

ΕΘΝΙΚΟ ΜΕΤΣΟΒΙΟ ΠΟΛΥΤΕΧΝΕΙΟ ΣΧΟΛΗ ΕΦΑΡΜΟΣΜΕΝΩΝ ΜΑΘΗΜΑΤΙΚΩΝ ΚΑΙ ΦΥΣΙΚΩΝ ΕΠΙΣΤΗΜΩΝ

ΕΚΤΙΜΗΣΗ ΚΑΙ ΧΩΡΟΧΡΟΝΙΚΗ ΔΙΑΣΠΟΡΑ ΡΑΔΙΟΝΟΥΚΛΙΔΙΩΝ ΣΤΟ ΥΔΑΤΙΝΟ ΠΕΡΙΒΑΛΛΟΝ

ΔΙΔΑΚΤΟΡΙΚΗ ΔΙΑΤΡΙΒΗ

ΓΙΩΡΓΟΣ Δ. ΕΛΕΥΘΕΡΙΟΥ

Διπλωματούχος Σχολής Εφαρμοσμένων Μαθηματικών και Φυσικών Επιστημών Ε.Μ.Π. Μεταπτυχιακό Δίπλωμα Ειδίκευσης Φυσική και Τεχνολογικές Εφαρμογές Ε.Μ.Π.

ΕΠΙΒΛΕΠΟΥΣΑ

Ρ. ΒΛΑΣΤΟΥ-ΖΑΝΝΗ Καθηγήτρια Ε.Μ.Π.

ΑΘΗΝΑ, Ιούλιος 2014



ΕΘΝΙΚΟ ΜΕΤΣΟΒΙΟ ΠΟΛΥΤΕΧΝΕΙΟ ΣΧΟΛΗ ΕΦΑΡΜΟΣΜΕΝΩΝ ΜΑΘΗΜΑΤΙΚΩΝ ΚΑΙ ΦΥΣΙΚΩΝ ΕΠΙΣΤΗΜΩΝ ΤΟΜΕΑΣ ΦΥΣΙΚΗΣ

ΕΚΤΙΜΗΣΗ ΚΑΙ ΧΩΡΟΧΡΟΝΙΚΗ ΔΙΑΣΠΟΡΑ ΡΑΔΙΟΝΟΥΚΛΙΔΙΩΝ ΣΤΟ ΥΔΑΤΙΝΟ ΠΕΡΙΒΑΛΛΟΝ

ΔΙΔΑΚΤΟΡΙΚΗ ΔΙΑΤΡΙΒΗ

ΓΙΩΡΓΟΣ Δ. ΕΛΕΥΘΕΡΙΟΥ

Διπλωματούχος Σχολής Εφαρμοσμένων Μαθηματικών και Φυσικών Επιστημών Ε.Μ.Π. Μεταπτυχιακό Δίπλωμα Ειδίκευσης Φυσική και Τεχνολογικές Εφαρμογές Ε.Μ.Π.

ΤΡΙΜΕΛΗΣ ΣΥΜΒΟΥΛΕΥΤΙΚΗ ΕΠΙΤΡΟΠΗ

1. Ρ. ΒΛΑΣΤΟΥ-ΖΑΝΝΗ, Καθηγήτρια Ε.Μ.Π. (Επιβλέπουσα)

- 2. Χ. ΤΣΑΜΠΑΡΗΣ, Ερευνητής ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε.
- 3. Μ. ΚΟΚΚΟΡΗΣ, Αναπληρωτής Καθηγητής Ε.Μ.Π.

ΕΠΤΑΜΕΛΗΣ ΕΞΕΤΑΣ.ΤΙΚΗ ΕΠΙΤΡΟΠΗ

- 1. Ρ. ΒΛΑΣΤΟΥ-ΖΑΝΝΗ, Καθηγήτρια Τομέα Φυσικής Ε.Μ.Π. (Επιβλέπουσα)
- 2. Χ. ΤΣΑΜΠΑΡΗΣ, Ερευνητής Β' Ινστιτούτου Ωκεανογραφίας ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε.
- 3. Μ. ΚΟΚΚΟΡΗΣ, Αναπληρωτής Καθηγητής Τομέα Φυσικής Ε.Μ.Π.
- 4. Κ. ΠΑΠΑΔΟΠΟΥΛΟΣ, Αναπληρωτής Καθηγητής Τομέα Φυσικής Ε.Μ.Π.
- 5. Δ. ΓΕΩΡΓΟΠΟΥΛΟΣ, Ερευνητής Α' Ινστιτούτου Ωκεανογραφίας ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε.
- 6. Α. ΙΩΑΝΝΙΔΟΥ, Επίκουρη Καθηγήτρια Τμήματος Φυσικής Α.Π.Θ.
- 7. Θ. ΜΕΡΤΖΙΜΕΚΗΣ, Επίκουρος Καθηγητής Τμήματος Φυσικής Ε.Κ.Π.Α.

