2
 O_3 + NO \rightarrow NO₂ + O_2
 O_3 + Cl \rightarrow O_2 +ClO

Η στοιβάδα του όζοντος είναι σημαντική για τις υπάρχουσες μορφές ζωής, καθώς απορροφά το μεγαλύτερο ποσοστό της υπεριώδους ακτινοβολίας του Ήλιου, που είναι θανατηφόρα για τους περισσότερους μονοκύτταρους οργανισμούς και τους ιούς, ενώ στον άνθρωπο μπορεί να προκαλέσει εγκαύματα, καρκίνο του δέρματος και καταρράκτη.

Το όζον στην κατώτερη ατμόσφαιρα μπορεί να παραχθεί εμμέσως, από βιομηχανικές εκπομπές ή εκπομπές κινητήρων αυτοκινήτων, όταν πρωτογενείς ρύποι, όπως πτητικές οργανικές ενώσεις (Volatile Organic Compounds, VOCs) αντιδράσουν με το οξυγόνο παρουσία NO_x και OH, παράγοντας O₃ και καρβονυλικές ενώσεις (CARB). Επιπλέον, μπορεί να παραχθεί όταν μονοξείδιο του άνθρακα (CO) ή οξείδια του αζώτου αντιδράσουν με το ατμοσφαιρικό οξυγόνο, υπό συνθήκες έντονης ηλιακής ακτινοβολίας και υψηλής θερμοκρασίας, σύμφωνα με τις ακόλουθες αντιδράσεις:

 $VOC + 4O_2 + NOx + OH \rightarrow 2O_3 + CARB + H_2O + NOx + OH$ $CO + 2O_2 \rightarrow CO_2 + O_3$ $HO_2 + NO \rightarrow OH + NO_2$ $NO_2 + hv \rightarrow NO + O$ $O + O_2 + N_2 \rightarrow O_3 + N_2$

Το όζον στην κατώτερη ατμόσφαιρα θεωρείται ρύπος, που σε υψηλές τιμές μπορεί να προκαλέσει μόνιμη βλάβη στους πνεύμονες, ενώ ακόμα και σε σχετικά χαμηλές συγκεντρώσεις η εισπνοή του μπορεί να προκαλέσει ερεθισμό της αναπνευστικής οδού, φλεγμονή στους πνεύμονες, πόνο στο στήθος, βήχα και να επιδεινώσει καρδιακά προβλήματα, βρογχίτιδα, εμφύσημα και άσθμα, ενώ έχει επίπτωση και στα φυτά, όπου προκαλεί νέκρωση των φύλλου και μείωση της σοδειάς στις καλλιέργειες. Στην Ελλάδα έχουν θεσπιστεί συγκεκριμένα όρια για τη συγκέντρωση του όζοντος στην ατμόσφαιρα, σύμφωνα με τα με τα όρια ποιότητας ατμόσφαιρας που έχει καθιερώσει η Ευρωπαϊκή Ένωση, ώστε να διαφυλάσσεται η ανθρώπινη υγεία, αλλά και αυτή των οικοσυστημάτων.

Μετρήσεις των συγκεντρώσεων ρύπων στην επιφάνεια του εδάφους πραγματοποιούνται συνεχώς από το Εθνικό Δίκτυο Παρακολούθησης Ατμοσφαιρικής Ρύπανσης (ΕΔΠΑΡ), με 14 σταθμούς εγκατεστημένους στην περιοχή της Αττικής

(Σχήμα 2.24), ώστε να ελέγχεται η τήρηση των ορίων και να ενημερώνεται το κοινό σε τρέχοντα χρόνο, ώστε οι ευαίσθητες πληθυσμιακές ομάδες να παίρνουν τα κατάλληλα μέτρα προστασίας σε περίπτωση που υπάρχει υπέρβαση των ορίων.



Σχήμα 2.24. Θέσεις σταθμών μέτρησης ατμοσφαιρικής ρύπανσης του ΕΔΠΑΡ στην Αττική. [geodata.gov.gr]

Οι μετρήσεις της συγκέντρωσης του όζοντος πραγματοποιούνται με τεχνικές οπτικής φασματοσκοπίας που στηρίζονται στη διαφορική απορρόφηση στο υπεριώδες φως. Ανιχνευτές τέτοιου τύπου λειτουργούν αντλώντας δυο δείγματα αέρα από το περιβάλλον. Στο ένα δείγμα αφαιρείται το όζον με ειδικό φίλτρο που περιέχει MnO₂, ώστε να υπολογιστεί η απορρόφηση της υπεριώδους ακτινοβολίας από τις υπόλοιπες χημικές ενώσεις που βρίσκονται στον αέρα και απορροφούν επίσης το υπεριώδες φως, όπως το διοξείδιο του θείου και αρωματικές ενώσεις. Το δείγμα ακτινοβολείται με φωτόνια μήκους κύματος 253.7 nm από λάμπα υδραργύρου και μετράται η ακτινοβολία που διαπερνά το δείγμα. Στο δεύτερο δείγμα ακολουθείται η ίδια διαδικασία χωρίς την αφαίρεση όζοντος. Από τη διαφορά μεταξύ των δυο τιμών εκτιμάται η τιμή της συγκέντρωσης όζοντος στα δείγματα αέρα εκείνη τη στιγμή σύμφωνα με τη σχέση Beer-Lambert.

 $I = I_0 \cdot e^{-\alpha LC}$

όπου:

Ι ένταση του φωτός μετά την απορρόφηση από το όζον

- I₀ ένταση του φωτός σε μηδενική συγκέντρωση του όζοντος
- α συντελεστής μοριακής απορρόφησης όζοντος
- L μήκος διαδρομής
- C συγκέντρωση του όζοντος

Το O₃ μαζί με το ⁷Be μπορούν να χρησιμοποιηθούν ως στρατοσφαιρικοί ιχνηλάτες. Οι μετρήσεις τους μπορούν να δώσουν πολλές πληροφορίες για τις ατμοσφαιρικές διεργασίες. Οι ανταλλαγές μεταξύ στρατόσφαιρας και τροπόσφαιρας εμπλουτίζουν την τροπόσφαιρα τόσο σε ⁷Be, όσο και σε O₃, καθώς οι συγκεντρώσεις αμφότερων αρκετά υψηλότερη στη στρατόσφαιρα. είναι Μια εισβολή στρατοσφαιρικής μάζας μπορεί να ανιχνευτεί από την παρατήρηση αυξημένης συγκέντρωσης αυτών των δύο ισοτόπων. Στην ανώτερη τροπόσφαιρα, ένα γεγονός ανταλλαγής στρατόσφαιρας -τροπόσφαιρας μπορεί να γίνει εύκολα διακριτό. Στη μέση και κατώτερη τροπόσφαιρα η αναγνώριση μιας μάζας αέρα στρατοσφαιρικής προέλευσης είναι πιο σύνθετη διαδικασία, λόγω του πλήθους των μηχανισμών που σβήνουν τα στρατοσφαιρικά της χαρακτηριστικά. Παρά τις δυσκολίες στην ταυτοποίηση μάζας αέρα στρατοσφαιρικής προέλευσης, έχουν πραγματοποιηθεί ορισμένες μελέτες που χρησιμοποίησαν τη συσχέτιση μεταξύ ⁷Be και O₃ για να ποσοτικοποιήσουν τη συνεισφορά του στρατοσφαιρικού όζοντος στη συγκέντρωση του εδάφους.

Σύγκριση των συγκεντρώσεών των ⁷Be και O₃ σε μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν στη Βιέννη (περιοχή Hohe Warte, με συντεταγμένες 48°15' Β και 16°21.5' Α, σε υψόμετρο 202 m από την επιφάνεια της θάλασσας) από τους Karl Irlweck et al. (1997) δείχνουν ότι οι συγκεντρώσεις του ⁷Be ακολουθούν κύκλο με μένιστες τιμές να παρουσιάζονται την άνοιξη και το καλοκαίρι. Λόγω της παραγωγής του και από το φωτοχημικό φαινόμενο, οι συγκεντρώσεις του Ο3 επίσης παρουσιάζουν εποχιακές διακυμάνσεις, που φτάνουν το μέγιστό τους το καλοκαίρι. Η συγκέντρωση του Ο3 εντός της ημέρας παρουσιάζει μέγιστη τιμή το μεσημέρι και ελάχιστη τη νύχτα, που φτάνει κάτω από τα όρια ανίχνευσης. Καθώς η σύγκριση των μέσων τιμών 24ώρου δεν μπορεί να αποδώσει ικανοποιητικά συμπεράσματα, στην παραπάνω εργασία πραγματοποιήθηκε και μια πιο λεπτομερής σύγκριση, χρησιμοποιώντας δίωρες αναλύσεις αερολυμάτων. Ειδικότερα, το καλοκαίρι του 1994, έγιναν δύο σειρές μετρήσεων σε δύο περιόδους (περίοδος Α, από 25 Ιουλίου έως 05 Αυγούστου και περίοδος Β από 29 Αυγούστου έως 09 Σεπτεμβρίου). Οι μετρήσεις αυτές έγιναν με βάση το εξής πρωτόκολλο: δίωρες μετρήσεις ⁷Be και O₃, από 07:00 ανά δύο ώρες μέχρι τις 19:00, και εν συνεχεία 12ωρη δειγματοληψία, που

έκλεινε τον ημερήσιο κύκλο. Στο Σχήμα 2.25, όπου παρουσιάζονται τα αποτελέσματα της παραπάνω εργασίας, φαίνεται ότι οι έντονα αυξημένες συγκεντρώσεις του ⁷Be στον αέρα συνέπιπταν με αύξηση στην συγκέντρωση και του όζοντος. Σε λίγες περιπτώσεις, αύξηση της συγκέντρωσης του ⁷Be κατά 5 mBq/m³ εντός διαστήματος 2 ωρών συνδεόταν με αύξηση στη συγκέντρωση του όζοντος κατά 10 ppbv. Τέτοια περιστατικά, όμως, διαρκούν λίγο, καθώς στο επίπεδο του εδάφους το πρόσθετο όζον καταστρέφεται σχετικά γρήγορα. Συνεπώς, μια υψηλή συγκέντρωση ⁷Be δεν συνοδεύεται απαραίτητα με υψηλή συγκέντρωση Ο₃.



Σχήμα 2.25 Οι συγκεντρώσεις ⁷Be και O_3 στον αέρα του εδάφους για τις 26-30 Ιουλίου 1994 (αριστερά) και 7-8 Σεπτεμβρίου (δεξιά) [K. Irlweck et al.,1997].

Γενικά, οι συγκεντρώσεις του ⁷Be και του O₃ ήταν πολύ υψηλότερες κατά την περίοδο A, όπου σύστημα υψηλού βαρομετρικού είχε ως αποτέλεσμα ζεστές ηλιόλουστες μέρες (μέση θερμοκρασία ~26 °C), ενώ την περίοδο B οι θερμοκρασίες ήταν χαμηλότερες (μέση θερμοκρασία ~20 °C). Οι πρώτες αναλύσεις συσχέτισης των δύο περιόδων παρουσιάζονται στο Σχήμα 2.26. Τα αποτελέσματα δείχνουν ότι η συσχέτιση – όπου υπάρχει – είναι ασθενής, πιθανόν λόγω του μικρού πλήθους μετρήσεων. Συγκεκριμένα, για τις μέσες τιμές 24ώρου για την περίοδο A προέκυψε ασθενής αρνητική συσχέτιση, με συντελεστή συσχέτισης r = -0.41. Για τις μέσες τιμές

6ώρου δεν διαπιστώθηκε συσχέτιση (r = 0.13). Για την περίοδο B δεν διαπιστώθηκε συσχέτιση (r = 0.16) και (r = 0.12) αντίστοιχα. Προκειμένου να εξαλειφθεί η επίδραση του O₃ που παραγόταν τοπικά, υπολογίστηκε η μέση ημερήσια διακύμανσή του και για τις δύο περιόδους. Αυτό το ημερήσιο μοτίβο έρχεται σε συμφωνία με την τυπική καλοκαιρινή τιμή για το σταθμό δειγματοληψίας στη Bιέννη. Σε δεύτερο βήμα υπολογίστηκαν οι διαφορές μεταξύ αυτών των τιμών και των μέσων τιμών δίωρου. Στη συνέχεια, συσχετίστηκαν οι νέες τιμές της συγκέντρωσης του O₃ με τις μετρηθείσες τιμές της συγκέντρωσης ⁷Be το ίδιο δίωρο. Ως αποτέλεσμα, προέκυψε μη συσχέτιση για την περίοδο A (r = 0.16) και ελαφρά αρνητική συσχέτιση για την περίοδο B



Σχήμα 2.26 Γραμμική συσχέτιση συγκεντρώσεων ⁷Be και Ο₃ στον αέρα του εδάφους για δύο περιόδους εντός του καλοκαιριού του 1994. Με τρίγωνα συμβολίζονται οι μετρήσεις της Α περιόδου και με τετράγωνα της Β. Τα κενά σχήματα αναφέρονται στις μέσες τιμές 24ώρου, ενώ τα γεμισμένα στις μέσες τιμές 6ώρου [K. Irlweck et al.,1997].

Όπως γίνεται σαφές από τα αποτελέσματα της παραπάνω εργασίας, δεν είναι εύκολη η εξαγωγή συμπερασμάτων αναφορικά με τη συσχέτιση των ⁷Be και O₃ στον αέρα και στο επίπεδο του εδάφους. Μάλιστα, από στατιστικής άποψης, τα φαινόμενα εμπλουτισμού της συγκέντρωσης όζοντος από κατακόρυφες ανταλλαγές φαίνεται να υπερκαλύπτονται σχεδόν ολοκληρωτικά από τη διακύμανση της παραγωγής στην κατώτερη τροπόσφαιρα, οδηγώντας στο συμπέρασμα ότι την περίοδο που μελετήθηκε η συσχέτιση, η συνεισφορά της στρατόσφαιρας και της ανώτερης τροπόσφαιρας παίζει δευτερεύοντα ρόλο στη διαμόρφωση των υψηλών επιπέδων όζοντος που μετρώνται σε μια αστική περιοχή.

Σε μια άλλη εργασία από τους J. Ajtić et al. (2008), λήφθηκε η μέση μηνιαία συγκέντρωση του ⁷Be σε δύο περιοχές στην ευρύτερη περιοχή του Βελιγραδίου και πιο συγκεκριμένα, σε ένα προάστιο, στη Vinča και στο πάρκο Karadjordjev, στο κέντρο της πόλης, καθώς και η συγκέντρωση του O₃ στο Νέο Βελιγράδι την περίοδο 2004-2007. Στο Σχήμα 2.27 παρουσιάζονται οι κύκλοι του ⁷Be και του O₃ αυτήν την περίοδο, ενώ στον Πίνακα 2.1 παρουσιάζονται οι συντελεστές γραμμικής συσχέτισης της μηνιαίας συγκέντρωσης ⁷Be με τις μέσες και τις μέγιστες τιμές όζοντος το ίδιο διάστημα, συνολικά και ανά εποχή.



Σχήμα 2.27. Μέσες μηνιαίες τιμές συγκέντρωσης του ⁷Be στη Vinča (μαύροι αστερίσκοι) και στο πάρκο Karadjordjev (γκρίζοι αστερίσκοι), καθώς και του O₃ στο Νέο Βελιγράδι (τετράγωνα) το διάστημα 2004-2007 (Απουσιάζουν τα δεδομένα για το πάρκο Karadjordjev την περίοδο 02/2006-08/2006, καθώς και για το όζον το Σεπτέμβριο του 2006) [J. Ajtić, et al., 2008]

70.0	Mean O ₃				Maximum O ₃					
/ DC	All	Winter	Spring	Summer	Autumn	All	Winter	Spring	Summer	Autumn
Vinča	0.52	0.13	-0.10	0.47	0.51	0.49	0.26	-0.13	0.26	0.67
KP	0.47	-0.05	-0.28	0.42	0.46	0.36	-0.16	-0.31	0.17	0.33

Πίνακας 2.1 Συντελεστές γραμμικής συσχέτισης για τις μέσες και τις μέγιστες τιμές όζοντος κάθε εποχής, με πλαγιασμένη γραφή για τιμές στο διάστημα [0.3, 0.5) και έντονη για το διάστημα [0.5, 1.0] [J. Ajtić, et al., 2008]

Όπως προκύπτει, το χειμώνα και την άνοιξη η συσχέτιση είναι ασθενής έως ανύπαρκτη, καθώς και για τις μέγιστες τιμές του καλοκαιριού, ενώ υπάρχει μια καλή συσχέτιση το φθινόπωρο με την τιμή της συγκέντρωσης στη Vinča. Μια πιθανή εξήγηση θα μπορούσε να είναι η κατακόρυφη μεταφορά από μεγαλύτερα υψόμετρα, αλλά οι μέσες μηνιαίες τιμές της εποχής δεν δείχνουν κάποια ιδιαίτερη αύξηση στις συγκεντρώσεις του ⁷Be και του O₃. Επιπλέον, οι μέσες μηνιαίες τιμές δεν μπορούν να βοηθήσουν να εξαχθούν συμπεράσματα τόσο εύκολα όσο ο έλεγχος των ημερήσιων ή των ωριαίων τιμών, που δυστυχώς σε αυτή τη μελέτη δεν ήταν διαθέσιμες. Σε κάθε περίπτωση, πρέπει να επισημανθεί ότι οι συντελεστές συσχέτισης που δίδονται στην υπόψη εργασία δεν έχουν ελεγχθεί ως προς τη σημαντικότητά τους.
Τέλος, αξίζει να αναφερθεί η εργασία των Α. Stohl et al. (1999). Στο Σχήμα 2.28 από την εργασία αυτή παρουσιάζεται η συγκέντρωση του ⁷Be και του O₃, καθώς και η αναλογία και την παλαιότητα της στρατοσφαιρικής μάζας αέρα στην οποία αναφέρονται οι συγκεντρώσεις, όπως μετρήθηκαν στο σταθμό Sonnblick των Άλπεων (υψόμετρο 3106 m) για μία περίοδο 50 ημερών, ξεκινώντας την 07/09/1996. Για τη συγκεκριμένη έρευνα χρησιμοποιήθηκε μια ειδική έκδοση του λογισμικού FLEXPART, το οποίο αποτελεί εξέλιξη του μοντέλου τροχιάς FLEXTRA και χρησιμοποιείται συνήθως για να υπολογιστεί η διασπορά από σημειακές πηγές. Με χρήση του παραπάνω λογισμικού εκτιμήθηκε η παλαιότητα της εκάστοτε υπό μελέτη στρατοσφαιρικής μάζας αέρα της ατμόσφαιρας, από τη στιγμή που ένα στοιχείο της αέριας μάζας διαπερνά την τροπόπαυση προς την τροπόσφαιρα. Τα δυο πιο έντονα γεγονότα εισβολής στρατοσφαιρικού αέρα, τις ημέρες 27 και 48 συμπίπτουν με κορυφές τόσο στο ⁷Be, όσο και στο O₃. Επίσης, το επεισόδιο την ημέρα 10 που προκλήθηκε από οριζόντια μεταφορά παλαιού στρατοσφαιρικού αέρα, συνοδεύεται από υψηλή συγκέντρωση ⁷Be, ενώ δύο πολύ σύντομα γεγονότα τις ημέρες 42 και 43 συμπίπτουν με κορυφές στη συγκέντρωση του Ο₃. Το επεισόδιο την ημέρα 19, με υψηλό λόγο ιχνηλάτη συνοδεύεται με κορυφή στη συγκέντρωση του όζοντος, αλλά όχι και σ' αυτή του ⁷Be, η οποία αιτιολογείται από το γεγονός μέρος των αερολυμάτων της αέριας μάζας είχε ξεπλυθεί από κατακρημνίσεις πριν φθάσει στο Sonnblick, με αποτέλεσμα μειωμένη συγκέντρωση του ισοτόπου. Κατά την ημέρα 23 παρατηρείται υψηλή συγκέντρωση ⁷Be, η οποία δεν συνοδεύεται από υψηλή συγκέντρωση όζοντος. Η ανάλυση έδειξε ότι η συγκεκριμένη αέρια μάζα ήλθε πάνω από τον Ατλαντικό ωκεανό και δεν είχε επηρεαστεί από κατακρημνίσεις τις τελευταίες μέρες πριν την άφιξή της στην περιοχή της δειγματοληψίας.



Σχήμα 2.28 Αναλογία ανάμιξης στρατοσφαιρικού ιχνηλάτη όζοντος και συγκεντρώσεις ⁷Be και O₃ το διάστημα από 7 Σεπτεμβρίου έως 27 Οκτωβρίου 1996 στο σταθμό Sonnblick. Ο χρωματικός κώδικας δίνει τη σχετική συνεισφορά αέρα διαφορετικών ηλικιακών κλάσεων [A. Stohl et al., 1999].

Κεφάλαιο 3:

Προσδιορισμός της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα και συσχέτιση με τον ηλιακό κύκλο και τη συγκέντρωση του O₃

3.1 Εισαγωγή

Στο παρόν κεφάλαιο αρχικά περιγράφονται η διαδικασία δειγματοληψίας αέρα και η διαδικασία ανάλυσης των δειγμάτων που ακολουθούνται στο Εργαστήριο Πυρηνικής Τεχνολογίας του ΕΜΠ (ΕΠΤ-ΕΜΠ) για τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης του ⁷Be στον ατμοσφαιρικό αέρα. Τέτοιου είδους μετρήσεις πραγματοποιούνται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ από το 2008 και έχει ως σήμερα συλλεχθεί μεγάλος όγκος δειγμάτων, τα οποία όμως δεν έχουν ληφθεί-αναλυθεί πάντοτε με τις ίδιες συνθήκες. Στο Κεφάλαιο αυτό παρουσιάζεται η διαδικασία η οποία ακολουθήθηκε στο πλαίσιο της Δ.Ε., προκειμένου να καταστεί δυνατή η ενιαία αξιοποίηση όλων των δειγμάτων που έχουν ληφθεί στο ΕΠΤ-ΕΜΠ.

Η συγκέντρωση του ⁷Be που εκτιμήθηκε, αρχικά επιχειρήθηκε να συσχετιστεί με τον ηλιακό κύκλο, συσχέτιση η οποία αναμένεται από τη βιβλιογραφία. Επιπλέον, επιχειρήθηκε έλεγχος της συσχέτισής του και με τη συγκέντρωση του όζοντος στην πόλη των Αθηνών, με σκοπό να διερευνηθεί το κατά πόσο οι υψηλές συγκεντρώσεις όζοντος στην περιοχή είναι προϊόν κατακόρυφης μεταφοράς αερίων μαζών στρατοσφαιρικής προέλευσης, του φωτοχημικού φαινομένου ή αμφότερων των μηχανισμών.

3.2 Πρωτόκολλο μέτρησης συγκέντρωσης ⁷Be στον αέρα

Σύμφωνα με το πρωτόκολλο που αναπτύχθηκε και εφαρμόζεται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ από το 2008 [Δ.Ε. Παπανδρέου Σ., 2009], η διαδικασία μέτρησης της συγκέντρωσης του ⁷Be στην ατμόσφαιρα περιλαμβάνει δύο κύρια στάδια:

- i. δειγματοληψία αέρα σε κατάλληλα φίλτρα και
- ii. γ-φασματοσκοπική ανάλυση των φίλτρων.

Για τη δειγματοληψία αέρα χρησιμοποιείται αντλία αέρα υψηλής παροχής τύπου DH-50810E της εταιρείας F&J Specialty Products Inc, η οποία βρίσκεται τοποθετημένη στην ταράτσα του κτηρίου Κ του ΕΠΤ-ΕΜΠ στην Πολυτεχνειούπολη Ζωγράφου και έχει δυνατότητα άντλησης περίπου 80-90m³/h. Η αντλία κατά τη λειτουργία της καταγράφει πληροφορίες για τη θερμοκρασία, την πίεση, την παροχή και το συνολικό όγκο αέρα που περνά μέσα από το εκάστοτε φίλτρο. Τα φίλτρα που χρησιμοποιούνται είναι από ίνες γυαλιού, διαστάσεων 8x10", τύπου FP810M της ίδιας εταιρίας. Μετά το πέρας της δειγματοληψίας αέρα, το φίλτρο απομακρύνεται, κόβεται και διπλώνεται σε γεωμετρία με τελικές διαστάσεις 2x2.5", που φέρει την κωδική ονομασία «γεωμετρία 10» (Σχήμα 3.1) και σφραγίζεται αεροστεγώς.



Σχήμα 3.1 Συσκευασμένο φίλτρο αέρα διπλωμένο σε «γεωμετρία 10»

Η γ-φασματοσκοπική ανάλυση η οποία ακολουθεί, στηρίζεται στην ανίχνευση των φωτονίων ενέργειας 477.60keV που εκπέμπει το ⁷Be. Για να μειωθεί το υπόστρωμα στην περιοχή ανίχνευσης του ⁷Be, η ανάλυση αρχίζει τουλάχιστον 2 ώρες μετά το πέρας της δειγματοληψίας, ώστε να έχει πρακτικά μηδενισθεί το συνεχές υπόστρωμα το οποίο οφείλεται στη συγκέντρωση των βραχύβιων θυγατρικών ισοτόπων του ²²²Rn (²¹⁴Pb και ²¹⁴Bi) πάνω στο φίλτρο. Αποτέλεσμα αυτής της αναμονής είναι προσδιορισμός της συγκέντρωσης του ⁷Be με μικρότερη αβεβαιότητα.

Η ανάλυση πραγματοποιείται από τον ανιχνευτή XtRa (Extended Range Coaxial Ge Detector) της Canberra Industries (Σχήμα 3.2). Πρόκειται για έναν ομοαξονικό ανιχνευτή γερμανίου, με πολύ λεπτό παράθυρο από ανθρακονήματα, το οποίο επεκτείνει το ενεργειακό εύρος ανίχνευσης μέχρι τα 3 keV. Η σχετική απόδοση του ανιχνευτή είναι 104.5%. Ο λόγος Peak-to-Compton για φωτόνια ενέργειας 1332.50 keV είναι 82.2:1. Ο ανιχνευτής είναι τοποθετημένος σε κρυοστάτη τύπου 7500SL της CI, ενώ ο προενισχυτής είναι τύπου 2000CLS της ίδιας εταιρίας.



Σχήμα 3.2 Σκαρίφημα ανιχνευτή Γερμανίου XtRa.

Ο ανιχνευτής είναι επίσης εξοπλισμένος με σύστημα Compton Suppression (CSS). Το σύστημα CSS χρησιμοποιείται με σκοπό να μειώσει τη συμβολή στο φάσμα φωτονίων που αποθέτουν μέρος μόνο της ενέργειάς τους στον ανιχνευτή, αυξάνοντας έτσι το συνεχές υπόστρωμα του φάσματος. Για αυτόν το λόγο, ο ανιχνευτής Γερμανίου περιβάλλεται από ένα μεγαλύτερο ανιχνευτή από φθηνότερο υλικό (Nal(TI)), ο οποίος δεν έχει τόσο καλή διακριτική ικανότητα, αλλά το μέγεθός του επιτρέπει την ανίχνευση ενός μεγάλου αριθμού των διαφυγόντων φωτονίων. Κατά την ταυτόχρονη ανίχνευση σήματος από τους δύο ανιχνευτές η πληροφορία που δίνεται από τον ανιχνευτή XtRa δεν καταμετράται στο φάσμα, γεγονός που βελτιώνει τη στατιστική της μέτρησης της συγκέντρωσης του ⁷Be.

Η μικρή συγκέντρωση του ⁷Be στην ατμόσφαιρα (συνήθως 4 – 8 mBq/m³) έχει ως συνέπεια να χρειάζονται αρκετές ώρες ανάλυσης μέχρι η σχηματιζόμενη φωτοκορυφή να αποκτήσει την επιθυμητή στατιστική. Για αβεβαιότητα μικρότερη του 10% (1σ) συνήθως απαιτείται ανάλυση περίπου 24 ωρών, ενώ στην περίπτωση που η συγκέντρωση του ⁷Be είναι χαμηλότερη, απαιτείται ανάλυση μεγαλύτερης διάρκειας. Η ανάλυση των γ-φασμάτων πραγματοποιείται με τον κώδικα SPUNAL, ο οποίος έχει αναπτυχθεί στον Τομέα Πυρηνικής Τεχνολογίας ΕΜΠ, υπό το λειτουργικό σύστημα UNIX.

Μετά την ανίχνευση της φωτοκορυφής του ⁷Be στο φάσμα, η συνολική συγκέντρωση του εξεταζόμενου δείγματος (φίλτρο αέρα) υπολογίζεται από τη σχέση:

$$R = \frac{area}{time \cdot yield \cdot eff \cdot volume}$$

όπου:

- R η συνολική ραδιενέργεια του δείγματος για φωτόνια συγκεκριμένης ενέργειας
 (Bq)
- area η επιφάνεια φωτοκορυφής των εξεταζόμενων φωτονίων ενέργειας 477.60 keV, η οποία αναφέρεται στην καθαρή επιφάνεια, δηλαδή μετά την αφαίρεση του συνεχούς υποστρώματος.

time η χρονική διάρκεια της φασματοσκοπικής ανάλυσης (s)

- yield ποσοστό εκπομπής των συγκεκριμένων φωτονίων ανά διάσπαση
- eff η απόδοσης φωτοκορυφής της ανιχνευτικής διάταξης για τη συγκεκριμένη γεωμετρία συσκευασίας του δείγματος και για συγκεκριμένη ενέργεια εκπεμπόμενων φωτονίων

volume ο συνολικός όγκος αέρα που διαπέρασε το φίλτρο

3.3 Διόρθωση της συγκέντρωσης του ⁷Be από προηγούμενες μετρήσεις

Μέχρι τον Απρίλιο του 2010 η κυρίαρχη γεωμετρία διπλώματος φίλτρων δειγματοληψίας αέρα ήταν η «γεωμετρία 12», στην οποία το φίλτρο διαστάσεων 8x10" διπλωνόταν στα μέσα των πλευρών του και αποκτούσε διαστάσεις 4x5", με αποτέλεσμα τμήμα του φίλτρου να μην εφάπτεται του ανιχνευτή κατά τη διάρκεια της μέτρησης. Η «γεωμετρία 12» εισήχθη στη Διδακτορική Διατριβή της Ρούνη Π. (2008), όπου έγινε και η βαθμονόμηση απόδοσης φωτοκορυφής του ανιχνευτή ΧtRa για τη συγκεκριμένη γεωμετρία. Για τη βαθμονόμηση απόδοσης η οποία έγινε πειραματικά, χρησιμοποιήθηκαν μη πιστοποιημένες πηγές που εκπέμπουν φωτόνια σε μία σειρά από ενέργειες, οι οποίες κατασκευάσθηκαν από διάφορα υλικά τα οποία ήταν διαθέσιμα τότε στο ΕΠΤ-ΕΜΠ. Η βαθμονόμηση αυτή όμως είχε αρκετά μειονεκτήματα, όπως:

- Εξαιτίας του τρόπου που είχε διπλωθεί το φάσμα, ένα μεγάλο τμήμα του δείγματος τοποθετείται μακριά από τον ανιχνευτή, κάτι που οδηγούσε σε μειωμένη απόδοση ανίχνευσης.
- Καθώς για τη βαθμονόμηση της γεωμετρίας 12 χρησιμοποιήθηκαν μη πιστοποιημένες πηγές, κατά τη βαθμονόμηση εισάγεται επιπλέον αβεβαιότητα λόγω της ανάλυσης των πηγών, που εκτιμήθηκε στην τάξη του 3-4%.

- iii. Κατά τον υπολογισμό της αβεβαιότητας της απόδοσης για τα πειραματικά σημεία, η οποία έγινε με χρήση της γεωμετρίας αναφοράς, δεν είχαν ληφθεί υπόψη όλες οι συνιστώσες της τυχαίας αβεβαιότητας που θα έπρεπε να έχουν συνυπολογισθεί, όπως η τυχαία αβεβαιότητα της απόδοσης της γεωμετρίας αναφοράς, που είναι η σημαντικότερη εξ' αυτών.
- iv. Το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης δεν είχε ληφθεί υπόψη, με αποτέλεσμα οι αποδόσεις για ορισμένες ενέργειες φωτονίων να είναι υποεκτιμημένες, όπως για παράδειγμα για τα φωτόνια του ⁶⁰Co.
- Ορισμένα πειραματικά σημεία είχαν κακώς θεωρηθεί προβληματικά και εξαιρέθηκαν από τη βαθμονόμηση, όπως για την ενέργεια που αντιστοιχεί στα φωτόνια που εκπέμπονται από το ⁴⁰K (1460.80 keV).

Όπως προκύπτει από τα παραπάνω, υπήρχαν σημαντικά περιθώρια βελτίωσης της βαθμονόμησης του ανιχνευτή XtRa για τη «γεωμετρία 12». Στη Δ.Ε. [Σάββα Μ., 2009] προσδιορίστηκε η απόδοση φωτοκορυφής της «γεωμετρίας 12» χρήσει της μεθόδου προσομοίωσης Monte Carlo, στην οποία η απόδοση φωτοκορυφής για τα φωτόνια που εκπέμπει το ⁷Be υπολογίστηκε στο 0.0543 ± 0.078% (1σ), έναντι 0.0478 ± 1.12% (1σ), που είχε υπολογιστεί πειραματικά. Απαιτείται δηλαδή να γίνει διόρθωση της απόδοσης της τάξης του ~13%.

Στην παρούσα εργασία, εφαρμόστηκε διόρθωση στις μετρήσεις που είχαν γίνει με την παλαιά βαθμονόμηση απόδοσης της «γεωμετρίας 12», ώστε τα αποτελέσματα να είναι πιο κοντά στην πραγματικότητα και κατά συνέπεια να είναι συγκρίσιμα με τις μετρήσεις που ακολούθησαν. Η συγκέντρωση του ⁷Be υπολογίστηκε εκ νέου, λαμβάνοντας ως απόδοση φωτοκορυφής την τιμή της απόδοσης που υπολογίστηκε με την προσομοίωση στη Δ.Ε. [Σάββα Μ., 2009]. Επιπλέον, στην παραπάνω Δ.Ε. υιοθετήθηκε νέα γεωμετρία για την ανάλυση των φίλτρων αέρα, η οποία χαρακτηρίστηκε ως «γεωμετρία 10» και για την οποία προσδιορίστηκε η απόδοση φωτοκορυφής με χρήση τεχνικών προσομοίωσης Monte Carlo. Η γεωμετρία αυτή, η οποία εφαρμόζει καλύτερα στον ανιχνευτή, χρησιμοποιείται έκτοτε αποκλειστικά για την ανάλυση των φίλτρων αέρα.

3.4 Διερεύνηση της συσχέτισης της συγκέντρωσης του ⁷Be με τον αριθμό των ηλιακών κηλίδων

Στα πλαίσια της παρούσας Δ.Ε. διερευνήθηκε η αναμενόμενη από τη βιβλιογραφία εξάρτηση μεταξύ του αριθμού των ηλιακών κηλίδων και της

43

συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα. Συγκεκριμένα, έγινε προσπάθεια συσχέτισης των αποτελεσμάτων των μετρήσεων του ⁷Be που πραγματοποιήθηκαν στο ΕΠΤ-ΕΜΠ από τον Ιανουάριο του 2008 μέχρι τον Φεβρουάριο του 2013, που παρουσιάζονται στο Παράρτημα Α στο τέλος της εργασίας, με τον παρατηρούμενο και τον εξομαλυσμένο αριθμό ηλιακών κηλίδων, που υπολογίζεται από το SIDC. Δεν κρίθηκε σκόπιμη η σύγκριση με τον αριθμό κηλίδων της συγκεκριμένης ημέρας όπου πραγματοποιήθηκε η μέτρηση του ⁷Be, λόγω του μεγάλου χρονικού διαστήματος που μεσολαβεί από την παραγωγή του μέχρι να φθάσει στην επιφάνεια του εδάφους.

Η εξομαλυσμένη τιμή του αριθμού των ηλιακών κηλίδων κάθε μήνα υπολογίζεται από το SIDC βάσει της παρακάτω σχέσης, η οποία λαμβάνει υπόψη και τον αριθμό των ηλιακών κηλίδων των 6 προηγούμενων και των 6 επόμενων μηνών:

$$R_{i,ssn} = \frac{\left(\frac{1}{2}R_{i-6} + R_{i-5} + R_{i-4} + R_{i-3} + R_{i-2} + R_{i-1} + R_i + R_{i+1} + R_{i+2} + R_{i+3} + R_{i+4} + R_{i+5} + \frac{1}{2}R_{i+6}\right)}{12}$$

Η χρονοσειρά του πλήθους παρατηρούμενων ηλιακών κηλίδων και η αντίστοιχη εξομαλυσμένη τιμή παρατίθενται στο Σχήμα 3.3.



Σχήμα 3.3 Χρονοσειρά μετρηθείσων και εξομαλυσμένων τιμών του αριθμού των ηλιακών κηλίδων σε μηνιαία βάση και πρόβλεψη για τα επόμενα χρόνια [πηγή: National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA)/<u>Space Weather Prediction Center</u>].

Αρχικά, επιχειρήθηκε να ελεγχθεί η συσχέτιση της συγκέντρωσης του ⁷Be με τον αριθμό των ηλιακών κηλίδων, κάνοντας χρήση όλων των μετρήσεων που έχουν πραγματοποιηθεί στο ΕΠΤ-ΕΜΠ από τον Ιανουάριο του 2008 έως τον Φεβρουάριο του 2013. Για τον έλεγχο αυτό της συσχέτισης δεν χρησιμοποιήθηκαν μόνο οι οποίες άρχιζαν περί τις 08:00 – 09:00 το πρωί. Στο Σχήμα 3.4 παρουσιάζεται η συσχέτιση μεταξύ της συγκέντρωσης του ⁷Be με τον παρατηρούμενο αριθμό των ηλιακών κηλίδων, ενώ στο Σχήμα 3.5 η συσχέτιση με το εξομαλυσμένο πλήθος τους.



Σχήμα 3.4 Συσχέτιση συγκέντρωσης ⁷Be στον αέρα κατά την καλοκαιρινή περίοδο με τον μέσο μηνιαίο παρατηρούμενο αριθμό ηλιακών κηλίδων, καθώς και η αντίστοιχη ευθεία αναδρομής.



Σχήμα 3.5 Συσχέτιση συγκέντρωσης ⁷Be στον αέρα κατά την καλοκαιρινή περίοδο με τον εξομαλυσμένο αριθμό ηλιακών κηλίδων, καθώς και η αντίστοιχη ευθεία αναδρομής.

Η ευθεία αναδρομής του πρώτου γραφήματος δίνεται από n=156 σημεία. Για τη σύγκριση με τον παρατηρούμενο αριθμό ηλιακών κηλίδων προκύπτουν ο συντελεστής γραμμικής συσχέτισης και ο συντελεστής t_0 αντίστοιχα: R = -0.2347 και $t_0 = -3.044$ για v=154 βαθμούς ελευθερίας. Για να ελεγχθεί αν ο συντελεστής συσχέτισης είναι σημαντικά διάφορος από το 0, εκτελείται στατιστικός έλεγχος Student, όπου ελέγχεται η υπόθεση:

 $H_0: \rho = 0$ έναντι της εναλλακτικής $H_1: \rho \neq 0$

Οι κρίσιμες τιμές της μεταβλητής t για επίπεδο εμπιστοσύνης 95% και 99% είναι αντίστοιχα: $t_{0.95} = -1.65$ και $t_{0.99} = -2.35$. Συνεπώς, η *Ho* απορρίπτεται και η αναμενόμενη από τη βιβλιογραφία συσχέτιση μεταξύ συγκέντρωσης ⁷Be και του αριθμού των ηλιακών κηλίδων επαληθεύεται.

Για τη σύγκριση με το εξομαλυσμένο πλήθος ηλιακών κηλίδων, η ευθεία αναδρομής προκύπτει από n=151 σημεία. Προκύπτουν ο συντελεστής γραμμικής συσχέτισης και ο συντελεστής t_0 αντίστοιχα: R = -0.1982 και $t_0 = -2.468$ για v=149 βαθμούς ελευθερίας. Οι κρίσιμες τιμές της μεταβλητής t για επίπεδο εμπιστοσύνης 95% και 99% είναι αντίστοιχα: $t_{0.95} = -1.65$ και $t_{0.99} = -2.35$. Συνεπώς, και σε αυτή την περίπτωση η συσχέτιση οριακά επαληθεύεται.

Για να εξαλειφθεί ο παράγοντας της εποχιακής διακύμανσης της συγκέντρωσης του ⁷Be στην ατμόσφαιρα, κρίθηκε σκόπιμο η συσχέτιση να ελεγχθεί σε στενά εποχιακά πλαίσια, δηλαδή στα χρονικά πλαίσια μια εποχής και ιδιαίτερα χειμώνα και καλοκαίρι, που οι μεταβολές του καιρού είναι λιγότερο έντονες από την άνοιξη και το φθινόπωρο.

3.4.1 Συσχέτιση της συγκέντρωσης ⁷Be και του αριθμού ηλιακών κηλίδων κατά την καλοκαιρινή περίοδο

Για την καλοκαιρινή περίοδο χρησιμοποιήθηκαν τα δεδομένα των μηνών louvíou – Σεπτεμβρίου από το 2008 μέχρι το 2012, εξαιρώντας τις μετρήσεις στις οποίες είχε παρατηρηθεί έντονη βροχόπτωση σε χρονικό διάστημα μικρότερο από 24 ώρες πριν την έναρξη της δειγματοληψίας, δηλαδή τις μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν στις 22 και 29 Σεπτεμβρίου 2008. Και σε αυτή τη σύγκριση δεν χρησιμοποιήθηκαν όλες οι μετρήσεις που έγιναν στα πλαίσια 24ώρων κύκλων, παρά μόνο οι πρώτες και οι τελευταίες μετρήσεις των κύκλων, οι οποίες συνήθως ξεκινούσαν περί τις 08:00 – 09:00 το πρωί. Στο Σχήμα 3.6 παρουσιάζεται η συσχέτιση μεταξύ της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα την καλοκαιρινή περίοδο με τον αριθμό των ηλιακών κηλίδων.



Σχήμα 3.6 Συσχέτιση συγκέντρωσης ⁷Be στον αέρα κατά την καλοκαιρινή περίοδο με τον μέσο μηνιαίο παρατηρούμενο αριθμό ηλιακών κηλίδων και με τον εξομαλυσμένο αριθμό ηλιακών κηλίδων, καθώς και οι αντίστοιχες ευθείες αναδρομής.

Η ευθεία αναδρομής του γραφήματος δίνεται από n=31 σημεία. Προκύπτουν ο συντελεστής γραμμικής συσχέτισης (για τη σύγκριση με τον παρατηρούμενο αριθμό) και ο συντελεστής t_0 αντίστοιχα: R = -0.3805 και $t_0 = -2.216$ για v=29 βαθμούς ελευθερίας. Οι κρίσιμες τιμές της μεταβλητής t για επίπεδο εμπιστοσύνης 95% και 99% είναι αντίστοιχα: $t_{0.95} = -1.699$ και $t_{0.99} = -2.462$. Συνεπώς, η τιμή της μεταβλητής t της κατανομής Student βρίσκεται οριακά στην περιοχή αβεβαιότητας – ενδεχομένως λόγω του μικρού πλήθους σημείων.

Στη συνέχεια, ομαδοποιήθηκαν τα δεδομένα σύμφωνα με τον ημερολογιακό μήνα της δειγματοληψίας και ελέγχθηκε η συσχέτιση για τις μέσες μηνιαίες τιμές αυτής της περιόδου. Στον Πίνακα 3.1 παρατίθενται οι μέσες μηνιαίες τιμές της συγκέντρωσης ⁷Be στον αέρα, καθώς και το πλήθος των μετρήσεων από τις οποίες προέκυψαν. Στο Σχήμα 3.7 παρουσιάζεται γραφικά η συσχέτιση μεταξύ της μέσης

μηνιαίας συγκέντρωσης ⁷Be στον αέρα την καλοκαιρινή περίοδο με τον αριθμό των ηλιακών κηλίδων.

μήνας μέτρησης	πλήθος μετρήσεων	μέση συγκέντρωση ⁷ Be (mBq/m³)	
louv-08	5	8.5	
Ιουλ-08	4	6.1	
Αυγ-08	1	11.0	
Σεπ-08	2	10.8	
louv-09	3	8.4	
Ιουλ-09	4	8.3	
Αυγ-09	2	8.4	
Σεπ-09	4	8.0	
Ιουλ-11	1	6.7	
Σεπ-11	1	4.4	
louv-12	2	7.5	
Ιουλ-12	2	6.5	

Πίνακας 3.1 Πλήθος μετρήσεων συγκέντρωσης ⁷Be στον αέρα και μέση συγκέντρωση για τους μήνες της καλοκαιρινής περιόδου.



Σχήμα 3.7 Συσχέτιση μέσης μηνιαίας συγκέντρωσης ⁷Βε στον αέρα κατά την καλοκαιρινή περίοδο με τον μέσο μηνιαίο παρατηρούμενο αριθμό ηλιακών κηλίδων και με τον εξομαλυσμένο αριθμό ηλιακών κηλίδων.

Η ευθεία αναδρομής δίνεται από n=12 σημεία. Με R = -0.6782, προκύπτει η μεταβλητή $t_0 = -2.918$ για v=10 βαθμούς ελευθερίας. Με κατάλληλο στατιστικό test και κρίσιμες τιμές της μεταβλητής t για επίπεδο εμπιστοσύνης 95% και 99%: $t_{0.95} = -1.812$ και $t_{0.99} = -2.764$, διαπιστώνεται η ύπαρξη στατιστικά σημαντικής

συσχέτισης, κάτι που επιβεβαιώνει τη θεωρία για αρνητική συσχέτιση μεταξύ του πλήθους των ηλιακών κηλίδων και της συγκέντρωσης του ⁷Be.

3.4.2 Συσχέτιση συγκέντρωσης ⁷Be και αριθμού ηλιακών κηλίδων κατά τη χειμερινή περίοδο

Για τη χειμερινή¹ περίοδο χρησιμοποιήθηκαν τα δεδομένα των μηνών Οκτωβρίου – Μαΐου από το 2008 έως το 2013. Στο Σχήμα 3.8 παρουσιάζεται γραφικά η συσχέτιση μεταξύ της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα κατά τους χειμερινούς μήνες με τον αριθμό των ηλιακών κηλίδων.



Σχήμα 3.8 Συσχέτιση συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα τη χειμερινή περίοδο με τον μέσο μηνιαίο παρατηρούμενο αριθμό ηλιακών κηλίδων και με τον εξομαλυσμένο αριθμό ηλιακών κηλίδων.

Η ευθεία αναδρομής του γραφήματος δίνεται από n=123 σημεία. Ο συντελεστής γραμμικής συσχέτισης προκύπτει R = -0.1631 και ο συντελεστής $t_0 = -1.818$ για v=121 βαθμούς ελευθερίας. Με κατάλληλο στατιστικό test και κρίσιμες τιμές της μεταβλητής t για επίπεδο εμπιστοσύνης 95% και 99% είναι αντίστοιχα: $t_{0.95} = -1.658$ και $t_{0.99} = -2.358$, διαπιστώνεται ότι ο συντελεστής συσχέτισης δεν μπορεί να θεωρηθεί στατιστικά διάφορος από την τιμή 0.

¹ Στην πραγματικότητα πρόκειται για την περίοδο του έτους όπου παρατηρούνται αρκετές βροχοπτώσεις και όχι αυστηρά για την χειμερινή περίοδο από 01 Δεκεμβρίου έως 28 Φεβρουαρίου.

Η μη διαπίστωση συσχέτισης μεταξύ της συγκέντρωσης του ⁷Be και του πλήθους ηλιακών κηλίδων κατά τη διάρκεια της χειμερινής περιόδου παρά το μεγάλο αριθμό δεδομένων μπορεί να αποδοθεί στους παρακάτω λόγους:

- i. Η ευστάθεια της ατμόσφαιρας κατά τη χειμερινή περίοδο έχει ως αποτέλεσμα η κατακόρυφη μεταφορά αερίων μαζών να είναι περιορισμένη, με αποτέλεσμα η μεταβολή στο ρυθμό παραγωγής του ισοτόπου στη στρατόσφαιρα λόγω της δραστηριότητας του Ήλιου να καθυστερεί να γίνει αισθητή στο επίπεδο του εδάφους, λόγω του μικρότερου ρυθμού εμπλουτισμού του αέρα στο επίπεδο του εδάφους με αέριες μάζες στρατοσφαιρικής προέλευσης πλούσιες σε ⁷Be.
- Κατά τη διάρκεια της χειμερινής περιόδου υπάρχει σημαντική επίδραση των μετεωρολογικών συνθηκών και κυρίως της βροχής στη συγκέντρωση του ⁷Be στην κατώτερη ατμόσφαιρα.

3.5 Συσχέτιση συγκέντρωσης ⁷Be και Ο₃

Στα πλαίσια της παρούσας Δ.Ε. ελέγχθηκε και η ύπαρξη συσχέτισης μεταξύ των συγκεντρώσεων του ⁷Be και του O₃. Η συγκέντρωση του ⁷Be προσδιορίσθηκε με δειγματοληψίες που πραγματοποιήθηκαν στην περιοχή της Πολυτεχνειούπολης Ζωγράφου από το Μάρτιο του 2008 και μέχρι τον Οκτώβριο του 2012. Οι τιμές της συγκέντρωσης του O₃ λήφθηκαν για τους σταθμούς μέτρησης Αγίας Παρασκευής και Αθηνάς του ΕΔΠΑΡ, δηλαδή ένα σταθμό στα όρια και έναν στο κέντρο της πόλης. Αξίζει στο σημείο αυτό να γίνει η υπενθύμιση ότι το O₃ στην κατώτερη ατμόσφαιρα οφείλεται τόσο στη μεταφορά του από την υψηλότερη ατμόσφαιρα, όπου και παράγεται, όσο και – κυρίως – στην παραγωγή του στο επίπεδο του εδάφους από ανθρωπογενείς δραστηριότητες, όπως η λειτουργία μηχανών εσωτερικής καύσης. Μία σύγκριση των συγκεντρώσεων των ⁷Be και O₃ και μία συσχέτισή τους, θα μπορούσε ενδεχομένως να δώσει πληροφορίες σχετικά με το βαθμό της συγκέντρωσης του άξηση της

Καθώς η συγκέντρωση του όζοντος παρουσιάζει μεγάλες διακυμάνσεις κατά τη διάρκεια της ημέρας, κρίθηκε σκόπιμο να συγκριθούν οι συγκεντρώσεις που ήταν διαθέσιμες για συγκεκριμένες ώρες της ημέρας, ώστε να εξαλειφθεί κατά το δυνατόν ο παράγοντας της ημερήσιας διακύμανσης. Για τον έλεγχο συσχέτισης χρησιμοποιήθηκαν οι μετρήσεις που ξεκίνησαν και τελείωσαν εντός του διαστήματος 08:00 – 13:00. Επίσης, κρίθηκε σκόπιμο να επισημανθούν διαφορετικά οι μετρήσεις που έχουν γίνει το Σάββατο, καθώς η πόλη ακολουθεί διαφορετικούς ρυθμούς, οπότε η παραγωγή από ανθρωπογενείς παράγοντες είναι πιθανότατα διαφορετική.

3.5.1 Συσχέτιση συγκέντρωσης ⁷Be και Ο₃ στα όρια της πόλης

Το κτίριο Κ της Πολυτεχνειούπολης Ζωγράφου έχει γεωγραφικές συντεταγμένες 23.7850° B, 37.9782° A και βρίσκεται σε υψόμετρο 210 m. Ο σταθμός της Αγ. Παρασκευής βρίσκεται στο Εθνικό Κέντρο Έρευνας Φυσικών Επιστημών "Δημόκριτος", σε γεωγραφικό μήκος 23.8194°, γεωμετρικό πλάτος 37.9951° και υψόμετρο 290 m από την επιφάνεια της θάλασσας. Η σύγκριση των συγκεντρώσεων των δύο συστατικών για αυτές τις θέσεις παρουσιάζεται στο Σχήμα 3.9. Αξίζει να σημειωθεί ότι δεν ήταν διαθέσιμες οι αντίστοιχες τιμές της συγκέντρωσης του όζοντος για όλες τις μετρήσεις του ⁷Be.



Σχήμα 3.9 Σύγκριση της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα της Πολυτεχνειούπολης Ζωγράφου με την αντίστοιχη συγκέντρωση όζοντος στο σταθμό της Αγ. Παρασκευής.

Η ευθεία αναδρομής του γραφήματος δίνεται από n=35 σημεία. Ο συντελεστής γραμμικής συσχέτισης προκύπτει R=0.3841 και ο συντελεστής t_0 =2.3845 για v=33 βαθμούς ελευθερίας. Για να ελεγχθεί η σημαντικότητα του συντελεστής συσχέτισης έγινε κατάλληλο στατιστικό test, με κρίσιμες τιμές της μεταβλητής t για επίπεδο εμπιστοσύνης 95% και 99% αντίστοιχα: $t_{0.95}$ =1.693 και $t_{0.99}$ =2.467. Από το test αυτό προκύπτει ότι ο συντελεστής συσχέτισης δεν μπορεί

οριακά να θεωρηθεί διαφορετικός από το 0, και κατά συνέπεια δεν τεκμηριώνεται συσχέτιση. Το ίδιο συμπέρασμα προκύπτει ακόμα και αν εξαιρεθούν οι δύο μετρήσεις που αντιστοιχούν σε ημέρα Σάββατο.

Καθώς το όζον είναι ιδιαίτερα ασταθής ένωση, με πολύ μικρό χρόνο ημιζωής στην κατώτερη ατμόσφαιρα, για να είναι εμφανής η συνεισφορά της κατακόρυφης μεταφοράς αερίων μαζών στον εμπλουτισμό των κατώτερων στρωμάτων της ατμόσφαιρας σε όζον, θα ήταν επιθυμητή η σύγκριση των συγκεντρώσεών τους εντός μικρότερων χρονικών διαστημάτων. Ωστόσο, για το ⁷Be αυτό δεν ήταν δυνατό, καθώς οι δειγματοληψίες αέρα για στενότερο χρονικό διάστημα θα απαιτούσαν φασματοσκοπική ανάλυση διάρκειας 3 ή περισσότερων ημερών μέχρι το φάσμα να αποκτήσει ικανοποιητική στατιστική, ενδεχομένως, όμως, θα ήταν μια διαδικασία που θα μπορούσε να βοηθήσει να εξαχθούν κάποια συμπεράσματα. Επιπλέον, δεν θα πρέπει να παραβλέπεται η συνεισφορά του όζοντος από ανθρωπογενείς δραστηριότητες.

Στη συνέχεια, έγινε διαχωρισμός των μετρήσεων, ώστε να ελεγχθεί αν υπάρχει συσχέτιση χωριστά κατά την περίοδο της χειμερινής και της καλοκαιρινής περιόδου, καθώς ο κύκλος της πόλης παρουσιάζει διαφορά φάσης μεταξύ των δύο περιόδων. Ο διαχωρισμός εδώ έγινε με βάση την περίοδο εφαρμογής της θερινής ώρας για να απαλειφθεί αυτός ο παράγοντας. Για τη χειμερινή περίοδο δεν παρατηρείται καμία συσχέτιση, όπως φαίνεται στο Σχήμα 3.10. Για τη θερινή περίοδο (Σχήμα 3.11), η ευθεία αναδρομής του γραφήματος δίνεται από n=20 σημεία. Ο συντελεστής γραμμικής συσχέτισης προκύπτει R=0.4822 και ο συντελεστής t_0 =2.3351 για ν=18 βαθμούς ελευθερίας. Για να ελεγχθεί η σημαντικότητα του συντελεστή συσχέτισης έγινε κατάλληλο στατιστικό test, με κρίσιμες τιμές της μεταβλητής t για επίπεδο εμπιστοσύνης 95% και 99% αντίστοιχα: $t_{0.95}$ =1.734 και $t_{0.99}$ =2.552. Από το test αυτό προκύπτει ότι ο συντελεστής συσχέτισης δεν μπορεί να θεωρηθεί διαφορετικός από το 0 σε στατιστικά σημαντικό βαθμό.

Η έλλειψη συσχέτισης για τη χειμερινή περίοδο πιθανώς οφείλεται στη μειωμένη κατακόρυφη μεταφορά και ανανέωση των αερίων μαζών, που επηρεάζει την ισορροπία μεταξύ δύο συστατικών με πολύ διαφορετικούς χρόνους ημιζωής στην κατώτερη ατμόσφαιρα, αλλά και στην επίδραση των μετεωρολογικών συνθηκών.

52



Σχήμα 3.10 Σύγκριση της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα της Πολυτεχνειούπολης Ζωγράφου με την αντίστοιχη συγκέντρωση όζοντος στο σταθμό της Αγ. Παρασκευής για τις μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν περίοδο χειμερινής ώρας.



Σχήμα 3.11 Σύγκριση της συγκέντρωσης του ⁷Be με την αντίστοιχη συγκέντρωση όζοντος στο σταθμό της Αγ. Παρασκευής για τις μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν περίοδο θερινής ώρας.

Για να εξαλειφθεί και ο παράγοντας της κύμανσης της παραγωγής του ⁷Be λόγω της ηλιακής δραστηριότητας, συγκρίθηκαν οι συγκεντρώσεις του ⁷Be και του O₃ για τις μετρήσεις τη θερινή περίοδο των ετών 2008 και 2009, τα οποία περικλείουν το πλέον πρόσφατο ηλιακό ελάχιστο. Η σύγκριση των συγκεντρώσεών τους

παρουσιάζεται στο Σχήμα 3.12, στο οποίο φαίνεται η συσχέτιση να παραμένει χαμηλή. Η ευθεία αναδρομής του γραφήματος δίνεται από n=14 σημεία. Ο συντελεστής γραμμικής συσχέτισης προκύπτει R = 0.5212 και ο συντελεστής $t_0 = 2.115$ για v=12 βαθμούς ελευθερίας. Για να ελεγχθεί η σημαντικότητα του συντελεστής συσχέτισης έγινε κατάλληλο στατιστικό test, με κρίσιμες τιμές της μεταβλητής t για επίπεδο εμπιστοσύνης 95% και 99% αντίστοιχα: $t_{0.95}$ =1.782 και $t_{0.99}$ =2.681. Από το test αυτό προκύπτει ότι ο συντελεστής συσχέτισης δεν μπορεί να θεωρηθεί διαφορετικός από το 0, παρόλο που έχει αρκετά υψηλή τιμή, πιθανότατα λόγω του πολύ μικρού μεγέθους δείγματος.



Σχήμα 3.12 Σύγκριση της συγκέντρωσης του ⁷Be με την αντίστοιχη συγκέντρωση όζοντος για τις μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν περίοδο θερινής ώρας τα έτη 2008 και 2009.

3.5.2 Συσχέτιση συγκέντρωσης ⁷Be και Ο₃ στο κέντρο της πόλης

Ο σταθμός της οδού Αθηνάς βρίσκεται σε γεωγραφικό μήκος 28.7268°, γεωμετρικό πλάτος 37.9782° και υψόμετρο 100 m από την επιφάνεια της θάλασσας. Όντας στο κέντρο της πόλης, όπου η ατμόσφαιρα είναι πιο επιβαρυμένη σε ενώσεις που ευνοούν το σχηματισμό και τη διάσπασή του, η παραγωγή και η καταστροφή του όζοντος από πρωτογενείς ρύπους έχει ως αποτέλεσμα η συνεισφορά της οριζόντιας μεταφοράς αερίων μαζών να υπερκαλύπτεται σχεδόν ολοκληρωτικά και να μην

υπάρχει συσχέτιση μεταξύ των δύο συστατικών, όπως φαίνεται και από τη σύγκριση των συγκεντρώσεων που παρουσιάζεται στο Σχήμα 3.13.



Σχήμα 3.13 Συσχέτιση συγκέντρωσης ⁷Be με την αντίστοιχη συγκέντρωση όζοντος στο σταθμό της οδού Αθηνάς.

Στη συνέχεια, έγινε και σε αυτή την περίπτωση διαχωρισμός μεταξύ θερινής και χειμερινής περιόδου. Για τη θερινή περίοδο (Σχήμα 3.14), η ευθεία αναδρομής είναι σχεδόν οριζόντια, κάτι που σημαίνει πως δεν υπάρχει καμία συσχέτιση μεταξύ των δύο συστατικών.



Σχήμα 3.14 Συσχέτιση συγκέντρωσης ⁷Be με την αντίστοιχη συγκέντρωση όζοντος στο σταθμό της οδού Αθηνάς την περίοδο θερινής ώρας.

Για τη χειμερινή περίοδο (Σχήμα 3.15), η ευθεία αναδρομής αποκτά μια ελαφρώς αρνητική κλίση. Η ευθεία αναδρομής του γραφήματος δίνεται από n=17 σημεία. Ο συντελεστής γραμμικής συσχέτισης προκύπτει R = -0.2714 και ο συντελεστής $t_0 = -1.092$ για v=15 βαθμούς ελευθερίας. Για να ελεγχθεί η σημαντικότητα του συντελεστής συσχέτισης έγινε κατάλληλο στατιστικό test, με κρίσιμες τιμές της μεταβλητής t για επίπεδο εμπιστοσύνης 95% και 99% αντίστοιχα: $t_{0.95} = -1.753$ και $t_{0.99} = -2.602$. Από το test αυτό προκύπτει ότι ο συντελεστής συσχέτισης δεν μπορεί να θεωρηθεί διαφορετικός από το 0.



Σχήμα 3.15 Συσχέτιση συγκέντρωσης ⁷Be με την αντίστοιχη συγκέντρωση όζοντος στο σταθμό της οδού Αθηνάς την περίοδο χειμερινής ώρας.

3.6 Συμπεράσματα

Για τον έλεγχο συσχέτισης μεταξύ της συγκέντρωσης του ⁷Be και του αριθμού των ηλιακών κηλίδων χρησιμοποιήθηκαν δεδομένα που δεν ήταν κατανεμημένα ομοιόμορφα καθ' όλη τη διάρκεια του έτους, ώστε να υπολογιστούν οι μέσες ετήσιες τιμές της συγκέντρωσης του ⁷Be για αυτήν την περίοδο. Τελικά, για να εξαλειφθεί ο παράγοντας της εποχιακής διακύμανσης κρίθηκε σκόπιμο να ελεγχθεί η συσχέτιση σε στενά εποχιακά πλαίσια. Η αναμενόμενη αρνητική συσχέτιση επαληθεύεται για το σύνολο των μεμονωμένων μετρήσεων και για τις μέσες μηνιαίες τιμές της θερινής περιόδου, ενώ βρίσκεται στην περιοχή αβεβαιότητας για τις μεμονωμένες μετρήσεις χωριστά καλοκαιρινής και χειμερινής περιόδου.

Από τον έλεγχο συσχέτισης του ισοτόπου με το όζον στο σταθμό Αγ. Παρασκευής δεν μπορούν να εξαχθούν ασφαλή συμπεράσματα. Ενδεχομένως μεγαλύτερο μέγεθος δείγματος θα μπορούσε να οδηγήσει σε ασφαλή συμπεράσματα. Το ίδιο συμπέρασμα προκύπτει και για τις μετρήσεις όζοντος που έγιναν στο σταθμό μετρήσεων στο κέντρο της Αθήνας. Πάντως πρέπει να επισημανθεί ότι για τον υπόψη σταθμό εκτιμάται ότι η για την κύμανση της συγκέντρωσης του ισοτόπου στο κέντρο της πόλης δεν ευθύνεται η κατακόρυφη μεταφορά, αλλά δεσπόζει η παραγωγή και η καταστροφή στο επίπεδο του εδάφους από ανθρωπογενείς πηγές.

Καθώς οι παράγοντες οι οποίοι επιδρούν στη συγκέντρωση του ⁷Be στην ατμόσφαιρα στο επίπεδο του εδάφους είναι πολλοί, αναγκαία προϋπόθεση για τη μελέτη της συσχέτισης της συγκέντρωσης του ⁷Be με τους διάφορους παράγοντες είναι δειγματοληψίες, οι οποίες θα πρέπει να επεκταθούν σε χρονικά πλαίσια πολλών ετών, ώστε να συμπεριλάβουν και την επίδραση του κύκλου του Ήλιου.

Κεφάλαιο 4: Προσδιορισμός της συγκέντρωσης του ⁷Be στο νερό της βροχής και του χιονιού

4.1 Εισαγωγή

Στο παρόν κεφάλαιο περιγράφεται η διαδικασία δειγματοληψίας υγρών ατμοσφαιρικών κατακρημνίσεων (βροχή-χιόνι) που ακολουθείται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ. Αρχικά, περιγράφονται οι μέθοδοι επεξεργασίας των συλλεχθέντων δειγμάτων που έχουν χρησιμοποιηθεί στο παρελθόν στο ΕΠΤ-ΕΜΠ, ενώ στη συνέχεια, παρουσιάζεται η διερεύνηση που πραγματοποιήθηκε στο πλαίσιο της παρούσας Δ.Ε., με στόχο τη βελτίωση της ακολουθούμενης μεθοδολογίας για την επεξεργασία δειγμάτων υγρών κατακρημνίσεων. Τέλος, παρουσιάζεται η μεθοδολογία που προτείνεται στο πλαίσιο της παρούσας Δ.Ε. για την επεξεργασία δειγμάτων βροχής και χιονιού, η οποία οδηγεί στον ακριβέστερο, δηλαδή με τη χαμηλότερη αβεβαιότητα, προσδιορισμό της συγκέντρωσης του ⁷Be.

4.2 Διαδικασία δειγματοληψίας υγρών κατακρημνίσεων στο ΕΠΤ-ΕΜΠ

Εκτός από μετρήσεις στον ατμοσφαιρικό αέρα, στο ΕΠΤ-ΕΜΠ πραγματοποιούνται μετρήσεις της συγκέντρωσης του ⁷Be στο νερό των υγρών ατμοσφαιρικών κατακρημνίσεων (βροχή - χιόνι) εδώ και πολλά χρόνια. Τα περιστατικά χιονόπτωσης στην Αθήνα, όπου βρίσκεται η Πολυτεχνειούπολη Ζωγράφου, είναι πιο σπάνια από εκείνα της βροχόπτωσης. Ωστόσο, η μέθοδος ανάλυσης και των δύο τύπων δείγματος είναι η ίδια, καθώς το χιόνι λιώνει και στη συνέχεια η επεξεργασία του γίνεται με τρόπο όμοιο με αυτόν της επεξεργασίας βρόχινου νερού. Τα τελευταία χρόνια γίνεται με πιο συστηματικό τρόπο.

Για τη μελέτη των υγρών κατακρημνίσεων είναι τοποθετημένα, στην ταράτσα του κτηρίου K του ΕΠΤ-ΕΜΠ, ορθογώνια δοχεία συλλογής. Τα δοχεία έχουν διαστάσεις 55 x 30 x 20 cm και η συνολική επιφάνεια συλλογής είναι 0.66 m². Πριν από κάθε γεγονός κατακρήμνισης που πρόκειται να μελετηθεί, οι λεκάνες ξεπλένονται με νερό της βρύσης, αραιό νιτρικό οξύ (1%) και τέλος με αποσταγμένο νερό (DIW). Στόχος είναι η απομάκρυνση σωματιδίων που έχουν κατακαθίσει στα

58

τοιχώματα ή στον πυθμένα των δοχείων. Μετά τον καθαρισμό των συλλεκτών, αυτοί τοποθετούνται στην ταράτσα, σε σημείο μακριά από εμπόδια, τα οποία θα μπορούσαν να επηρεάσουν την ποσότητα ή και την ποιότητα του συλλεχθέντος νερού.

Μετά το πέρας της δειγματοληψίας το νερό συσκευάζεται σε ειδικά πλαστικά ή γυάλινα δοχεία χωρητικότητας ενός λίτρου και σφραγίζεται μέχρι την ανάλυσή του, η οποία εξυπακούεται θα πρέπει να γίνει σε σύντομο χρονικό διάστημα. Οι λεκάνες συλλογής ξεπλένονται με αποσταγμένο νερό και το ξέπλυμα προστίθεται στο δείγμα. Η ποσότητα του αποσταγμένου νερού που χρησιμοποιείται καταμετράται, ώστε να ληφθεί υπ' όψιν κατά την επεξεργασία των αποτελεσμάτων. Στόχος της παραπάνω διαδικασίας είναι να ληφθούν από τις λεκάνες συλλογής ιζήματα που μπορεί να έχουν επικαθίσει στα τοιχώματα και τα οποία προέρχονται από τις υγρές κατακρημνίσεις.

4.3 Επεξεργασία και ανάλυση δειγμάτων υγρών κατακρημνίσεων στο ΕΠΤ-ΕΜΠ

Η πιο απλή μέθοδος επεξεργασίας ενός δείγματος υγρών κατακρημνίσεων με σκοπό τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης του ⁷Be είναι η συσκευασία του δείγματος σε ένα πλαστικό δοχείο χωρίς καμία επεξεργασία. Το δοχείο που χρησιμοποιείται ευρέως στο ΕΠΤ-ΕΜΠ για τη συσκευασία δειγμάτων βρόχινου νερού και χιονιού είναι κυλινδρικό συνολικού όγκου 282 cm³, ελαφρώς κωνικό, με συνάρτηση κωνικότητας R(cm)=0.029h(cm)+3.54 [Δ.Ε. Βασιλοπούλου Θ., 2008] (Σχήμα 4.1). Το δοχείο μπορεί να πληρωθεί είτε πλήρως είτε μερικώς. Πλήρης πλήρωση οδηγεί σε δείγμα με την κωδική ονομασία «γεωμετρία 2», ενώ μερική πλήρωση οδηγεί σε γεωμετρίες με την κωδική ονομασία «γεωμετρία 5», όταν πληρώνεται μέχρι ύψος 22 mm, και «γεωμετρία 8» όταν η πλήρωση είναι μέχρι το 10 mm. Η πλήρωση γίνεται ανάλογα με τον διαθέσιμο όγκο του νερού. Το συσκευασμένο δείγμα, στη συνέχεια, αναλύεται με τεχνικές γ-φασματοσκοπίας και προσδιορίζεται η συγκέντρωση του ⁷Be με βάση τα φωτόνια ενέργειας 477.60 keV που εκπέμπει.



Σχήμα 4.1 Σκαρίφημα πλαστικού δοχείου που χρησιμοποιείται στο ΕΠΤ ΕΜΠ για τη συσκευασία υγρών δειγμάτων

Σημαντικό πλεονέκτημα αυτής της μεθόδου είναι η αμεσότητα της, καθώς με χρήση αυτής της μεθοδολογίας ένα δείγμα κατακρημνίσεων μπορεί να συσκευαστεί και να τοποθετηθεί για ανάλυση εντός λίγων λεπτών από το πέρας της δειγματοληψίας. Ωστόσο, δεδομένου ότι οι αναμενόμενες συγκεντρώσεις ⁷Be στις κατακρημνίσεις είναι χαμηλές – της τάξης των 1-2 Bq/L – η έλλειψη επεξεργασίας του δείγματος οδηγεί σε αυξημένες αβεβαιότητες κατά τον προσδιορισμό του μεγέθους επιφάνεια σχηματιζόμενης φωτοκορυφής (area) και εν τέλει υψηλές αβεβαιότητες στον υπολογισμό της συγκέντρωσης του ισοτόπου στο δείγμα. Ενδεικτικά αναφέρεται ότι η αβεβαιότητα της μέτρησης μετά από 48 ώρες ανάλυσης είναι της τάξης του ~20% (1σ).

Για τη βελτίωση της στατιστικής των μετρούμενων μεγεθών, σε προηγούμενη Δ.Ε. [Δ.Ε. Σάββα Μ., 2009] προτάθηκε το φιλτράρισμα του νερού, μέσα από κατάλληλα φίλτρα, με σκοπό την κατακράτηση των σωματιδίων που υπάρχουν στο νερό. Συνοπτικά τα βήματα της μεθόδου που είχε προταθεί στο πλαίσιο της Δ.Ε. είναι τα εξής:

- συλλογή βρόχινου νερού
- φιλτράρισμα του βρόχινου νερού, μέσα από κατάλληλα φίλτρα
- γ-φασματοσκοπική ανάλυση φίλτρων και προσδιορισμός του ⁷Be στα φίλτρα
- γ-φασματοσκοπική ανάλυση του φιλτραρισμένου νερού με σκοπό την ανίχνευση του ⁷Be στο νερό αυτό

Αναλυτικότερα, το νερό που συλλέγεται αναγκάζεται να περάσει μέσα από κυκλικά χάρτινα φίλτρα της εταιρείας Whatman με διάμετρο 90 mm και πάχος 0.2 mm (Catalogue Number: 1442 090). Τα φίλτρα αυτά τοποθετούνται για

φιλτράρισμα σε δοχεία με κατάλληλη διαμόρφωση της εταιρείας Schott Duran® (Catalogue Number: 21 341 44), όπου και σταθεροποιούνται (Σχήμα 4.2). Το βρόχινο νερό εισάγεται πάνω από το φίλτρο και για τη διευκόλυνση της διέλευσης του νερού μέσα από το φίλτρο χρησιμοποιείται ανεξάρτητο κύκλωμα νερού το οποίο είναι συνδεδεμένο με βρύση. Με τον τρόπο αυτό και εξαιτίας του φαινομένου Bernoulli, δημιουργείται κάτω από το φίλτρο υποπίεση, η οποία συντομεύει τη διαδικασία του φιλτραρίσματος. Κατά τη διέλευση του νερού από το φίλτρο, κατακρατείται το μεγαλύτερο μέρος των σωματιδίων που περιέχονται στο βρόχινο νερό και επομένως και οι πυρήνες ⁷Be. Ανάλογα με την ποσότητα του νερού και το σωματιδιακό φορτίο που φέρει, το φίλτρο μπορεί να κορεσθεί και να σταματήσει η ροή του νερού. Αυτό συμβαίνει γιατί η δυνατότητα διέλευσης υγρού μέσω του φίλτρου μειώνεται με την πάροδο του χρόνου λόγω της αύξησης της συγκέντρωσης σωματιδίων-σκόνης στην επιφάνειά του. Οι πόροι του φίλτρου επομένως φράσσονται και το νερό δεν μπορεί να διέλθει από το φίλτρο. Στην περίπτωση αυτή πρέπει να χρησιμοποιούνται περισσότερα του ενός φίλτρα. Σύμφωνα με τις αναλύσεις που έχουν ήδη πραγματοποιηθεί στο ΕΠΤ-ΕΜΠ, απαιτείται περίπου ένα φίλτρο για κάθε δύο λίτρα βρόχινου νερού. Στο Σχήμα 4.2 φαίνεται η παραπάνω διάταξη καθώς και το τοποθετημένο στην ειδική διαμόρφωση χάρτινο φίλτρο:





Σχήμα 4.2 Διάταξη φιλτραρίσματος νερού που χρησιμοποιείται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ.

Μετά την κατακράτηση των σωματιδίων του νερού από τα φίλτρα, τα τελευταία αφήνονται να στεγνώσουν στον αέρα για μία ημέρα. Αφού στεγνώσουν, συσκευάζονται με χρήση μεμβράνης (κοινή μεμβράνη τροφίμων). Στο Σχήμα 4.3 φαίνεται ένα χρησιμοποιημένο και συσκευασμένο φίλτρο:



Σχήμα 4.3 Χρησιμοποιημένο και συσκευασμένο φίλτρο βρόχινου νερού.

Το επόμενο βήμα της μελέτης βρόχινου νερού είναι η γ-φασματοσκοπική ανάλυση των φίλτρων. Τα συσκευασμένα φίλτρα τοποθετούνται πάνω στον ανιχνευτή XtRa και συλλέγεται το αντίστοιχο φάσμα. Υπολογίζεται η συγκέντρωση του ⁷Be στα φίλτρα (σε Bq) και δεδομένου ότι είναι γνωστή η ποσότητα του νερού που έχει διέλθει μέσα από τα φίλτρα (σε L), είναι εύκολο στη συνέχεια να προσδιορισθεί η συγκέντρωση του ⁷Be στο βρόχινο νερό (σε Bq/L). Επισημαίνεται ότι ο υπολογισμός αυτός στηρίζεται στην παραδοχή ότι όλο το ⁷Be έχει κατακρατηθεί στα φίλτρα. Για τον έλεγχο της παραδοχής αυτής, στη συνέχεια, πρέπει να αναλυθεί και το νερό που έχει διέλθει από τα φίλτρα, ώστε να διαπιστωθεί ότι όντως στο φιλτραρισμένο νερό δεν ανιχνεύεται ⁷Be.

Προκειμένου να αναλυθεί το νερό που έχει διέλθει από τα φίλτρα, μετά την κατακράτηση των σωματιδίων στα φίλτρα, το νερό τοποθετείται σε ειδικό υδατόλουτρο αποσταγμένου νερού (Σχήμα 4.4) ώστε να υποστεί ελαφρά εξάτμιση (στους ~80°C). Η διάρκεια της εξάτμισης ποικίλει, ανάλογα με τον όγκο του νερού.



Σχήμα 4.4 Λουτρό αποσταγμένου ύδατος του ΕΠΤ-ΕΜΠ

Σκοπός της εξάτμισης είναι η μείωση του όγκου του νερού ώστε να μπορεί να τοποθετηθεί σε τυποποιημένα δοχεία γεωμετρίας 2 και όγκου ~280 ml για να αναλυθεί. Με την ήπια εξάτμιση του νερού αναμένεται αύξηση της συγκέντρωσης του ⁷Be που ενδεχομένως παραμένει στο νερό, ανάλογη με τη μείωση του όγκου του νερού. Μετά την ανάλυση και του φιλτραρισμένου νερού, υπολογίζεται η συγκέντρωση του αρχικού δείγματος ως το άθροισμα των ανηγμένων συγκεντρώσεων ⁷Be που υπολογίστηκαν για το φίλτρο και το φιλτραρισμένο νερό.

Ακολουθώντας τη μεθοδολογία αυτή για την επεξεργασία και ανάλυση των δειγμάτων βρόχινου νερού προέκυψαν τα εξής συμπεράσματα:

- Η ανάλυση των φίλτρων, μέσα από τα οποία έχει φιλτραριστεί το νερό της βροχής, οδηγεί σε μάλλον χαμηλές τιμές της ραδιενέργειας του ⁷Be (~0.13Bg/L) και μέτρια στατιστική και γεννάει υποψίες για προβλήματα στη μεθοδολογία ανάλυσης.
- Η εκτίμηση του κατώτερου επίπεδου ανίχνευσης του ⁷Be στο νερό της βροχής (~0.84Bg/L), μέσω της φασματοσκοπικής ανάλυσής του σε «γεωμετρία 2», έδειξε ότι στην περίπτωση αυτή είναι δυνατόν να υπάρχει αξιόλογη ποσότητα ⁷Be στο νερό, η οποία δεν θα μπορεί να ανιχνευθεί. Συνεπώς, δεν μπορεί να αποκλεισθεί ότι μία ποσότητα ⁷Be, η οποία μπορεί να είναι σημαντική ως ποσοστό, μπορεί να διέρχεται από το φίλτρο και να παραμένει στο νερό και τελικά να μην ανιχνεύεται.

Όπως προκύπτει από τα παραπάνω, η μεθοδολογία που προτάθηκε στο πλαίσιο της Δ.Ε. [Δ.Ε. Σάββα Μ., 2009] αποτέλεσε μία βελτίωση της απλής μεθόδου ανάλυσης των δειγμάτων υγρών κατακρημνίσεων χωρίς καμία επεξεργασία, ωστόσο δεν έδωσε τα επιθυμητά αποτελέσματα, όσον αφορά στον προσδιορισμό της συγκέντρωσης του ⁷Be με επαρκή ακρίβεια, της τάξης του 10%(1σ). Για το λόγο αυτό, στο πλαίσιο της παρούσας Δ.Ε. αναζητήθηκε καλύτερη μεθοδολογία επεξεργασίας του νερού της βροχής και του χιονιού.

4.4 Μέθοδοι επεξεργασίας του νερού της βροχής που μελετήθηκαν στο πλαίσιο της παρούσας Δ.Ε.

Με στόχο τη βελτίωση της εφαρμοζόμενης μεθοδολογίας επεξεργασίας των δειγμάτων υγρών κατακρημνίσεων, αποφασίστηκε στο πλαίσιο της παρούσας Δ.Ε. να αναζητηθεί νέα μέθοδος για την επεξεργασία δειγμάτων νερού βροχής και χιονιού, η οποία θα οδηγεί στην πιο αποτελεσματική επεξεργασία του δείγματος νερού και στον πιο ακριβή προσδιορισμό της συγκέντρωσης του ⁷Be σε αυτό.

4.4.1 Μέθοδος της πλήρους εξάτμισης του δείγματος

Αρχικά, προτάθηκε η πλήρης εξάτμιση του συλλεχθέντος δείγματος υγρών κατακρημνίσεων μέχρι το σχηματισμό επιφανειακής πηγής. Στόχος ήταν η συμπύκνωση του ⁷Be και η απόθεσή του ως επιφανειακή πηγή η οποία έχει μεγαλύτερη απόδοση ανίχνευσης.

Η μέθοδος αυτή εφαρμόστηκε σε δειγματοληψία χιονιού η οποία πραγματοποιήθηκε στις 8 Ιανουαρίου 2013. Με βάση τα όσα αναφέρονται παραπάνω πραγματοποιήθηκαν τρεις δειγματοληψίες με χρήση 4 δοχείων συλλογής, συνολικής επιφάνειας ~0.7m². Τα στοιχεία των δειγματοληψιών, όπως ώρα έναρξης, διάρκεια, ποσότητα συλλεχθέντος χιονιού παρουσιάζονται στον παρακάτω Πίνακα 4.1. Επισημαίνεται ότι σε διάστημα μικρότερο των 36 ωρών πριν την πρώτη χιονόπτωση είχε παρατηρηθεί βροχόπτωση στην ευρύτερη περιοχή, γεγονός που οδηγεί στο συμπέρασμα ότι ποσότητα των αερολυμάτων έχει ήδη ξεπλυθεί και οι συγκεντρώσεις στο χιόνι αναμένονται να είναι χαμηλές.

α/α	έναρξη δειγ/ψίας	πέρας δειγ/ψίας	ποσότητα χιονιού (g)	ποσότητα DIW (g)	τελική ποσότητα δείγματος (g)
1	07/01/2013 16:30	08/01/2013 09:00	723.5	128.8	852.3
2	08/01/2013 09:20	08/01/2013 13:05	180.9	107.2	288.1
3	08/01/2013 13:05	08/01/2013 15:15	771.3	125.2	896.5

Πίνακας 4.1 Στοιχεία δειγματοληψίας χιονιού στις 08 Ιανουαρίου 2013

Μετά το πέρας κάθε δειγματοληψίας το σύνολο του χιονιού και του αποσταγμένου νερού που χρησιμοποιήθηκε για το ξέπλυμα των λεκανών συλλογής μεταφέρθηκε σε πλαστικό δοχείο. Από κάθε δειγματοληψία χρησιμοποιήθηκε ποσότητα για την πλήρωση δοχείων «γεωμετρίας 2», χωρίς προηγουμένως να γίνει καμία επεξεργασία. Το κάθε δείγμα ανακινήθηκε πριν την πλήρωση του δοχείου «γεωμετρίας 2», ώστε το δείγμα να είναι αντιπροσωπευτικό του συλλεχθέντος δείγματος. Τα δείγματα που προέκυψαν, τα οποία πήραν την κωδική ονομασία που φαίνεται στον παρακάτω Πίνακα 4.2, αναλύθηκαν με γ-φασματοσκοπία στον ανιχνευτή XtRa με τη χρήση του συστήματος CSS. Τα αποτελέσματα της ανάλυσης παρουσιάζονται στον Πίνακα 4.2.

α/α δειγ/ψίας	Δείγμα	κωδικός SPUNAL	μάζα δείγματος (g)	⁷ Be (Bq/L)	αβεβαιότητα (%, 1σ)
1	R0063	16/1.191	272.6	1.16	51
2	R0064	16/1.195	279.7	<lld< td=""><td>-</td></lld<>	-
3	R0065	16/1.206	270.5	1.21	49

Πίνακας 4.2 Η συγκέντρωση του 'Βε στα δείγματα χιονιού

Από τα στοιχεία του παραπάνω πίνακα γίνονται εμφανείς οι υψηλές αβεβαιότητες κατά τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης του ⁷Be στο χιόνι. Έτσι, επιλέχθηκε να εφαρμοστεί και η τεχνική της πλήρους εξάτμισης. Επισημαίνεται ότι για τη 2^η δειγματοληψία δεν υπήρχε επαρκής ποσότητα μετά τη δημιουργία του δείγματος «γεωμετρίας 2» για να εφαρμοστεί η νέα τεχνική.

Σημαντικό πλεονέκτημα της μεθόδου πλήρους εξάτμισης είναι η δυνατότητα συμπύκνωσης ολόκληρης της ποσότητας του ⁷Be σε μία επιφανειακή πηγή. Είναι γνωστό ότι το ⁷Be αποτίθεται στο έδαφος μέσω των υγρών κατακρημνίσεων κυρίως στα πρώτα χιλιοστά κατακρήμνισης. Αυτό σημαίνει ότι εάν η δειγματοληψία συνεχιστεί μετά από αυτά τα πρώτα χιλιοστά ύψους βροχής, το λαμβανόμενο δείγμα αραιώνεται όσον αφορά στην ειδική συγκέντρωση του ⁷Be. Ωστόσο, η συνολική ποσότητα του ισοτόπου σε Bq προφανώς αυξάνει. Εξατμίζοντας, επομένως, πλήρως το νερό, η ίδια ποσότητα ⁷Be κατανέμεται σε λιγότερο όγκο, και η ανάλυση του δείγματος αναμένεται να γίνει πιο αποδοτική και με καλύτερη στατιστική.

Για να διαπιστωθεί ότι η εξάτμιση δίνει τα αναμενόμενα αποτελέσματα, αποφασίστηκε η μέθοδος να εφαρμοστεί κατ' αρχήν στο 1° δείγμα, από το οποίο είχαν περισσέψει 576.8 g, όπως προκύπτει και από τους παραπάνω πίνακες. Το δείγμα τοποθετήθηκε σε γυάλινο δοχείο αυξημένης επιφάνειας εξάτμισης και στη συνέχεια σε λουτρό αποσταγμένου ύδατος μεγάλης χωρητικότητας (Σχήμα 4.5). Η θερμοκρασία του ύδατος επιλέχθηκε έτσι ώστε η θερμοκρασία στο δείγμα χιονιού να είναι περί τους 80 °C. Η συγκεκριμένη θερμοκρασία σε συνδυασμό με την αυξημένη επιφάνεια εξάτμισης του δοχείου επέτρεψε την εξάτμιση του χιονιού σε διάρκεια περίπου 8 ωρών. Μετά την πλήρη εξάτμιση, τα τοιχώματα του δοχείου ξεπλύθηκαν με αραιό HNO₃ (1%) τρεις φορές, κάθε φορά με ~75ml, και το δείγμα μεταφέρθηκε σε μικρότερο γυάλινο δοχείο με διαστάσεις που να επιτρέπουν την ανάλυσή του στον ανιχνευτή XtRa.



Σχήμα 4.5 Το λουτρό αποσταγμένου ύδατος μεγάλης χωρητικότητας του ΕΠΤ-ΕΜΠ.

Το μικρότερο γυάλινο δοχείο με τη σειρά του τοποθετήθηκε στο μικρότερο λουτρό αποσταγμένου ύδατος (Σχήμα 4.4), ώστε να εξατμιστεί το οξύ που χρησιμοποιήθηκε για το ξέπλυμα. Επισημαίνεται ότι ανά τακτά χρονικά διαστήματα προστέθηκε περιμετρικά του δοχείου ποσότητα οξέως, ώστε να μειωθεί στο ελάχιστο η ποσότητα ιζήματος που παρέμεινε στα τοιχώματα του δοχείου και το ίζημα που προέκυπτε να είχε κατά το δυνατόν καλύτερη κατανομή στον πυθμένα του δοχείου. Το δοχείο αφέθηκε να στεγνώσει πλήρως στον αέρα και στη συνέχεια αναλύθηκε στον ανιχνευτή XtRa με χρήση του συστήματος CSS.

Το αποτέλεσμα της ανάλυσης παρουσιάζεται στον Πίνακα 4.3, με τη συγκέντρωση του ⁷Be έχει αναχθεί στην έναρξη της δειγματοληψίας. Η αβεβαιότητα της μέτρησης με αυτή τη μέθοδο επεξεργασίας είναι αρκετά μικρότερη, αλλά συνεχίζει να είναι μεγάλη, ενώ πρέπει να επισημανθεί ότι παρά τη μεγάλη προσοχή που δόθηκε, είναι πιθανό ποσότητα του ⁷Be να παρέμεινε στα τοιχώματα των δοχείων που χρησιμοποιήθηκαν κατά τη διαδικασία. Δεδομένου ότι η βελτίωση στον προσδιορισμό της συγκέντρωσης του ⁷Be δεν επιφέρει τα επιθυμητά αποτελέσματα, δηλαδή η αβεβαιότητα εξακολουθεί να είναι μεγαλήτης 3^{ης} δειγματοληψίας.

Γεωμετρία	δείγμα	κωδικός SPUNAL	⁷ Be (Bq/L)	αβεβαιότητα (%, 1σ)
γεωμετρία 2	R0063	16/1.191	1.16	51
επιφανειακή πηγή	WRC015	16/1.222	0.68	17

Πίνακας 4.3 Σύγκριση των αποτελεσμάτων χωρίς επεξεργασία και με πλήρη εξάτμιση του δείγματος χιονιού 1

4.4.2 Μέθοδος επεξεργασίας του νερού της βροχής χρήσει ρητίνης ανταλλαγής κατιόντων

Από τα αποτελέσματα της προηγούμενης παραγράφου έγινε εμφανές ότι η απλή εξάτμιση του δείγματος μέχρι το σχηματισμό επιφανειακής πηγής δεν είναι επαρκής ώστε να δώσει τα επιθυμητά επίπεδα αβεβαιότητας στον προσδιορισμό της συγκέντρωσης του ⁷Be σε δείγματα υγρών κατακρημνίσεων.

Μία μέθοδος που απαντάται στη βιβλιογραφία περιλαμβάνει τη χρήση ρητίνης ανταλλαγής ιόντων. Δεδομένου ότι το βηρύλλιο απαντάται ως κατιόν, η χρησιμοποιούμενη ρητίνη θα έπρεπε να είναι ρητίνη κατιόντων [Komura et al., 2006, Jungck et al., 2009]. Η μέθοδος αυτή στηρίζεται στην ανταλλαγή ιόντων ανάμεσα στο δείγμα και τη ρητίνη. Τα ιόντα, που στην προκειμένη περίπτωση είναι κατιόντα ⁷Be, τα οποία βρίσκονται στο δείγμα, αλληλεπιδρούν με τα μόρια της ρητίνης με αποτέλεσμα τα κατιόντα του ⁷Be να «παγιδεύονται» στα μόρια της ρητίνης. Πρόκειται για χημική αντίδραση η οποία οδηγεί στη δέσμευση του ⁷Be στη ρητίνη.

Τα βασικά στάδια της μεθόδου επεξεργασίας των δειγμάτων με χρήση ρητίνης είναι τα εξής:

- δειγματοληψία βρόχινου νερού ή χιονιού σύμφωνα με τις προηγούμενες παραγράφους,
- προσθήκη ρητίνης κατιόντων, αφού πρώτα το δείγμα αποκτήσει pH ≈ 5 για να αποφεύγεται η υδρόλυση των κατιόντων μετάλλων,
- ανάδευση του δείγματος με τη ρητίνη, με στόχο την ανταλλαγή ιόντων σε ολόκληρη την ποσότητα του δείγματος,
- φιλτράρισμα του διαλύματος δείγματος ρητίνης με σκοπό την κατακράτηση της ρητίνης,
- ξήρανση της ρητίνης,
- γ-φασματοσκοπική ανάλυση της ρητίνης με σκοπό τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης του ⁷Be σε αυτή.

Για την πιστοποίηση της μεθόδου, λήφθηκε δείγμα μεγάλης ποσότητας βρόχινου νερού κατά την περίοδο 16 – 23 Ιανουαρίου 2013. Σκοπός της δειγματοληψίας αυτής ήταν η διαπίστωση ότι εφαρμόζοντας τη μέθοδο αυτή, η επεξεργασία και ανάλυση δείγματος υγρών κατακρημνίσεων γίνεται σε εύλογο χρονικό διάστημα και με την επιθυμητή ακρίβεια. Συνολικά λήφθηκαν ~3 L βρόχινου νερού από τις λεκάνες συλλογής που είναι εγκατεστημένες στην ταράτσα του κτιρίου Κ και η επεξεργασία του περιελάμβανε τα εξής στάδια:

- προσθήκη ποσότητας 4M HNO₃, ώστε το pH ≈ 5,
- προσθήκη 20g ρητίνης κατιόντων της εταιρίας Eichrom technologies INC,
- ανάδευση του διαλύματος δείγματος και ρητίνης για ~5 ώρες,
- φιλτράρισμα του διαλύματος δείγματος και ρητίνης ώστε να διαχωριστεί η ρητίνη από το διάλυμα, με τον τρόπο που περιγράφηκε στην παράγραφο 4.2,
- αφύγρανση της ρητίνης σε θάλαμο με silica gel (Σχήμα 4.6).



Σχήμα 4.6 Ρητίνη ανταλλαγής κατιόντων σε θάλαμο με silica gel

Μετά τη ξήρανση και με σκοπό την εύρεση της καλύτερης γεωμετρίας ανάλυσης, η οποία να δίνει τη μεγαλύτερη απόδοση και κατά συνέπεια την καλύτερη στατιστική ανάλυσης, η ρητίνη συσκευάστηκε σε τρεις γεωμετρίες. Αρχικά, εξετάστηκε το πλαστικό δοχείο που χρησιμοποιείται και για τη «γεωμετρία 2» (Σχήμα 4.7). Στη συνέχεια, εξετάστηκε δοχείο που χρησιμοποιείται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ στη μέθοδο της νετρονικής ενεργοποίησης (Σχήμα 4.8) και τέλος, μελετήθηκε η χρήση πλαστικού τριβλίου (Σχήμα 4.9).



Σχήμα 4.7 Ρητίνη ανταλλαγής κατιόντων σε πλαστικό δοχείο που χρησιμοποιείται για τη συσκευασία της γεωμετρίας 2.



Σχήμα 4.8 Ρητίνη ανταλλαγής κατιόντων σε δοχείο που χρησιμοποιείται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ για νετρονική ενεργοποίησης.



Σχήμα 4.9 Ρητίνη ανταλλαγής κατιόντων σε πλαστικό τριβλίο.

Τα αποτελέσματα των αναλύσεων για τις τρεις γεωμετρίες συσκευασίας της ρητίνης παρουσιάζονται στον Πίνακα 4.4. Επισημαίνεται ότι σε αυτή τη φάση δεν κρίθηκε σκόπιμος ο προσδιορισμός των αποδόσεων για όλες τις γεωμετρίες, καθώς μεγαλύτερη απόδοση ανίχνευσης έχει ως αποτέλεσμα καλύτερη στατιστική στην επιφάνεια φωτοκορυφής, δεδομένου ότι πρόκειται για το ίδιο ακριβώς δείγμα, με την ίδια συγκέντρωση.

Τύπος δοχείου	Φάσμα	Ρυθμός καταγραφόμενων γεγονότων	αβεβαιότητα (%, 1σ)	
δοχείο «γεωμετρίας 2»	16/1.246	0.0178	5.5	
δοχείο νετρονικής ενεργοποίησης	16/1.250	0.013	10.4	
πλαστικό τριβλίο	16/1.253	0.0168	5.5	

Πίνακας 4.4 Σύγκριση γεωμετριών για την γ-φασματοσκοπική ανάλυση της ρητίνης κατιόντων.

Από τα δεδομένα του παραπάνω πίνακα γίνεται εμφανές ότι το δοχείο νετρονικής ενεργοποίησης υστερεί σε σύγκριση με τους άλλους δύο τύπους δοχείων τόσο σε ρυθμό καταμετρούμενων γεγονότων, δηλαδή σε απόδοση, όσο και σε στατιστική. Από τους άλλους δύο τύπους δοχείων, οι οποίοι παρουσιάσουν την ίδια αβεβαιότητα και συγκρίσιμους ρυθμούς καταγραφόμενων γεγονότων, πρέπει να σημειωθεί ότι η εξασφάλιση της ομοιόμορφης κατανομής της ρητίνης στο δοχείο δεν είναι και τόσο εύκολη στην περίπτωση του πλαστικού δοχείου «γεωμετρίας 2». Αντίθετα, στην περίπτωση χρήσης του τριβλίου η ομοιομορφία είναι εξασφαλισμένη καθώς το δοχείο γεμίζεται πλήρως με ρητίνη και η συμπίεση γίνεται από το ίδιο το καπάκι του δοχείου. Γίνεται άμεσα κατανοητή η υπερίσχυση του τριβλίου έναντι του δοχείου «γεωμετρίας 2» και επομένως αυτή είναι και η γεωμετρία που υιοθετήθηκε.

Για να διαπιστωθεί κατά πόσο δεν διαρρέει ποσότητα ⁷Be στο φιλτραρισμένο νερό, το σύνολο του φιλτραρισμένου νερού τοποθετήθηκε σε γυάλινο δοχείο σε λουτρό ύδατος, με στόχο την πλήρη εξάτμισή του. Το γυάλινο δοχείο ξεπλύθηκε με 4M HNO₃ και το διάλυμα που προέκυψε, τελικής μάζας 40.9g, συσκευάστηκε σε «γεωμετρία 8» και αναλύθηκε στον ανιχνευτή XtRa. Από τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση δεν προέκυψε φωτοκορυφή στην περιοχή του ⁷Be και υπολογίστηκε το κατώτερο όριο ανίχνευσης, ίσο με 0.14Bq/L.

Επιπλέον, αναλύθηκε και το χρησιμοποιημένο φίλτρο ώστε να διαπιστωθεί εάν ποσότητα ⁷Be παρέμενε στο φίλτρο. Από την ανάλυση δεν προέκυψε φωτοκορυφή ⁷Be και το κατώτερο όριο ανίχνευσης υπολογίστηκε ίσο με 0.10Bq/L.

4.4.3 Σύγκριση των μεθόδων επεξεργασίας δειγμάτων νερού

Για тŋ σύγκριση των μεθόδων επεξεργασίας δειγμάτων υγρών κατακρημνίσεων πραγματοποιήθηκε δειγματοληψία βρόχινου **ύ**οq3ν στις 07 Φεβρουαρίου 2013. Κατά τη διάρκεια της δειγματοληψίας συλλέγονταν ταυτόχρονα δύο δείγματα, με χρήση δύο δοχείων συλλογής για το καθένα. Στον παρακάτω Πίνακα 4.5 δίνονται τα στοιχεία της δειγματοληψίας και τα δείγματα που προέκυψαν από την επεξεργασία.

Η ποσότητα που συλλέχθηκε ήταν ικανή ώστε να τεθούν σε σύγκριση οι τρεις μέθοδοι μέτρησης της συγκέντρωσης του ισοτόπου στο νερό της βροχής. Έτσι, το ένα δείγμα, μάζας 2.532 kg, εξατμίζεται μέχρι τελικού όγκου μικρότερο από 40 cm³ και συσκευάζεται σε δοχείο «γεωμετρίας 8». Από το άλλο δείγμα, μάζας 2.590 kg, αρχικά πληρώνεται δοχείο «γεωμετρίας 2» χωρίς να υποστεί καμία επεξεργασία, ενώ

70

στη συνέχεια το υπόλοιπο επεξεργάζεται σύμφωνα με τη μέθοδο της παραγράφου 4.3.2 και προκύπτει ένα δείγμα ρητίνης κατιόντων και ένα δείγμα γεωμετρίας 2 από το φιλτραρισμένο νερό.

	ολική μάζα (kg)	καθαρή μάζα νερού βροχής (kg)	μέθοδος επεξεργασίας	δείγμα
δοχείο Α	2.532	2.356	εξάτμιση	WRC020
			καμία	R0066
δοχείο Β	2.590	2.360	προσθήκη ρητίνης	MS647
			φιλτραρισμένο νερό	WRC017

Πίνακας 4.5 Στοιχεία δειγματοληψίας βρόχινου νερού της 7ης Φεβρουαρίου 2013

Όλα τα δείγματα αναλύθηκαν στον ανιχνευτή XtRa με χρήση του συστήματος CSS. Τα αποτελέσματα της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης και παρουσιάζονται στον Πίνακα 4.6. Παρατηρείται ότι τα αποτελέσματα που δίνουν και οι τρεις μέθοδοι για τη συγκέντρωση του ⁷Be στο βρόχινο νερό συγκλίνουν, έχοντας αποκλίσεις στατιστικά μη-σημαντικές, γεγονός που δείχνει ότι οι τρεις μέθοδοι δεν εισάγουν κάποιο συστηματικό σφάλμα κατά την επεξεργασία του βρόχινου νερού. Ωστόσο, η επεξεργασία του νερού με χρήση ρητίνης κατιόντων δίνει τα πιο ακριβή αποτελέσματα από όλες τις εξεταζόμενες μεθόδους.

μέθοδος επεξεργασίας	δείγμα	μάζα δείγματος (g)	κωδικός φάσματος	⁷ Be (Bq/L)	αβεβαιότητα (%, 1σ)
εξάτμιση	WRC020	81.6	16/1.286	1.9	9.4
καμία επεξεργασία	R0066	277.6	16/1.261	2.4	23.6
προσθήκη ρητίνης	MS647	19.6579	16/1.264	1.9	6.9
φιλτραρισμένο νερό	WRC017	282.3	16/2.39	< 0.1	

Πίνακας 4.6 Η συγκέντρωση του 'Βε στο νερό της βροχής για τις τρεις μεθόδους επεξεργασίας.

Στο σημείο αυτό πρέπει να τονιστεί ότι παρόλο που η ρητίνη υπέστη ξήρανση σε δοχείο με silica gel, παρατηρήθηκε ότι μετά από χρονικό διάστημα ~3 μηνών, το δείγμα ρητίνης είχε χάσει επιπλέον υγρασία, είχε συρρικνωθεί και είχαν παρουσιαστεί ρωγμές. Επίσης, κατά την ανακίνηση του δοχείου, ο όγκος που καταλάμβανε η ρητίνη παρουσίαζε μείωση σε σχέση με την ημέρα συσκευασίας του, όπως φαίνεται και στο παρακάτω Σχήμα 4.10. Το γεγονός αυτό αποτελεί μια αδυναμία της διαδικασίας και θα πρέπει να διερευνηθεί μελλοντικά. Πάντως, για την περίπτωση του προσδιορισμού του ⁷Be, οι μετρήσεις θα πρέπει ούτως ή άλλως να γίνουν σύντομα μετά από την προετοιμασία του δείγματος, εξαιτίας του χρόνου υποδιπλασιασμού του.



Σχήμα 4.10 Ρητίνη ανταλλαγής κατιόντων σε πλαστικά τριβλία μετά την πάροδο 3 μηνών από τη συσκευασία

4.5 Συμπεράσματα για την επεξεργασία δειγμάτων υγρών κατακρημνίσεων

Αρχικά, τόσο από τα αποτελέσματα προηγούμενης εργασίας [Δ.Ε. Σάββα Μ., 2009] όσο και από τη διερεύνηση που έγινε στο πλαίσιο της παρούσας Δ.Ε. διαπιστώθηκε ότι η μερική εξάτμιση του δείγματος υγρών κατακρημνίσεων, προκειμένου να δημιουργηθούν τυποποιημένες γεωμετρίες όγκου για την ανάλυση του συμπυκνώματος, δεν οδηγεί στα επιθυμητά επίπεδα αβεβαιότητας, κατά τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης του ⁷Be στο νερό της βροχής και του χιονιού. Επιπλέον αποτελεί μία χρονοβόρα και επίπονη διαδικασία, καθώς η εξάτμιση μπορεί να διαρκέσει μέχρι και μία εβδομάδα, ανάλογα με την ποσότητα του δείγματος που λαμβάνεται. Παράλληλα, η ακρίβεια προσδιορισμού της συγκέντρωσης του ⁷Be, ακόμα και μετά από δύο μέρες ανάλυσης, δεν ξεπερνά το ~20%.

Στα πλαίσια της Δ.Ε. συνέχεια, εξετάσθηκε η περίπτωση της πλήρους εξάτμισης του δείγματος, με στόχο το σχηματισμό επιφανειακής πηγής, η οποία υπερτερεί σε απόδοση ανίχνευσης. Όπως και στην περίπτωση της μερικής εξάτμισης, πρόκειται για μία χρονοβόρα διαδικασία. Τα αποτελέσματα αυτής της μεθοδολογίας ήταν καλύτερα μεν, αλλά για τη δημιουργία του επίπεδου επιφανειακού δείγματος απαιτείται ιδιαίτερη επιμέλεια, καθώς πρέπει να δοθεί ιδιαίτερη προσοχή κατά την εξάτμιση ώστε η κατανομή του προκύπτοντος ιζήματος να είναι όσο το δυνατόν πιο ομοιόμορφη και να μην παραμένουν στα τοιχώματα του δοχείου υπολείμματα δείγματος. Γίνεται επομένως κατανοητό ότι παρόλο που αποτελεί μία βελτίωση της μεθοδολογίας επεξεργασίας δειγμάτων και προσεγγίζει τα επιθυμητά
επίπεδα αβεβαιότητας (~10% σε επίπεδο εμπιστοσύνης 1σ), δεν αποτελεί τη βέλτιστη λύση.

Τέλος, εξετάστηκε η μεθοδολογία που απαντάται στη βιβλιογραφία και περιλαμβάνει τη χρήση ρητίνης κατιόντων με στόχο την «παγίδευση» του ⁷Be στα μόρια της ρητίνης και τον εν συνεχεία προσδιορισμό της συγκέντρωσης του ⁷Be μέσω γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης της ρητίνης. Η μέθοδος συγκρίθηκε σε τις προαναφερθείσες και έγινε εμφανής η υπεροχή της, καθώς απαιτεί πολύ μικρότερη προετοιμασία, δεν υπάρχουν αμφιβολίες για την ομοιομορφία του δείγματος και δίνει πολύ καλύτερα επίπεδα αβεβαιότητας κατά τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης ενδιαφέροντος, τα οποία βρίσκονται και εντός των επιθυμητών ορίων (<10%,1σ). Από τη σύγκριση με τις άλλες μεθόδους αποδείχθηκε ότι είναι αποτελεσματική στη συγκράτηση του ⁷Be καθώς τα αποτελέσματα και των τριών μεθόδων δεν παρουσίασαν στατιστικά σημαντικές διαφορές.

Ο συνδυασμός των παραπάνω οδήγησε στο να υιοθετηθεί η μέθοδος επεξεργασίας με ρητίνη ως κύρια μέθοδος επεξεργασίας δειγμάτων υγρών κατακρημνίσεων, μέθοδος που χρησιμοποιήθηκε και για τα υπόλοιπα δείγματα βρόχινου νερού της παρούσας εργασίας.

5.1 Εισαγωγή

Το παρόν κεφάλαιο πραγματεύεται τη μελέτη της ημερήσιας μεταβολής της συγκέντρωσης του ⁷Be στα κατώτερα στρώματα της ατμόσφαιρας. Για αυτή τη μελέτη λήφθηκαν δεδομένα από μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν στο ΕΠΤ-ΕΜΠ στο παρελθόν, καθώς και από μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν στο πλαίσιο της παρούσας Δ.Ε. Αρχικά, μελετάται η ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του ισοτόπου υπό αίθριο καιρό, στη συνέχεια πραγματοποιείται μελέτη της μεταβολής της συγκέντρωσής του στον αέρα και στο νερό της βροχής κατά τη διάρκεια βροχερής ημέρας και τέλος, μελετάται η μεταβολή της συγκέντρωσής του κατά τη διάρκεια χιονόπτωσης.

5.2 Ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του ⁷Be υπό αίθριο καιρό

Στα πλαίσια της μελέτης της χρονικής εξάρτησης της συγκέντρωσης του ⁷Be, ιδιαίτερο ενδιαφέρον παρουσιάζει η μεταβολή της κατά τη διάρκεια μια ημέρας, καθώς από τα αποτελέσματα των μετρήσεων αυτών ενδεχομένως μπορούν να εξαχθούν συμπεράσματα για την κίνηση των αερίων μαζών στην ατμόσφαιρα. Για τη μελέτη χρησιμοποιήθηκαν δεδομένα που λήφθηκαν από παρελθούσες μετρήσεις, αλλά και από μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν στο πλαίσιο της παρούσας Δ.Ε. Οι μετρήσεις έγιναν σε ημέρες υπό αίθριο καιρό και μάλιστα χωρίς να έχει προηγηθεί βροχόπτωση στο κοντινό παρελθόν, καθώς η βροχή ξεπλένει τα αερολύματα και μειώνει τη συγκέντρωση του ⁷Be στην ατμόσφαιρα. Η συμπεριφορά του ισοτόπου στην ατμόσφαιρα κατά τη διάρκεια βροχόπτωσης προτιμήθηκε να μελετηθεί ξεχωριστά.

Η κύμανση της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα κατά τη διάρκεια της ημέρας, μετρήθηκε μέσω διαδικασίας, που ακολουθήθηκε για πρώτη φορά κατά τη διάρκεια εκπόνησης της Δ.Ε. Παπανδρέου Σ. (2009), η οποία περιλαμβάνει 7 διαδοχικές τετράωρες δειγματοληψίες αέρα, ξεκινώντας το πρωινό της πρώτης ημέρας περί τις 8:00 και τελειώνοντας περίπου στις 12:00 της επόμενης ημέρας. Τα φίλτρα αέρα που προκύπτουν από κάθε δειγματοληψία αναλύονται στον ανιχνευτή

XtRa, απ' όπου και προκύπτει η συγκέντρωση του ισοτόπου για αυτό το διάστημα στον αέρα.

5.2.1 Ανασκόπηση των πειραμάτων για τη μελέτη της ημερήσιας κύμανσης της συγκέντρωσης του ⁷Be στο αέρα υπό αίθριο καιρό που πραγματοποιήθηκαν στο παρελθόν

Η πρώτες μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν στο ΕΠΤ-ΕΜΠ με σκοπό τη μελέτη της ημερήσιας μεταβολής της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα πραγματοποιήθηκαν κατά το διάστημα 17/07/2008 έως 18/07/2008, στα πλαίσια της Δ.Ε. Παπανδρέου Σ. (2009). Ο καιρός καθ' όλη τη διάρκεια της δειγματοληψίας ήταν αίθριος. Τα αποτελέσματα των μετρήσεων παρουσιάζονται στον Πίνακα 5.1. Επισημαίνεται ότι τα αποτελέσματα των αρχικών μετρήσεων έχουν διορθωθεί προκειμένου να ληφθεί υπόψη η διόρθωση της απόδοσης φωτοκορυφής η οποία περιγράφεται στην παράγραφο 3.3 της παρούσας Δ.Ε.

κωδικός φίλτρου	κωδικός φάσματος	ημερομηνία έναρξης δειγματοληψίας	ώρα έναρξης	διάρκεια (min)	συγκέντρωση ⁷ Be (mBq/m³)	αβεβαιότητα (%, 1σ)
A0302	14/5.285	17/07/2008	08:20	240	5.0	5.9
A0303	14/5.286	17/07/2008	12:27	240	5.6	4.8
A0304	14/5.287	17/07/2008	16:37	240	7.7	4.5
A0305	14/5.288	17/07/2008	20:45	240	5.1	6.6
A0306	14/5.289	18/07/2008	00:48	240	5.6	6.0
A0307	14/5.290	18/07/2008	04:55	240	5.0	6.2
A0308	14/5.297	18/07/2008	09:00	240	4.9	4.3

Πίνακας 5.1 Στοιχεία του κύκλου δειγματοληψίας 17-18 Ιουλίου 2008.

Από τα αποτελέσματα των μετρήσεων προκύπτει πως η συγκέντρωση του ισοτόπου παρουσιάζει μέγιστη συγκέντρωση ίση με 7.7 mBq/m³ στο διάστημα 16:37 – 20:45, ενώ η τιμή για τα υπόλοιπα διαστήματα περιορίζεται στα 4.9 έως 5.6 mBq/m³, τιμές οι οποίες βρίσκονται χαμηλά για καλοκαιρινή περίοδο και μάλιστα κοντά στο ηλιακό ελάχιστο.

Οι επόμενες μετρήσεις για αυτό το σκοπό πραγματοποιήθηκαν κατά το διάστημα από 02/07/2009 έως 03/07/2009. Τα αποτελέσματα, τα οποία παρουσιάζονται στον Πίνακα 5.2 δείχνουν τη συγκέντρωση του ισοτόπου να παρουσιάζει μεγάλες διακυμάνσεις, με μέγιστες τιμές να εμφανίζονται στα διαστήματα 8:30 – 12:30 και 20:25 – 0:25. Με εξαίρεση τη συγκέντρωση που

υπολογίστηκε για το διάστημα 16:45 έως 20:25, φαίνεται πως η συγκέντρωση του ισοτόπου τη συγκεκριμένη ημέρα βρίσκεται αρκετά υψηλότερα αυτής για τη δειγματοληψία 17-18 Ιουλίου 2008.

κωδικός φίλτρου	κωδικός φάσματος	ημερομηνία έναρξης δειγματοληψίας	ώρα έναρξης	διάρκεια (min)	συγκέντρωση ⁷ Be (mBq/m³)	αβεβαιότητα (%, 1σ)
A0357B	14/6.173	02/07/2009	08:10	241	8.6	3.9
A0358B	14/6.176	02/07/2009	12:15	240	6.4	9.7
A0359B	14/6.177	02/07/2009	16:45	240	7.2	8.7
A0360B	14/6.178	02/07/2009	20:25	240	9.0	3.9
A0361B	14/6.179	03/07/2009	00:25	240	6.7	8.8
A0362B	14/6.181	03/07/2009	04:25	240	7.2	8.7
A0363B	14/6.182	03/07/2009	08:30	240	9.3	6.8

Πίνακας 5.2 Στοιχεία του κύκλου δειγματοληψίας 02-03 Ιουλίου 2009

Τα αποτελέσματα των μετρήσεων των δύο παραπάνω κύκλων παρουσιάζονται στο Σχήμα 5.1, στο οποίο φαίνεται η κύμανση του ισοτόπου να ακολουθεί διαφορετική πορεία για τις δύο δειγματοληψίες, καθώς τα μέγιστα που παρουσιάζουν οι δύο κύκλοι εμφανίζονται σε διαφορετικό χρονικό σημείο.



Σχήμα 5.1 Η ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του ⁷Be στην ατμόσφαιρα για τις μετρήσεις του 2008 και 2009 (αβεβαιότητα σε επίπεδο 1σ).

Η σύγκριση των συγκεντρώσεων του όζοντος τις αντίστοιχες, ημέρες όπως μετρήθηκε από το σταθμό του ΕΔΠΑΡ στην Αγία Παρασκευή, από το διάστημα 8:00 - 9:00 στο οποίο ξεκίνησαν οι δειγματοληψίες έως το διάστημα 12:00 - 13:00 της επόμενης ημέρας, δίνεται στο Σχήμα 5.2.



Σχήμα 5.2 Η ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του O₃ στην ατμόσφαιρα από μετρήσεις στον σταθμό του ΕΔΠΑΡ στην Αγία Παρασκευή.

Αυτό που γίνεται σαφές από το Σχήμα 5.2 είναι ότι η ημερήσια μεταβολή του όζοντος και για τις δύο περιπτώσεις δειγματοληψίας ακολουθεί περίπου την ίδια μορφή. Συγκεκριμένα, παρατηρείται ραγδαία αύξηση της συγκέντρωσης από τις ~08:00 έως το μεσημέρι – πιθανότατα λόγω φωτοχημικού φαινομένου – οπότε ακολουθεί σταδιακή μείωση της συγκέντρωσης μέχρι το βράδυ. Μέσα στη νύχτα η συγκέντρωση έχει τιμές περίπου στο μισό της μέγιστης ημερήσιας τιμής.

Οι συγκεντρώσεις του ⁷Be και οι μέσες συγκεντρώσεις του Ο₃ για τα αντίστοιχα τετράωρα παρουσιάζονται για την 17^η Ιουλίου 2008 στο Σχήμα 5.3 και για την 2^α Ιουλίου 2009 στο Σχήμα 5.4. Για τις 17 Ιουλίου 2008, οι συγκεντρώσεις των ⁷Be και Ο₃ δεν φαίνεται να ακολουθούν παρόμοια συμπεριφορά. Η έντονη αύξηση της συγκέντρωσης του όζοντος που δεν συνοδεύεται από αύξηση στη συγκέντρωση του ⁷Be είναι πιθανότατα προϊόν του φωτοχημικού φαινομένου. Για τις 2 Ιουλίου 2009 οι συγκεντρώσεις των δύο συστατικών φαίνεται να ακολουθούν παρόμοια συμπεριφορά, με εξαίρεση την υψηλή της συγκέντρωσης του όζοντος το διάστημα

12:00 – 16:00, η οποία παρατηρείται διάστημα της ημέρας που ευνοείται το φωτοχημικό φαινόμενο, οπότε μπορεί να αποδοθεί εκεί.



Σχήμα 5.3 Η ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του ⁷Be και του όζοντος στην ατμόσφαιρα για τις μετρήσεις στις 17 Ιουλίου 2008 (αβεβαιότητα σε επίπεδο 1σ).



Σχήμα 5.4 Η ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του ⁷Be και του όζοντος στην ατμόσφαιρα για τις μετρήσεις στις 02 Ιουλίου 2009 (αβεβαιότητα σε επίπεδο 1σ).

5.2.2 Μετρήσεις της ημερήσιας μεταβολής της συγκέντρωσης του ⁷Be υπό αίθριο καιρό που πραγματοποιήθηκαν στο πλαίσιο της παρούσας Δ.Ε.

Οι πρώτες μετρήσεις στα πλαίσια της παρούσας Δ.Ε. πραγματοποιήθηκαν κατά το διάστημα 28 – 29 Ιουνίου 2012, διάστημα κατά το οποίο ο καιρός ήταν αίθριος, χωρίς περιστατικό βροχόπτωσης στην περιοχή για τουλάχιστον δυο εβδομάδες. Το σχετικά ήρεμο ηλιακό μέγιστο του τρέχοντος ηλιακού κύκλου επέτρεψε στη συγκέντρωση του ισοτόπου ⁷Be να βρίσκεται σε υψηλά επίπεδα. Τα αποτελέσματα της συγκέντρωση του ισοτόπου παρουσιάζονται στον Πίνακα 5.3.

κωδικός φίλτρου	κωδικός φάσματος	ημερομηνία έναρξης δειγματοληψίας	ώρα έναρξης	διάρκεια (min)	συγκέντρωση ⁷ Be (mBq/m³)	αβεβαιότητα (%, 1σ)
A0456B	16/1.119	28/06/2012	08:13	242	7.8	3.6
A0457B	16/1.121	28/06/2012	12:21	241	7.1	2.3
A0458B	16/1.132	28/06/2012	16:27	241	8.4	3.6
A0459B	16/1.137	28/06/2012	20:33	218	8.3	3.0
A0460B	11/3.276	29/06/2012	00:16	224	8.9	3.3
A0461B	16/1.144	29/06/2012	04:08	222	7.8	4.4
A0462B	16/1.146	29/06/2012	07:56	236	7.2	4.2

Πίνακας 5.3 Στοιχεία του κύκλου δειγματοληψίας 28 – 29 Ιουνίου 2012

Οι επόμενες μετρήσεις πραγματοποιήθηκαν κατά το διάστημα 20 – 21 Ιουνίου 2012. Καθ' όλη τη διάρκεια της διαδικασίας ο καιρός ήταν αίθριος. Τα αποτελέσματα που προέκυψαν από τις μετρήσεις παρουσιάζονται στον Πίνακα 5.4.

κωδικός φίλτρου	κωδικός φάσματος	ημερομηνία έναρξης δειγματοληψίας	ώρα έναρξης	διάρκεια (min)	συγκέντρωση ⁷ Be (mBq/m³)	αβεβαιότητα (%, 1σ)
A0463B	16/1.148	20/07/2012	08:00	237	5.6	2.7
A0464B	16/1.150	20/07/2012	12:01	277	6.0	3.9
A0465B	16/1.152	20/07/2012	16:40	220	8.0	3.5
A0466B	12/1.286	20/07/2012	20:24	212	7.7	3.8
A0467B	12/1.288	21/07/2012	00:00	240	8.6	3.5
A0468B	11/3.292	21/07/2012	04:04	234	7.8	1.9
A0469B	16/1.156	21/07/2012	08:04	240	7.4	1.7

Πίνακας 5.4 Στοιχεία του κύκλου δειγματοληψίας τις 20 – 21 Ιουλίου 2012.

Η ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης για τις δύο παραπάνω ολοήμερες μετρήσεις παρουσιάζεται και στο Σχήμα 5.5. Οι μετρήσεις δείχνουν τη συγκέντρωση του ισοτόπου να παρουσιάζει παραπλήσια συμπεριφορά αυτές τις δύο ημέρες, με

μέγιστη συγκέντρωση να μετράται κατά το διάστημα 00:00 - 04:00 και ελάχιστη στο διάστημα 12:00 – 16:00. Εξαίρεση σε αυτό το μοτίβο αποτελεί η χαμηλή συγκέντρωση που υπολογίστηκε για το ισότοπο το διάστημα 08:00 - 12:00 της 20ής Ιουλίου 2012, που στη συνέχεια αρχίζει να ανακάμπτει. Η αρκετά υψηλότερη συγκέντρωση που υπολογίστηκε για το ισότοπο το ίδιο διάστημα την επόμενη ημέρα και που είναι παραπλήσια της συγκέντρωσης για το ίδιο διάστημα της ημέρας για τις 28 και 29 Ιουνίου είναι ένδειξη ότι η τιμή της συγκέντρωσης που υπολογίστηκε για τις 20/07/2012 δεν είναι συνήθης για την εποχή. Παρ' όλα αυτά, όμως, δεν μπορεί να αποδοθεί στην επίδραση κάποιου παράγοντα.



Σχήμα 5.5 Ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του ⁷Be στην ατμόσφαιρα για τις καλοκαιρινές μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν στα πλαίσια της παρούσας Δ.Ε. (αβεβαιότητα σε επίπεδο 1σ).

Για τις συγκεκριμένες μετρήσεις, οι αντίστοιχες τιμές συγκέντρωσης του όζοντος στο σταθμό Αγίας Παρασκευής ήταν διαθέσιμες μόνο για το διήμερο 20 – 21 Ιουλίου 2012. Η κύμανσή του παρουσιάζεται στο Σχήμα 5.6.



Σχήμα 5.6 Ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του Ο₃ στην ατμόσφαιρα για το διήμερο 20 – 21 Ιουλίου 2012 από μετρήσεις στον σταθμό του ΕΔΠΑΡ στην Αγία Παρασκευή

Οι συγκεντρώσεις του ⁷Be και οι μέσες συγκεντρώσεις του Ο₃ στην Αγ. Παρασκευή για τα αντίστοιχα τετράωρα παρουσιάζονται στο Σχήμα 5.7



Σχήμα 5.7 Η ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του ⁷Be και του όζοντος στην ατμόσφαιρα για τις μετρήσεις στις 20 Ιουλίου 2012 (αβεβαιότητα σε επίπεδο 1σ).

Οι συγκεντρώσεις των ⁷Be και Ο₃ και σε αυτήν την περίπτωση δεν μοιάζει να ακολουθούν παρόμοια συμπεριφορά, αλλά πρέπει να σημειωθεί ότι η συμπεριφορά του όζοντος το διάστημα 08:00 – 12:00 στις 20 και 21 Ιουλίου 2012 είναι ένδειξη του

ότι η μειωμένη συγκέντρωση που μετρήθηκε για το ισότοπο το διάστημα 08:00 – 12:00 της 20^{ης} Ιουλίου 2012 δεν είναι αποτέλεσμα μειωμένης κατακόρυφης μεταφοράς.

Οι επόμενες μετρήσεις της ημερήσιας μεταβολής της συγκέντρωσης του ⁷Be στο αέρα πραγματοποιήθηκαν το διήμερο 5 και 6 Οκτωβρίου 2012. Ο καιρός κατά την περίοδο δειγματοληψίας ήταν αίθριος ή σχεδόν αίθριος. Τα διαστήματα δειγματοληψίας αέρα και η συγκέντρωση του ισοτόπου όπως υπολογίστηκε παρουσιάζονται στον Πίνακα 5.5.

κωδικός φίλτρου	κωδικός φάσματος	ημερομηνία έναρξης δειγματοληψίας	ώρα έναρξης	διάρκεια (min)	συγκέντρωση ⁷ Be (mBq/m³)	αβεβαιότητα (%, 1σ)
A0470B	11/4.107	05/10/2012	09:27	179	6.0	2.4
A0471B	11/4.109	05/10/2012	12:30	225	6.5	3.1
A0472B	11/4.111	05/10/2012	16:10	228	6.5	2.0
A0473B	11/4.113	05/10/2012	20:01	238	5.7	3.8
A0474B	11/4.115	06/10/2012	00:00	238	6.0	2.7
A0475B	11/4.118	06/10/2012	04:03	240	6.0	3.6
A0476B	16/1.169	06/10/2012	08:06	240	6.3	3.3

Πίνακας 5.5 Στοιχεία του κύκλου δειγματοληψίας 05 – 06 Οκτωβρίου 2012

Από αυτές τις μετρήσεις προκύπτει ότι η συγκέντρωση του ισοτόπου παρουσιάζει μικρότερες διακυμάνσεις κατά τη διάρκεια της ημέρας από τις αντίστοιχες των καλοκαιρινών μηνών. Η μέγιστη συγκέντρωση παρατηρείται κατά τα διαστήματα 12:00 – 16:00 και 16:00 – 20:00. Η συγκέντρωση που υπολογίστηκε βρίσκεται καθ' όλη τη όλη τη διάρκεια της ημέρας χαμηλότερα αυτής κατά το διήμερο 28 και 29 Ιουνίου 2012 από περίπου 0.7 έως 3.0 mBq/m³ (Σχήμα 5.8). Αυτή η συμπεριφορά είναι αναμενόμενη, καθώς το φθινόπωρο η κατακόρυφη μεταφορά αερίων μαζών είναι περιορισμένη σε σχέση με το καλοκαίρι, με αποτέλεσμα η τροπόσφαιρα να μην εμπλουτίζεται σε ⁷Be με τον ίδιο ρυθμό όσο το καλοκαίρι. Γενικότερα, αναμένεται η συγκέντρωση του ισοτόπου να ακολουθεί διαφορετική συμπεριφορά κάθε εποχή, καθώς οι αέριες μάζες που φέρουν τα αερολύματα δεν ακολουθούν ίδια πορεία καθ' όλη τη διάρκεια του έτους. Η κύμανση της συγκέντρωσης του όζοντος για το ίδιο διάστημα παρουσιάζεται στο Σχήμα 5.9, ενώ στο σχήμα 5.10 παρουσιάζονται παράλληλα οι πορείες των συγκεντρώσεων των δύο συστατικών.



Σχήμα 5.8 Η ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του ⁷Be στην ατμόσφαιρα που προέκυψε για τις μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν τα διήμερα 28 και 29/06/2012 και 05 και 06/10/2012.



Σχήμα 5.9 Ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του Ο₃ στην ατμόσφαιρα για το διήμερο 05 και 06 Οκτωβρίου 2012 από μετρήσεις στον σταθμό του ΕΔΠΑΡ στην Αγία Παρασκευή



Σχήμα 5.10 Η ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του ⁷Be και του όζοντος στην ατμόσφαιρα για τις μετρήσεις στις 05 και 06 Οκτωβρίου 2012 (αβεβαιότητα σε επίπεδο 1σ).

Οι συγκεντρώσεις των ⁷Be και O₃ παρουσιάζουν μικρές διακυμάνσεις κατά τη διάρκεια της ημέρας, με εξαίρεση τις χαμηλές τιμές που υπολογίστηκαν για το όζον το διάστημα 08:00 – 11:00. Τα διαστήματα στα οποία παρατηρούνται οι μέγιστες τιμές συγκεντρώσεων συμπίπτουν, αλλά δεν μπορούν να εξαχθούν ασφαλή συμπεράσματα από αυτή τη σύγκριση.

Το σύνολο των κύκλων υπό αίθριο καιρό που πραγματοποιήθηκαν στο ΕΠΤ-ΕΜΠ παρουσιάζονται στο Σχήμα 5.11. Παρατηρείται ότι η κύμανση της συγκέντρωσης του ισοτόπου δεν φαίνεται να ακολουθεί συγκεκριμένο μοτίβο. Κατά τις θερινές μετρήσεις παρατηρούνται έντονες μεταβολές της συγκέντρωσης εντός της ημέρας, αλλά οι μέγιστες τιμές μεταξύ των μετρήσεων δεν παρατηρούνται τις ίδιες ώρες της ημέρας, επηρεασμένες πιθανότατα από την αστάθεια της ατμόσφαιρας κατά το καλοκαίρι. Είναι προφανές ότι προκειμένου να προκύψουν κάποια συμπεράσματα σχετικά με την ύπαρξη συγκεκριμένου μοτίβου στην ημερήσια κύμανση θα πρέπει να είναι διαθέσιμα στοιχεία από πολλούς κύκλους, αλλά και να γίνει προσπάθεια οι κύκλοι αυτοί μετρήσεων να πραγματοποιούνται κάτω από όσο το δυνατόν καλύτερα γνωστές μετεωρολογικές συνθήκες.



Σχήμα 5.11 Η ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του ⁷Be στην ατμόσφαιρα που προέκυψε από τις 24ωρες μετρήσεις υπό αίθριο καιρό.

5.3 Ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του 'Βe υπό βροχόπτωση

Εκτός από τη μεταβολή της συγκέντρωσης του ισοτόπου στον αέρα κατά τη διάρκεια της ημέρας υπό αίθριο καιρό, ενδιαφέρον παρουσιάζει η μέτρηση της συγκέντρωσης του ισοτόπου κατά τη διάρκεια μια βροχερής ημέρας τόσο στον αέρα, όσο και στο βρόχινο νερό, καθώς θα μπορούσε να βοηθήσει να εξαχθούν συμπεράσματα για τους μηχανισμούς απομάκρυνσης των αερολυμάτων από την ατμόσφαιρα κατά τη διάρκεια γεγονότων βροχόπτωσης.

5.3.1 Ανασκόπηση παλαιότερων μετρήσεων της ημερήσιας μεταβολής της συγκέντρωσης του ⁷Be υπό βροχόπτωση

Στο παρελθόν, στο ΕΠΤ-ΕΜΠ επιχειρήθηκε να μετρηθεί η κύμανση της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα πριν και κατά τη διάρκεια μιας βροχόπτωσης. Οι δειγματοληψίες πραγματοποιήθηκαν το διάστημα 13 – 15 Απριλίου 2009. Η πρώτη δειγματοληψία αέρα ξεκίνησε το πρωί της 13^{ης} Απριλίου 2009 στις 10:05. Οι δειγματοληψίες αέρα είχαν διάρκεια 4 ώρες μέχρι τις 18:53 το απόγευμα της 14^{ης}

Απριλίου 2009. Στη συνέχεια πραγματοποιήθηκε μια 12ωρη δειγματοληψία μέχρι το πρωί της 15^{ης} Απριλίου. Αναλυτικότερα τα διαστήματα και τα αποτελέσματα από τις μετρήσεις της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα αυτό το διάστημα παρουσιάζονται στον Πίνακα 5.6. Το ύψος βροχής όπως αποτυπώθηκε από το Hydrological Observatory of Athens (HOA) στο σταθμό της Πολυτεχνειούπολης Ζωγράφου και είναι διαθέσιμο στην ιστοσελίδα hoa.ntua.gr φαίνεται στο Σχήμα 5.12.

κωδικός φίλτρου	κωδικός φάσματος	ημερομηνία έναρξης δειγματοληψίας	ώρα έναρξης	διάρκεια (min)	συγκέντρωση ⁷ Be (mBq/m³)	αβεβαιότητα (%, 1σ)
A0341B	14/6.133	13/04/2009	10:05	240	10.5	9.9
A0342B	14/6.134	13/04/2009	14:17	240	7.7	9.7
A0343B	14/6.135	13/04/2009	18:24	240	7.2	9.8
A0344B	14/6.144	13/04/2009	22:30	240	6.7	10.5
A0345B	14/6.145	14/04/2009	02:35	240	6.6	11.6
A0346C	14/6.149	14/04/2009	06:35	240	5.4	8.1
A0347B	14/6.132	14/04/2009	10:47	240	2.6	12.4
A0348B	14/6.147	14/04/2009	14:53	240	2.5	30.9
A0349A	14/6.146	14/04/2009	19:00	720	2.0	14.1

Πίνακας 5.6 Στοιχεία του κύκλου δειγματοληψίας 13 – 15 Απριλίου 2009.



Σχήμα 5.12 Τιμή δεκάλεπτου του ύψους κατακρημνίσεων μετρούμενο σε mm την 14^η Απριλίου 2009 στην περιοχή της Πολυτεχνειούπολης Ζωγράφου, όπως αποτυπώθηκε από το HOA.

Το Σχήμα 5.13 παρουσιάζει τη συγκέντρωση του ⁷Be στον αέρα, καθώς και το μέσο ύψος βροχόπτωσης. Η συγκέντρωση του ισοτόπου παρουσιάζει τη μέγιστη τιμή της στο διάστημα 10:05 – 14:05. Στη συνέχεια παρατηρείται μια μεγάλη πτώση, ενώ η συγκέντρωσή του συνεχίζει να μειώνεται με μικρούς ρυθμούς μέχρι να αρχίσει η βροχόπτωση. Όπως προκύπτει από το σχήμα αυτό, δεν είναι η βροχόπτωση στην περιοχή της Πολυτεχνειούπολης που ευθύνεται για τη μείωση της συγκέντρωσης του ⁷Be, αλλά μάλλον η πτώση της βαρομετρικής πίεσης που προηγήθηκε, ή και η ενδεχόμενη μεταφορά στην περιοχή αερίων μαζών από περιοχές όπου είχε προηγουμένως βρέξει έντονα και στις οποίες η συγκέντρωση του ⁷Be ήταν χαμηλή. Γίνεται σαφές, επομένως, ότι χρειάζεται πολύ μεγάλη προσοχή κατά την εξαγωγή συμπερασμάτων σχετικά με την επίδραση της βροχής στη μείωση της συγκέντρωσης ενός ιχνοστοιχείου (όπως π.χ. το ⁷Be) στον αέρα, καθώς υπάρχουν και άλλοι μηχανισμοί που μπορούν να έχουν ισχυρή επίδραση στη μείωση αυτη.



Σχήμα 5.13 Σύγκριση της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα και του ύψους βροχόπτωσης όπως μετρήθηκε από το HOA για το διάστημα 13 – 14 Απριλίου 2009.

5.3.2 Μετρήσεις της ημερήσιας μεταβολής της συγκέντρωσης του ⁷Be υπό βροχόπτωση, που πραγματοποιήθηκαν στα πλαίσια της παρούσας Δ.Ε.

Για την 13^η Φεβρουαρίου 2013 υπήρχε πρόγνωση για έντονη βροχόπτωση, οπότε αποφασίστηκε η μελέτη του ημερήσιου κύκλου της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα και η κύμανση της συγκέντρωσής του στο νερό της βροχής, κατά τη διάρκεια της βροχόπτωσης. Η πρώτη δειγματοληψία αέρα άρχισε στις 08:29 το πρωί. Κατά τη διάρκεια της δειγματοληψίας και πιο συγκεκριμένα περί τις 11:40 άρχισε η βροχόπτωση. Κατά τη διάρκεια της βροχόπτωσης, συλλέχθηκαν συνολικά έξι διαδοχικά δείγματα νερού, ενώ παράλληλα πραγματοποιήθηκαν και τέσσερις δειγματοληψίες αέρα. Το ύψος βροχόπτωσης, όπως αποτυπώθηκε από το Hydrological Observatory of Athens στο σταθμό της Πολυτεχνειούπολης Ζωγράφου και είναι διαθέσιμο στην ιστοσελίδα hoa.ntua.gr, φαίνεται στο Σχήμα 5.14.



Σχήμα 5.14 Τιμή δεκάλεπτου του ύψους κατακρημνίσεων μετρούμενο σε mm την 13^η Φεβρουαρίου 2013 στην περιοχή της Πολυτεχνειούπολης Ζωγράφου, όπως αποτυπώθηκε από το HOA.

Η δειγματοληψία αέρα πραγματοποιήθηκε παράλληλα με τις δειγματοληψίες νερού. Στον Πίνακα 5.7 παρατίθενται τα στοιχεία των υπόψη δειγματοληψιών αέρα, ενώ στον Πίνακα 5.8 παρατίθενται τα στοιχεία των υπόψη δειγματοληψιών νερού.

κωδικός φίλτρου	κωδικός φάσματος	ημερομηνία έναρξης δειγμ/ψίας	ώρα έναρξης δειγμ/ψίας	διάρκεια (min)	συγκέντρωση ⁷ Be (mBq/m³)	αβεβαιότητα (%, 1σ)
A0482B	16/1.263	13/02/2013	08:29	231	2.7	8.7
A0483B	16/1.266	13/02/2013	12:22	219	1.6	6.9
A0484B	16/1.268	13/02/2013	16:05	227	2.7	5.2
A0485B	16/2.4	13/02/2013	19:59	240	4.5	4.2

Πίνακας 5.7 Στοιχεία του κύκλου δειγματοληψίας της 13^{ης} Φεβρουαρίου 2013.

α/α	έναρξη	λήξη	πλήθος δειγματοληπτών	τελική ποσότητα νερού (g)
1	17:00	10:00	4	392.0
2	10:00	12:00	4	4226
3	12:00	12:25	3	3674
4	12:25	12:55	3	317.9
5	13:00	13:51	3	3444
6	13:51	15:10	2	3020

Πίνακας 5.8 Στοιχεία δειγματοληψίας νερού βροχής κατά τον κύκλο δειγματοληψίας στις 13 Φεβρουαρίου 2013.

Στο σημείο αυτό πρέπει να σημειωθεί ότι κατά τη διάρκεια της διαδικασίας παρουσιάστηκε διαρροή σε μία από τις λεκάνες δειγματοληψίας, με αποτέλεσμα να χαθεί μέρος του δείγματος 3 και να καταστήσει αδύνατο να μετρηθεί το ύψος της βροχόπτωσης, μέσω του όγκου του νερού που συλλέχθηκε, οπότε γενικότερα για το ύψος της βροχόπτωσης χρησιμοποιήθηκαν ως δεδομένα οι τιμές του αρχείου μετρήσεων από την ιστοσελίδα hoa.ntua.gr (Hydrological Observatory of Athens).

Όλα τα δείγματα που συλλέχθηκαν, εκτός από το πρώτο, επεξεργάστηκαν βάσει της διαδικασίας που υιοθετήθηκε για την επεξεργασία των υγρών ατμοσφαιρικών κατακρημνίσεων και περιγράφεται αναλυτικά στο προηγούμενο κεφάλαιο, οπότε προέκυψαν 5 δείγματα ρητίνης 20 g, τα οποία αναλύθηκαν από τους ανιχνευτές XtRa και HPGe του ΕΠΤ-ΕΜΠ διαδοχικά. Επίσης, συσκευάστηκε δείγμα από το φιλτραρισμένο νερό που προέκυψε από κάθε δείγμα και αναλύθηκε με τεχνικές γ-φασματοσκοπίας, προκειμένου να διαπιστωθεί κατά πόσον υπήρξε ποσότητα 'Be η οποία δεν συγκρατήθηκε στη ρητίνη και κατέληξε στο φιλτραρισμένο νερό. Πρέπει να επισημανθεί ότι στο πρώτο δείγμα βροχής προστέθηκαν μόνο 5g ρητίνης αντί των 20g, λόγω της μικρής διαθέσιμης ποσότητας νερού. Λόγω του μικρού όγκου δείγματος που προέκυψε με τον τρόπο αυτό δεν κατέστη δυνατή η αξιόπιστη βαθμονόμηση απόδοσης της γεωμετρίας του δείγματος και για το λόγο αυτό τα αποτελέσματα της ανάλυσης του πρώτου δείγματος δεν αξιοποιήθηκαν. Αντίθετα, στο τέταρτο δείγμα, παραπλήσιας ποσότητα νερού με το πρώτο, προστέθηκαν 20g ρητίνης και τελικά το δείγμα που σχηματίσθηκε αναλύθηκε κανονικά.

Τα αποτελέσματα της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης των δειγμάτων παρουσιάζονται στον Πίνακα 5.9. Εδώ πρέπει να σημειωθεί ότι παρόλο που οι αβεβαιότητες που συνοδεύουν τις αναλύσεις του ανιχνευτή HPGe είναι πολύ υψηλότερες αυτών του ανιχνευτή XtRa – λόγω και του συστήματος CSS που διαθέτει ο τελευταίος – η μεγάλη ποσότητα δειγμάτων που είχε παραχθεί και έπρεπε να αναλυθούν εκείνη τη χρονική περίοδο δεν άφηνε μεγάλα περιθώρια αναμονής, ώστε όλα τα δείγματα να αναλυθούν στον ανιχνευτή XtRa. Εκτιμάται ότι αν είχε χρησιμοποιηθεί μόνον ο ανιχνευτής XtRa για τις αναλύσεις, η διάρκεια αναλύσεων θα έφτανε τις 40 ημέρες, με συνέπεια τη σημαντική απομείωση του ⁷Be στα δείγματα.

δείγμα	κωδική ονομασία	κωδικός φάσματος	ανιχνευτής	συγκέντρωση ⁷ Be (Bq/L)	αβεβαιότητα (%, 1σ)
2	MS649	16/1.273	XtRa (CSS)	1.11	6.9
3	MS650	16/1.278	HPGe	0.32	19
4	MS651	16/2.29	XtRa (CSS)	2.33	11
5	MS652	16/1.280	XtRa (CSS)	0.36	7.5
6	MS653	16/1.284	HPGe	0.21	23

Πίνακας 5.9 Στοιχεία δειγμάτων ρητίνης που παρασκευάσθηκαν για τα δείγματα νερού βροχής της δειγματοληψίας της 13^{ης} Φεβρουαρίου 2013.

Πρέπει να επισημανθεί ότι η γ-φασματοσκοπική ανάλυση που πραγματοποιήθηκε στα δείγματα φιλτραρισμένου νερού που παράγεται κατά την παρασκευή των δειγμάτων ρητίνης, δεν ανίχνευσε φωτοκορυφή στην περιοχή του ⁷Be, γεγονός που επιβεβαιώνει ότι δεν διέρρευσε κατά τη διαδικασία φιλτραρίσματος σημαντική ποσότητα του ⁷Be, το οποίο μπορεί να θεωρηθεί ότι εξ ολοκλήρου παρέμεινε στη ρητίνη.

Στο Σχήμα 5.15 παρουσιάζεται η συγκέντρωση του ⁷Be στον αέρα και στο νερό της βροχής που μετρήθηκε κατά τη διάρκεια της δειγματοληψίας της 13^{ης} Φεβρουαρίου 2013, καθώς και το μέσο ύψος βροχόπτωσης. Είναι εμφανές ότι κατά τη διάρκεια της βροχόπτωσης η συγκέντρωση του ⁷Be στον αέρα μειώνεται, ενώ μετά το πέρας της βροχόπτωσης αρχίζει σταδιακά να ανακάμπτει και μάλιστα με ταχείς ρυθμούς. Επίσης, τα αποτελέσματα από τις αναλύσεις νερού έδειξαν την αναμενόμενη από τη βιβλιογραφία αρχική μείωση στη συγκέντρωση του ισοτόπου στο νερό της βροχής, η οποία ανακάμπτει κατά τη διάρκεια της ασθενούς βροχόπτωσης η οποία άρχισε περί τις 12:30. Αυτό μπορεί να αποδοθεί σε δύο γεγονότα:

 κατά τη διάρκεια ασθενούς βροχής, οι σταγόνες έχουν μικρότερο μέγεθος και παρουσιάζουν μεγαλύτερο λόγο επιφάνειας/όγκου, και κατά συνέπεια μεγαλύτερη δυνατότητα σάρωσης της ατμόσφαιρας για δεδομένο όγκο βροχής που συλλέγεται, κατά τη διάρκεια ασθενούς βροχής παρουσιάζονται εντονότερα φαινόμενα εξάτμισης, με αποτέλεσμα να μειώνεται ο όγκος της βροχής που συλλέγεται, οδηγώντας σε αύξηση της ειδικής ραδιενέργειας (Bq/L).

Καθώς ο ρυθμός κατακρημνίσεων επανέρχεται σε υψηλά επίπεδα κατά τις 13:20, η συγκέντρωση του ισοτόπου ξαναπέφτει σε χαμηλά επίπεδα και συνεχίζει να μειώνεται μέχρι τις 15:15, όταν και λήφθηκε το τελευταίο δείγμα νερού. Πρέπει πάντως να επισημανθεί ότι παρόλο που έγινε δειγματοληψία βροχής, κατά τα πρώτα λεπτά μετά την έναρξή της, δυστυχώς δεν κατέστη δυνατό να αναλυθεί το δείγμα αυτό, το οποίο πιθανότατα θα παρουσίαζε και υψηλή συγκέντρωση ⁷Be.

Τέλος, έχει ενδιαφέρον να σχολιασθεί το γεγονός ότι η συγκέντρωση του ⁷Be στον αέρα πριν από την βροχόπτωση ήταν ήδη αρκετά χαμηλή, κάτι που μπορεί να αποδοθεί στις βροχοπτώσεις σε γειτονικές περιοχές τις αμέσως προηγούμενες ημέρες και το γεγονός ότι η δειγματοληψία έχει πραγματοποιηθεί σε μία περίοδο κοντά στο μέγιστο το ηλιακού κύκλου.



Σχήμα 5.15 Χρονική εξέλιξη της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα και το νερό της βροχής, καθώς και του ύψους βροχόπτωσης κατά για τις 13 Φεβρουαρίου 2013.

5.4 Μετρήσεις της ημερήσιας μεταβολής της συγκέντρωσης του ⁷Βε υπό συνθήκες χιονόπτωσης

Είναι γνωστό από τη βιβλιογραφία [A. loannidou et al., 2005] ότι το χιόνι έχει μεγαλύτερη δυνατότητα σάρωσης του ατμοσφαιρικού αεροζόλ από τη βροχή, καθώς παρουσιάζει πολύ μεγαλύτερη επιφάνεια. Εκτός από αυτό, τα φαινόμενα χιονόπτωσης συνοδεύονται από διαφορετικές ατμοσφαιρικές συνθήκες σε σχέση με ένα φαινόμενο βροχόπτωσης. Για αυτό το λόγο κρίθηκε σκόπιμο να μελετηθεί ξεχωριστά η ημερήσια μεταβολή της συγκέντρωσης του ⁷Be κατά τη διάρκεια χιονόπτωσης.

Για την 8^η Ιανουαρίου 2013 υπήρχε πρόγνωση για χιονόπτωση στην περιοχή της Αττικής, οπότε αποφασίστηκε να μελετηθεί η κύμανση της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα και στο νερό του χιονιού κατά τη διάρκεια της ημέρας αυτής. Για το σκοπό αυτό χρησιμοποιήθηκαν οι τέσσερις δειγματολήπτες που χρησιμοποιούνται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ, οι οποίοι τοποθετήθηκαν σε θέση ώστε να συλλέξουν το χιόνι που άρχισε να πέφτει τα ξημερώματα της 8ης Ιανουαρίου. Παράλληλα, έγινε προσπάθεια να πραγματοποιηθεί δειγματοληψία αέρα, όμως η χαμηλή θερμοκρασία περιβάλλοντος δεν επέτρεψε στην αντλία αέρα, που για λόγους ασφαλείας δε λειτουργεί υπό πολύ χαμηλές ή πολύ υψηλές θερμοκρασίες, να ξεκινήσει πριν το μεσημέρι, που η περιβάλλοντος είχε ανέβει αισθητά. θερμοκρασία Παρόμοιο πρόβλημα αντιμετωπίστηκε το βράδυ, με αποτέλεσμα να απουσιάζουν και οι νυχτερινές μετρήσεις από τον κύκλο. Τα διαστήματα δειγματοληψίας αέρα και η συγκέντρωση του ισοτόπου όπως υπολογίστηκε παρουσιάζονται στον Πίνακα 5.10.

κωδικός φίλτρου	κωδικός φάσματος	ημερομηνία έναρξης δειγματοληψίας	ώρα έναρξης	Διάρκεια (min)	συγκέντρωση ⁷ Be (mBq/m³)	αβεβαιότητα (%, 1σ)
A0477B	16/1.198	07/01/2013	11:49	240	4.4	5.7
A0478B	16/1.214	07/01/2013	16:05	229	3.3	9.2
A0479B	16/1.252	07/01/2013	20:02	240	5.4	5.9
A0480B	16/1.256	08/01/2013	11:15	240	1.7	8.3
A0481B	16/1.207	08/01/2013	15:19	240	3.3	7.1

Πίνακας 5.10 Στοιχεία δειγματοληψίας αέρα κατά την περίοδο 7 – 8 Ιανουαρίου 2013.

Για το νερό του χιονιού τα αποτελέσματα της μέτρησης της συγκέντρωσης που προέκυψαν παρουσιάζονται στον Πίνακα 5.11, ενώ το ύψος χιονόπτωσης σε ισοδύναμο ύψος βροχόπτωσης όπως αποτυπώθηκε από το HOA παρουσιάζεται στο Σχήμα 5.16.

έναρξη δειγ/ψίας	πέρας δειγ/ψίας	κωδική ονομασία	κωδικός φάσματος	συγκέντρωση ⁷ Be (Bq/L)	αβεβαιότητα (%, 1σ)
07/01/2013 16:30	08/01/2013 09:00	WRC015	16/1.222	0.68	17
08/01/2013 09:20	08/01/2013 13:05	R0064	16/1.195	<lld< td=""><td>-</td></lld<>	-
08/01/2013 13:05	08/01/2013 15:15	R0065	16/1.206	1.2	49

Πίνακας 5.11 Στοιχεία δειγματοληψίας νερού κατά την περίοδο 7 – 8 Ιανουαρίου 2013.



Σχήμα 5.16 Τιμή δεκάλεπτου του ύψους κατακρημνίσεων μετρούμενο σε mm την 8^η Ιανουαρίου 2013 στην περιοχή της Πολυτεχνειούπολης Ζωγράφου, όπως αποτυπώθηκε από το HOA.

Το ύψος χιονόπτωσης, η συγκέντρωση του ισοτόπου στο νερό και στον αέρα για τα διαστήματα στα οποία χωρίστηκε η διαδικασία παρουσιάζεται στο Σχήμα 5.17. Παρατηρείται μια έντονη αύξηση της συγκέντρωσης του ισοτόπου στον αέρα το βράδυ πριν τη χιονόπτωση, όπως επίσης μια έντονη αύξηση μετά το πέρας της χιονόπτωσης. Οι έντονες μεταβολές πιθανότατα εξηγούνται από τον υψηλό ρυθμό ανανέωσης του αέρα κατά τη διάρκεια περιόδου χαμηλής βαρομετρικής πίεσης.



Σχήμα 5.17. Χρονική εξέλιξη της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα και στο νερό του χιονιού (αβεβαιότητα σε επίπεδο 1σ), καθώς και του ύψους χιονόπτωσης σε ισοδύναμα mm βροχόπτωσης κατά τις δειγματοληψίες που πραγματοποιήθηκαν στις 07 και 08 Ιανουαρίου 2013.

5.5 Συμπεράσματα

Από τη μελέτη του κύκλου της συγκέντρωσης του ⁷Be μια καλοκαιρινή ημέρα υπό αίθριο καιρό δεν μπορούν να βγουν ασφαλή συμπεράσματα με τις μετρήσεις που επεξεργάστηκαν στην παρούσα εργασία, καθώς δεν ακολουθούν όλοι οι κύκλοι το ίδιο μοτίβο, πιθανότατα επηρεαζόμενοι από την αστάθεια της ατμόσφαιρα της συγκεκριμένης ημέρας δειγματοληψίας. Η μελέτη του φθινοπωρινού κύκλου υπό αίθριο καιρό έδειξε ότι η συγκέντρωση του ισοτόπου κυμαίνεται σε χαμηλότερα επίπεδα από τα αντίστοιχα θερινά, ενώ επίσης παρουσιάζει ομαλότερες μεταβολές κατά τη διάρκεια της ημέρας, πιθανόν λόγω της μεγαλύτερης ευστάθειας της ατμόσφαιρας.

Η μελέτη του κύκλου που περιλαμβάνει βροχόπτωση ή χιονόπτωση έδειξε ότι η συγκέντρωση του ισοτόπου κατά τη διάρκεια του γεγονότος υγρής κατακρήμνισης παρουσιάζει μείωση στον αέρα, αποτέλεσμα της σάρωσης των αερολυμάτων από τις σταγόνες και τις νιφάδες, ενώ αρχίζει να ανακάμπτει μετά το πέρας της βροχόπτωσης ή της χιονόπτωσης, αντίστοιχα. Πρέπει πάντως να σημειωθεί ότι σημαντική μείωση της συγκέντρωσης στον αέρα μπορεί να παρατηρείται και κατά την περίοδο πριν από την έναρξη της βροχόπτωσης, η οποία μπορεί να οφείλεται σε μεταφορά αερίων μαζών από γειτονικές περιοχές που έχει ήδη βρέξει ή και άλλους λόγους.

Μείωση κατά τη διάρκεια της βροχόπτωσης παρουσιάζει και η συγκέντρωση του ισοτόπου στο νερό, γεγονός που πρέπει να αποδίδεται στην απομάκρυνση του ⁷Be από την ατμόσφαιρα. Αυτό που παρουσιάζει ιδιαίτερο ενδιαφέρον είναι ότι σε διαστήματα ασθενούς βροχόπτωσης, η έντονη εξάτμιση σε συνδυασμό με το μεγαλύτερο λόγο επιφάνειας/όγκου της σταγόνας, έχει ως αποτέλεσμα την αύξηση της συγκέντρωσης του ισοτόπου το στο νερό της βροχής που συλλέγεται.

Όπως προκύπτει από τα παραπάνω, κατά τη διερεύνηση των νόμων που διέπουν τη μεταβολή της συγκέντρωσης του ισοτόπου ⁷Be και γενικότερα των συνιστωσών του ατμοσφαιρικού αεροζόλ στον αέρα και στις υγρές κατακρημνίσεις στην ατμόσφαιρα, η πολυπλοκότητα των φαινομένων τα οποία εμπλέκονται και των διαφόρων παραμέτρων που επιδρούν, απαιτεί όχι μόνον εφαρμογή μετρητικών τεχνικών υψηλής ακρίβειας, αλλά και μεγάλο όγκο μετρήσεων, υπό όσο το δυνατόν καλύτερα καθορισμένες πειραματικές συνθήκες.

Κεφάλαιο 6: Επίλογος

6.1 Συμπεράσματα και μελλοντικά βήματα

Στο παρόν κεφάλαιο γίνεται μια σύνοψη της παρούσας Διπλωματικής Εργασίας, με επίκεντρο τα βασικά συμπεράσματα που προκύπτουν. Σχολιάζεται η μεθοδολογία που ακολουθήθηκε και τα επιμέρους συμπεράσματα που προέκυψαν από αυτή, με γνώμονα την εκπλήρωση ή μη των αρχικών στόχων. Τέλος, διατυπώνονται σκέψεις και προτάσεις για μελλοντικές εργασίες.

Στο πλαίσιο της παρούσας εργασίας πραγματοποιήθηκε προσπάθεια συσχέτισης της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα με τον ηλιακό κύκλο, μέσω της σύγκρισης της συγκέντρωσης του ισοτόπου με τον μέσο αριθμό ηλιακών κηλίδων του εκάστοτε ημερολογιακού μήνα. Για τον έλεγχο συσχέτισης μεταξύ της συγκέντρωσης του ⁷Be και του αριθμού των ηλιακών κηλίδων χρησιμοποιήθηκαν δεδομένα που δεν ήταν κατανεμημένα ομοιόμορφα καθ' όλη τη διάρκεια του έτους, ώστε να υπολογιστούν οι μέσες ετήσιες τιμές της συγκέντρωσης του ⁷Be για αυτήν την περίοδο. Τελικά, για να εξαλειφθεί ο παράγοντας της εποχιακής διακύμανσης κρίθηκε σκόπιμο να ελεγχθεί η συσχέτιση σε συγκεκριμένα εποχιακά πλαίσια. Η αναμενόμενη αρνητική συσχέτιση επαληθεύεται για το σύνολο των μεμονωμένων μετρήσεων και για τις μέσες μηνιαίες τιμές των καλοκαιρινών μηνών, ενώ βρίσκεται στην περιοχή αβεβαιότητας για τις μεμονωμένες μετρήσεις χωριστά καλοκαιρινής και χειμερινής περιόδου. Η αβεβαιότητα στη συσχέτιση για τη χειμερινή περίοδο μπορεί να οφείλεται στην ευστάθεια της ατμόσφαιρας την περίοδο αυτή, που έχει ως αποτέλεσμα μειωμένη κατακόρυφη μεταφορά και μικρότερο ρυθμό εμπλουτισμού του αέρα στο επίπεδο του εδάφους με αέριες μάζες στρατοσφαιρικής προέλευσης, οι οποίες είναι πλούσιες σε ⁷Be και στην επίδραση των μετεωρολογικών συνθηκών. κυρίως της βροχής στη συγκέντρωση του ⁷Be στην κατώτερη ατμόσφαιρα.

Η προσπάθεια συσχέτισης της συγκέντρωσης του ισοτόπου με τη συγκέντρωση του όζοντος έδειξε ότι στο κέντρο της πόλης δεν υπάρχει συσχέτιση μεταξύ των δύο συστατικών, γεγονός που υποδεικνύει ότι στο κέντρο της πόλης κυριαρχεί η παραγωγή του όζοντος λόγω του φωτοχημικού φαινομένου. Από τον έλεγχο συσχέτισης του ισοτόπου με το όζον στα όρια της πόλης δεν μπορούν να εξαχθούν ασφαλή συμπεράσματα. Εδώ θα πρέπει να σημειωθεί, ότι το όζον είναι μια

96

ένωση που λόγω των διαθέσιμων άλλων ενώσεων στην κατώτερη τροπόσφαιρα έχει ένα χρόνο ημιζωής της τάξης της μισής ώρας. Ενδεχομένως ο στατιστικός έλεγχος της συσχέτισης των δύο συστατικών να μπορέσει να δώσει διαφορετικά αποτελέσματα αν η συσχέτιση ελεγχθεί σε στενότερα χρονικά πλαίσια.

Με στόχο τη βελτίωση της ακολουθούμενης μεθοδολογίας για την επεξεργασία δειγμάτων υγρών κατακρημνίσεων, στο πλαίσιο της παρούσας εργασίας αναπτύχθηκε πρωτόκολλο επεξεργασίας συλλεχθέντος δείγματος το οποίο να μην είναι χρονοβόρο και να οδηγεί στον προσδιορισμό της συγκέντρωσης του 'Be με επαρκή ακρίβεια (<10%, 1σ). Αρχικά, μελετήθηκε η μέθοδος μερικής εξάτμισης μέχρι τελικού όγκου που να πληρώνει πλαστικό δοχείο τυποποιημένης γεωμετρίας όγκου, καθώς και πλήρους εξάτμισης μέχρι το σχηματισμό επιφανειακής πηγής, οι οποίες όμως αποδείχθηκε ότι ήταν ιδιαίτερα χρονοβόρες και τα αποτελέσματά τους δεν προσέγγιζαν τα επιθυμητά επίπεδα αβεβαιότητας. Στη συνέχεια, εξετάστηκε και τελικά υιοθετήθηκε μεθοδολογία που περιλαμβάνει τη χρήση ρητίνης κατιόντων με στόχο την «παγίδευση» του 'Be στα μόρια της ρητίνης και τον εν συνεχεία προσδιορισμό της συγκέντρωσης του ⁷Be μέσω γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης της ρητίνης. Η μέθοδος απαιτεί πολύ μικρότερη προετοιμασία σε σύγκριση με τις προαναφερθείσες, δεν υπάρχουν αμφιβολίες για την ομοιομορφία του δείγματος και δίνει πολύ καλύτερα επίπεδα αβεβαιότητας κατά τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης ενδιαφέροντος, τα οποία βρίσκονται και εντός των επιθυμητών ορίων (<10%,1σ).

Τέλος, μελετήθηκε η χρονική εξάρτηση της συγκέντρωσης του ⁷Be κατά τη διάρκεια μια ημέρας τόσο με αίθριο καιρό όσο και με περιστατικά κατακρημνίσεων. Από τη μελέτη του κύκλου της συγκέντρωσης του ⁷Be μια καλοκαιρινή ημέρα υπό αίθριο καιρό δεν μπορούν να βγουν ασφαλή συμπεράσματα με τις μετρήσεις που επεξεργάστηκαν στην παρούσα εργασία, καθώς δεν ακολουθούν όλοι οι κύκλοι το ίδιο μοτίβο, πιθανότατα επηρεαζόμενοι από την αστάθεια της ατμόσφαιρα της συγκεκριμένης ημέρας δειγματοληψίας. Η μελέτη του φθινοπωρινού κύκλου υπό αίθριο καιρό έδειξε ότι η συγκέντρωση του ισοτόπου κυμαίνεται σε χαμηλότερα επίπεδα από τα αντίστοιχα θερινά, ενώ επίσης παρουσιάζει ομαλότερες μεταβολές κατά τη διάρκεια της ημέρας, πιθανόν λόγω της μεγαλύτερης ευστάθειας της ατμόσφαιρας.

Η μελέτη του κύκλου που περιλαμβάνει βροχόπτωση ή χιονόπτωση έδειξε ότι η συγκέντρωση του ισοτόπου κατά τη διάρκεια του γεγονότος υγρής κατακρήμνισης παρουσιάζει μείωση στον αέρα, αποτέλεσμα της σάρωσης των αερολυμάτων από τις σταγόνες και τις νιφάδες, ενώ αρχίζει να ανακάμπτει μετά το πέρας της βροχόπτωσης ή της χιονόπτωσης, αντίστοιχα. Πρέπει πάντως να σημειωθεί ότι σημαντική μείωση της συγκέντρωσης στον αέρα μπορεί να παρατηρείται και κατά την περίοδο πριν από την έναρξη της βροχόπτωσης, η οποία μπορεί να οφείλεται σε μεταφορά αερίων μαζών από γειτονικές περιοχές που έχει ήδη βρέξει ή και άλλους λόγους.

Μείωση κατά τη διάρκεια της βροχόπτωσης παρουσιάζει και η συγκέντρωση του ισοτόπου στο νερό, γεγονός που πρέπει να αποδίδεται στην απομάκρυνση του ⁷Be από την ατμόσφαιρα. Αυτό που παρουσιάζει ιδιαίτερο ενδιαφέρον είναι ότι σε διαστήματα ασθενούς βροχόπτωσης, η έντονη εξάτμιση σε συνδυασμό με το μεγαλύτερο λόγο επιφάνειας/όγκου της σταγόνας, έχει ως αποτέλεσμα την αύξηση της συγκέντρωσης του ισοτόπου το στο νερό της βροχής που συλλέγεται.

Ανακεφαλαιώνοντας, η παρούσα Δ.Ε. οδήγησε σε βελτίωση της μεθοδολογίας επεξεργασίας και ανάλυσης δειγμάτων υγρών κατακρημνίσεων με στόχο τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης του ⁷Be στο βρόχινο νερό που γίνονται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ. Η μεθοδολογία που προτάθηκε αυξάνει την ποιότητα των μετρήσεων σε δείγματα βροχής ή χιονιού και οδηγεί σε επίπεδα ακρίβειας αντίστοιχα των μετρήσεων στον ατμοσφαιρικό αέρα. Η μεθοδολογία αυτή θα μπορούσε να εφαρμοστεί στο μέλλον με σκοπό την περαιτέρω διερεύνηση των νόμων που επηρεάζουν τη συγκέντρωση του ισοτόπου ⁷Be στις υγρές κατακρημνίσεις, καθώς και της πολυπλοκότητας των φαινομένων που εμπλέκονται στο ρυθμό απόθεσής του.

- Βασιλοπούλου Θ.: Προσδιορισμός Συντελεστών Διόρθωσης Απόδοσης Ανιχνευτή HPGe Λόγω Του Φαινομένου της Πραγματικής Σύμπτωσης μέσω Προσομοίωσης Monte Carlo, Διπλωματική Εργασία, Τμήμα Μηχανολόγων Μηχανικών Ε.Μ.Π., Αθήνα 2008
- Παπανδρέου Σ.: Προσδιορισμός του Ισοτόπου Κοσμικής Προέλευσης Be-7 στο ατμοσφαιρικό αεροζόλ, Διπλωματική Εργασία, Τμήμα Μηχανολόγων Μηχανικών Ε.Μ.Π., Αθήνα 2009
- Ρούνη. Π.: Ανίχνευση Ιχνοστοιχείων σε Δείγματα Περιβαλλοντικής Σημασίας με χρήση Μεθόδων Πυρηνικής Τεχνολογίας, Διδακτορική Διατριβή, Τμήμα Μηχανολόγων Μηχανικών Ε.Μ.Π., Αθήνα 2008
- 4. Σάββα Μ.: Βαθμονόμηση Ανιχνευτικής Διάταξης Γερμανίου για τον Προσδιορισμό του Ισοτόπου ⁷Be στα Ατμοσφαιρικά Αερολύματα με χρήση Τεχνικών Προσομοίωσης Monte Carlo, Διπλωματική Εργασία, Τμήμα Μηχανολόγων Μηχανικών ΕΜΠ, Αθήνα 2009
- 5. ΥΠΕΚΑ: ΕΤΗΣΙΑ ΕΚΘΕΣΗ ΑΤΜΟΣΦΑΙΡΙΚΗΣ ΡΥΠΑΝΣΗΣ 2011 (Απρίλιος 2012)
- 6. Jelena Ajtić, Dragana Todorović, Anka Filipović, Jelena Nikolić: Ground Level Air Beryllium-7 and Ozone in Belgrade (2008)
- M. Azahra, A. Camacho-García, C. González-Gómez, J.J. López-Peñalver, T. El Bardouni: Seasonal ⁷Be concentrations in near-surface air of Granada (Spain) in the period 1993–2001, Applied Radiation and Isotopes 59 (2003) 159–164
- 8. S. Bravo and G. A. Stewart: The correlation between sunspot and coronal hole cycles and a forecast of the maximum sunspot cycle 23, Instituto de Geofísica, Universidad Nacional Autónoma de México, Coyoacán, D.F., 04510, México (1996)
- Cannizzaro F, Greco G, Raneli M, Spitale MC, Tomarchio E.: Concentration measurements of ⁷Be at ground level air at Palermo, Italy-comparison with solar activity over a period of 21 years, Journal of Environmental Radioactivity 72 (2004) 259–271
- 10. Chih-An Huh: Dependence of the decay rate of ⁷Be on chemical forms, Earth and Planetary Science Letters 171 (1999) 325–328
- H.W. Feely , R.J. Larsen, C.G. Sanderson: Factors that Cause Seasonal Variations in Be-7 Concentrations in Surface air (1988), Journal of Environmental Radioactivity 9, (1989) 223-249
- H. Hötzl, G. Rosner and R. Winkler: Correlation of ⁷Be Concentrations in Surface Air and Precipitation with the Solar Cycle, Naturwissenschaften 78, (1991), 215-217

- 13. A. Ioannidou, C. Papastefanou: Precipitation scavenging of 7Be and 137Cs radionuclides in air, Journal of Environmental Radioactivity 85, (2006) 121-136
- 14. Karl Irlweck, Karin Hinterdorfer, Viktor Karg: Beryllium-7 and Ozone Correlations in Surface Atmosphere, Naturwissenschaften 84, (1997) 353–356
- 15. Yoichi Ishikawa, Hiroshi Murakami, Tsutomu Sekine, Kenji Yoshihara: Precipitation Scavenging Studies of Radionuclides in Air Using Cosmogenic ⁷Be, Journal of Environmental Radioactivity 26, (1995) 19-36
- Matthias H.A. Jungck, Jean-Louis Andrey, Pascal Froidevaux: Determination of radionuclide levels in rainwater using ion exchange resin and γ-spectrometry, Journal of Environmental Radioactivity 100(4), (2009) 361-365
- 17. Komura, K., Kuwahara, Y., Abe, T., Tanaka, K., Murata, Y., Inoue, M.: Measurements of short-lived cosmic-ray-produced radionuclides in rainwater., Journal of Environmental Radioactivity 96, (2007) 103–109
- 18. Kulan A.: Seasonal ⁷Be and ¹³⁷Cs activities in surface air before and after the Chernobyl event (PMID: 16876295) (2006)
- D. Lal, P. K. Malhotra and B. Peters: On the production of radioisotopes in the atmosphere by cosmic radiation and their application to meteorology, Journal of Atmospheric and Terrestrial Physics, 1958, Vol. 12, pp. 306 to 328. Pergamon Press Ltd., London
- 20. D.J. McComas, S.J. Bame, P. Barker, W.C. Feldman, J.L. Phillips, P. Riley Space and Atmospheric Sciences Group Los Alamos National Laboratory Los Alamos, J.W. Griffee: Solar Wind Electron Proton Alpha Monitor (SWEPAM) for the Advanced Composition Explorer, 1997 (Space Science Reviews Special Issue on the ACE Mission 14 April 1997)
- 21. R. A. Mewaldt: Cosmic Rays, Macmillan Encyclopedia of Physics, (1996)
- 22. T. Ohtsuki, K. Ohno, T. Morisato and K. Hirose: Lifetime Measurement of ⁷Be in Beryllium Metal Crystal, Materials Transactions, Vol. 48, No. 4 (2007) pp. 646 to 648 Special Issue on ACCMS Working Group Meeting on Clusters and Nanomaterials 2007 Society of Nano Science and Technology
- 23. Salvatore Rizzo, Elio Tomarchio and Giuseppe Vella: Environmental radioactivity measurements in the mediterranean area, PSP Volume 19 No 10b. 2010 Fresenius Environmental Bulletin
- 24. D.F. Smart, M.A. Shea and E.O. Flückiger, A.J. Tylka and P.R. Boberg: Calculated Vertical Cutoff Rigidities for the International Space Station During Magnetically Active Times, 26th International Cosmic Ray Conference (ICRC 1999),17-25 Aug 1999, Salt Lake City, Utah, USA.
- 25. Todor Stanev: Ultra High Energy Cosmic Rays SLAC Summer Institute on Particle Physics (SSI04), Aug. 2-13, 2004
- 26. A. Stohl, N. Spichtinger-Rakowsky, P. Bonasoni, H. Feldmann, M. Memmesheimer, H.E. Scheel, T. Trickl, S. Hübener, W. Ringer, M. Mandl: The

influence of stratospheric intrusions on alpine ozone concentrations Atmospheric Environment 34 (2000) 1323-1354

- 27. Hiroyuki Takasaki, Ayumi Asai, Junko Kiyohara, Masumi Shimojo, Toshio Terasawa, Yasuhiro Takei and Kazunari Shibata: A quantitative study of the homologous flares on 2000 November 24. The Astrophysical Journal, 613:592–599, 2004.
- 28. B. Veenadhari, Sandeep Kumar, S. Tulasi Ram, Rajesh Singh & S. Alex: Corotating interaction region (CIR) induced magnetic storms during solar minimum and their effects on low-latitude geomagnetic field and ionosphere, Indian Journal of Radio & Space Physics, Vol 41, April 2012, pp 306-315
- 29. I. S. Veselovsky, A. V. Dmitriev, A. V. Suvorova & M. V. Tarsina: Solar Wind Variation with the Cycle J. Astrophys. Astr. (2000) 21, 423–429
- 30. Wogman, N.A., Thomas, C.W., Cooper, J.A., Engelmann, R.J.: Cosmic ray produced radionuclides as tracers of atmospheric precipitation processes. Science 159, (1968) 189-192.
- 31. M. Yoshimori: Production and behavior of beryllium 7 radionuclide in the upper atmosphere, Advances in Space Research 36 (2005) 922–926
- 32. http://hoa.ntua.gr/
- 33. <u>http://geodata.gov.gr/geodata/</u>
- 34. http://sohowww.nascom.nasa.gov/home.html
- 35. <u>http://spaceweather.com/</u>
- 36. <u>http://www.canberra.com</u>
- 37. http://www.fjspecialty.com/airsamp/it100006.htm
- 38. <u>http://www.radprocalculator.com/RadDecay.aspx</u>
- 39. http://www.swpc.noaa.gov/

Παράρτημα Α

δε	γματοληψία	x	κω	δικός	συγκέντρωση	αβεβαιότητα
ημερομηνία	ώρα έναρξης	διάρκεια (min)	φίλτρου	φάσματος	⁷ Be (mBq/m ³)	(%, 1σ)
14/01/2008	08:43	364	A0278	14/5.193	3.2	22
04/02/2008	09:17	240	A0279	14/5.205	8.0	13
17/03/2008	08:50	230	A0280	14/5.217	5.4	6.8
23/03/2008	08:23	238	A0282	11/2.100	5.3	6.8
31/03/2008	08:45	360	A0284	14/5.223	7.5	4.0
02/04/2008	12:50	240	A0287	14/5.226	11.2	5.2
02/04/2008	08:35	245	A0286	11/2.101	8.2	4.0
03/04/2008	09:55	326	A0288	14/5.227	6.5	6.1
14/04/2008	08:34	442	A0289	14/5.229	5.7	4.2
21/04/2008	09:00	371	A0290	14/5.231	9.4	3.3
05/05/2008	08:35	445	A0291	14/5.233	4.7	5.0
12/05/2008	08:35	407	A0292	14/5.238	5.0	4.8
19/05/2008	08:44	427	A0293	14/5.241	6.8	3.8
26/05/2008	09:00	466	A0294	14/5.245	6.0	3.7
02/06/2008	12:10	246	A0295	14/5.251	9.0	5.9
18/06/2008	09:30	339	A0297	14/5.258	9.6	2.9
24/06/2008	09:45	337	A0298	14/5.267	6.7	4.7
30/06/2008	09:10	338	A0299	14/5.270	8.2	3.9
04/06/2008	20:00	812	A0296	14/5.260	9.0	3.3
07/07/2008	13:45	244	A0300	14/5.273	8.8	6.4
14/07/2008	08:40	399	A0301	14/5.276	5.9	4.9
17/07/2008	08:20	240	A0302	14/5.285	5.0	5.9
18/07/2008	09:00	240	A0308	14/5.297	4.9	4.3
20/08/2008	09:20	240	A0309	14/5.298	11.0	3.7
01/09/2008	09:50	258	A0310	14/6.5	5.8	5.5
08/09/2008	09:20	241	A0311	14/6.7	10.2	4.0
15/09/2008	08:05	251	A0312	14/6.9	11.3	3.7
22/09/2008	08:43	248	A0313	14/6.12	2.0	10
29/09/2008	08:17	250	A0314	14/6.14	2.2	9.9
06/10/2008	08:40	241	A0315	14/6.15	4.0	5.9
09/10/2008	08:40	241	A0316	14/6.17	4.4	4.2
16/10/2008	08:25	343	A0317	14/6.20	6.6	5.3
20/10/2008	08:50	240	A0318	14/6.23	5.4	7.9
03/11/2008	08:20	240	A0319	14/6.26	7.9	5.8
10/11/2008	09:00	242	A0320	14/6.31	8.3	7.5
18/11/2008	08:40	240	A0321	14/6.34	1.0	28
24/11/2008	08:55	240	A0322	14/6.40	1.3	16
01/12/2008	08:05	240	A0323	14/6.42	7.0	8.0
08/12/2008	08:35	247	A0324	14/6.72	3.6	15

16/12/2008	10:43	248	A0325	14/6.45	6.0	3.8
05/01/2009	09:35	240	A0326	14/6.47	2.3	13
13/01/2009	11:20	240	A0327	14/6.49	7.9	7.0
19/01/2009	08:37	340	A0328	14/6.51	6.0	7.5
26/01/2009	09:11	241	A0329	14/6.55	1.0	35
02/02/2009	10:01	240	A0330	14/6.62	3.3	12
09/02/2009	08:29	251	A0331	14/6.65	2.3	20
19/02/2009	09:35	243	A0332	14/6.78	8.7	5.9
27/02/2009	10:40	240	A0333	14/6.89	4.1	9.5
05/03/2009	10:07	258	A0334	14/6.87	6.3	8.9
06/03/2009	10:57	325	A0335	14/6.91	4.2	10
09/03/2009	08:15	240	A0336	14/6.94	1.9	25
16/03/2009	08:45	240	A0337	14/6.98	3.4	12
23/03/2009	10:10	242	A0338	14/6.101	2.7	23
30/03/2009	09:04	240	A0339	14/6.105	5.7	11
08/04/2009	08:33	322	A0340	14/6.114	8.3	6.5
13/04/2009	10:05	240	A0341	14/6.133	10.5	9.9
14/04/2009	10:47	240	A0347	14/6.132	2.6	12
15/04/2009	08:30	240	A0350	14/6.150	1.8	45
22/04/2009	09:03	251	A0352	14/6.163	4.7	9.5
26/05/2009	10:42	182	A0353	14/6.152	11.4	7.5
17/06/2009	10:42	240	A0354	14/6.157	10.7	7.3
22/06/2009	09:52	244	A0355	14/6.161	9.0	7.8
30/06/2009	09:13	240	A0356	14/6.165	5.5	12
02/07/2009	08:10	241	A0357	14/6.173	8.6	3.9
03/07/2009	08:30	240	A0363	14/6.182	9.3	6.8
06/07/2009	08:41	240	A0364	14/6.175	7.1	9.6
20/07/2009	08:40	240	A0365	14/6.185	8.3	7.5
24/08/2009	09:58	240	A0366	14/6.198	6.5	9.6
31/08/2009	08:50	311	A0367	14/6.208	10.4	9.2
15/09/2009	08:42	240	A0368	14/6.214	8.7	7.2
23/09/2009	08:37	241	A0369	14/6.218	8.0	4
30/09/2009	08:35	375	A0370	14/6.221	9.3	5.0
06/10/2009	09:35	268	A0371	14/6.223	2.5	15
13/10/2009	09:45	240	A0372	14/6.227	5.6	8.4
19/10/2009	08:46	242	A0373	14/6.229	8.4	7.8
29/10/2009	09:08	240	A0374	14/6.240	4.0	16
04/11/2009	09:20	240	A0375	14/6.244	2.7	11
09/11/2009	09:00	240	A0376	14/6.248	6.7	4.1
16/11/2009	09:06	240	A0377	14/6.250	4.7	9.1
24/11/2009	08:34	240	A0378	14/6.255	13.5	4.3
30/11/2009	09:11	241	A0379	14/6.257	6.1	11
02/12/2009	08:20	720	A0380	14/6.258	5.4	1.6
08/12/2009	11:15	239	A0381	14/6.267	3.3	6.4

29/12/2009	09:28	243	A0382	14/6.272	5.9	7.3
07/01/2010	08:34	241	A0383	14/6.276	8.3	2.9
11/01/2010	08:47	240	A0384	14/6.279	2.8	14
21/01/2010	11:00	239	A0385	14/6.281	3.3	7.4
29/01/2010	09:06	240	A0386	14/6.284	2.0	16
05/02/2010	10:10	237	A0387	14/6.288	4.1	8.7
11/02/2010	08:33	240	A0388	14/6.291	3.8	6.1
16/02/2010	08:12	240	A0389	14/6.293	1.3	28
23/02/2010	08:34	240	A0391	14/6.294	5.5	4.1
03/03/2010	08:08	240	A0392	16/0.14	5.1	3.3
15/03/2010	09:05	240	A0393	14/6.297	2.3	11.3
23/03/2010	10:15	240	A0394	14/6.300	6.5	6.4
29/03/2010	09:04	243	A0395	14/7.3	4.6	7.9
08/04/2010	09:14	288	A0396	14/7.6	6.3	4.2
13/04/2010	08:21	260	A0397	14/7.8	3.1	11.6
19/04/2010	08:36	243	A0398	14/7.12	5.2	4.4
26/04/2010	08:35	244	A0399	14/7.15	8.6	4.5
16/03/2011	11:36	345	A0409	16/0.185	6.8	4.7
23/03/2011	09:45	369	A0410	12/1.147	4.5	5.6
24/03/2011	08:30	360	A0411	11/3.178	5.2	3.6
25/03/2011	08:39	340	A0412	11/3.181	4.1	9.5
25/03/2011	14:25	366	A0413	12/1.164	5.4	5.4
25/03/2011	20:36	714	A0414	12/1.198	5.8	3.6
26/03/2011	10:33	387	A0415	11/3.183	6.4	3.6
26/03/2011	18:04	836	A0416	12/1.208	4.4	4.1
27/03/2011	09:05	604	A0417	12/1.219	4.6	3.1
27/03/2011	19:32	720	A0418	12/1.221	5.3	3.4
28/03/2011	09:35	463	A0419	12/1.223	5.0	3.7
28/03/2011	19:15	721	A0420	12/1.225	4.9	4.7
29/03/2011	09:30	466	A0421	11/3.185	5.4	3.7
29/03/2011	19:15	720	A0422	14/7.62	5.7	3.5
30/03/2011	09:05	495	A0423	12/1.230	6.3	3.1
30/03/2011	19:20	736	A0424	12/1.232	6.9	3.0
31/03/2011	08:45	511	A0425	12/1.234	4.8	3.5
31/03/2011	19:09	720	A0426	11/3.187	5.6	2.2
01/04/2011	18:50	719	A0427	12/1.238	0.6	10.6
02/04/2011	10:48	720	A0428	11/3.189	1.5	4.9
03/04/2011	16:35	720	A0429	12/1.242	3.1	3.0
04/04/2011	17:40	720	A0430	11/3.191	4.8	2.6
05/04/2011	15:20	720	A0431	11/3.193	4.0	2.6
06/04/2011	18:35	720	A0432	12/1.244	2.5	3.7
07/04/2011	18:13	720	A0433	11/3.195	6.7	1.5
08/04/2011	18:12	720	A0434	12/1.246	6.8	1.9
09/04/2011	20:00	720	A0435	11/3.197	7.8	1.8
10/04/2011	15:23	720	A0436	11/3.199	7.0	1.8

11/04/2011	17:50	720	A0437	11/3.201	5.9	1.9
12/04/2011	15:30	720	A0438	11/3.206	8.3	1.5
13/04/2011	17:08	720	A0439	11/3.212	5.9	1.9
14/04/2011	19:30	720	A0440	11/3.214	4.8	2.2
15/04/2011	16:45	720	A0441	12/1.250	6.2	2.1
16/04/2011	17:23	720	A0442	12/1.252	3.8	2.9
17/04/2011	13:40	720	A0443	12/1.254	1.5	4.9
18/04/2011	17:09	720	A0444	12/1.257	1.0	6.8
19/04/2011	17:00	720	A0445	12/1.259	3.6	2.7
20/04/2011	18:40	720	A0446	11/3.216	9.1	0.67
27/04/2011	18:50	720	A0447	12/1.261	4.5	1.3
26/07/2011	12:30	720	A0449	11/3.218	6.7	0.72
12/09/2011	14:20	720	A0450	16/1.25	4.4	2.1
12/11/2011	19:45	720	A0451	11/3.223	2.0	2.8
14/11/2011	15:00	720	A0452	16/1.43	2.3	2.8
20/12/2011	18:10	720	A0453	16/1.47	2.8	3.0
08/02/2012	12:00	1440	A0454	11/3.230	0.75	3.6
28/06/2012	08:13	242	A0456	16/1.119	7.8	3.6
29/06/2012	07:56	236	A0462	16/1.146	7.2	4.2
20/07/2012	08:00	237	A0463	16/1.148	5.6	2.7
21/07/2012	08:04	240	A0469	16/1.156	7.4	2.7
05/10/2012	09:27	179	A0470	11/4.107	6.0	2.4
06/10/2012	08:06	240	A0476	16/1.169	6.3	3.3
07/01/2013	11:49	240	A0477	16/1.198	4.4	5.7
08/01/2013	11:15	240	A0480	16/1.256	1.7	8.3
13/02/2013	08:29	231	A0482	16/1.263	2.7	8.6
19/02/2013	14:55	4207	A0486	16/1.277	2.5	0.66
22/02/2013	13:14	4320	A0487	16/1.283	3.8	0.48

Πίνακας Π1 Το σύνολο των μετρήσεων ⁷Βε από τον 01/2008 έως τον 02/2013, οι οποίες χρησιμοποιήθηκαν για τον έλεγχο συσχέτισης μεταξύ συγκέντρωσης του ⁷Βε και του πλήθους των ηλιακών κηλίδων. Έχουν εξαιρεθεί οι μετρήσεις των 24ώρων κύκλων πλην της πρώτης και της τελευταίας. Οι μετρήσεις που ξεκίνησαν και τελείωσαν εντός του διαστήματος 09:00-13:00 χρησιμοποιήθηκαν και για τον έλεγχο συσχέτισης μεταξύ των συγκεντρώσεων του ⁷Βε με το όζον.