ΑΘΗΝΑ, Ιούλιος 2014

Πρόλογος

Η παρούσα διδακτορική διατριβή πραγματοποιήθηκε στα πλαίσια της συνεργασίας της ομάδα Πυρηνικής Φυσικής του Τομέα Φυσικής του Εθνικού Μετσόβιου Πολυτεχνείου (ΕΜΠ) και της ομάδας Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος του Ινστιτούτου Ωκεανογραφίας του Ελληνικού Κέντρου Θαλασσίων Ερευνών (ΕΛΚΕΘΕ). Αποτελεί αποτέλεσμα μιας πολύχρονης προσπάθειας, πάνω από μια δεκαετία πλέον, στην εφαρμογή μεθόδων της πυρηνικής φυσικής στην μελέτη του υδάτινου περιβάλλοντος που έχει οδηγήσει στη δόμηση μιας πολυπληθούς ομάδας από ερευνητές, τεχνικούς, μεταδιδακτορικούς, διδακτορικούς, μεταπτυχιακούς και προπτυχιακούς φοιτητές με πλούσιο έργο στον τομέα της έρευνας της περιβαλλοντικής ραδιενέργειας. Κυριότερες εφαρμογές που έχουν υλοποιηθεί μέχρι σήμερα στα πλαίσια ερευνητικών προγραμμάτων και εκπαιδευτικών εργασιών περιλαμβάνουν: (α) την εκτίμηση χρόνου παραμονής και ηλικίας νερού από υποθαλάσσιες εκβολές στην παράκτια ζώνη, (β) τη μελέτη μεταφοράς θαλάσσιων μαζών χρησιμοποιώντας ως ιχνηθέτη το ¹³⁷Cs, (γ) την εκτίμηση του ρυθμού ιζηματογένεσης με ραδιοχρονολόγηση, (δ) την εκτίμηση του χρόνου καθόδου της βροχής και του ύψους των νεφών μέσω μέτρησης θυγατρικών ισοτόπων ραδονίου σε δείγματα βροχής, (ε) την μέτρηση συγκέντρωσης/μεταβολών θυγατρικών ισοτόπων του ραδονίου πάνω σε υποθαλάσσια ρήγματα σχετιζόμενα με δεδομένα μικροσεισμικότητας, (ζ) τη ραδιολογική χαρτογράφηση πυθμένα παράκτιων περιοχών με βιομηγανική δραστηριότητα και (η) την συνεχή παρακολούθηση ραδιενέργειας στο θαλάσσιο περιβάλλον τόσο σε περιοχές με υψηλές συγκεντρώσεις ισοτόπων όσο και σε περιοχές ενδιαφέροντος για την εκτίμηση του υποβάθρου.

Η διδακτορική διατριβή που παρουσιάζεται εδώ, ως μέρος της ευρύτερης προσπάθειας, κινείται σε δύο βασικούς θεματικούς άξονες:

 την εφαρμογή και βελτιστοποίηση ολοκληρωμένης μεθοδολογίας φασματοσκοπίας-γ για αξιόπιστες ποσοτικές μετρήσεις ραδιονουκλιδίων στο ίζημα και το νερό με σκοπό τον ραδιολογικό χαρακτηρισμό και χαρτογράφηση περιοχών για λόγους ραδιορύπανσης-ραδιοοικολογίας, με παράλληλη διεξαγωγή ερευνητικών δειγματοληψιών στις Ελληνικές Θάλασσες και μετρήσεις δειγμάτων επιφανειακού και πυρήνων ιζήματος στα εργαστήρια πυρηνικής φασματοσκοπίας του ΕΛΚΕΘΕ., του ΕΜΠ, του Εθνικού Κέντρου Έρευνας Φυσικών Επιστημών (ΕΚΕΦΕ) «Δημόκριτος» και του Istituto Nazionale di Fisica Nucleare - Laboratori Nazionali del Gran Sasso (INFN-LNGS) της Ιταλίας.

2) την ανάπτυξη χωροχρονικού μοντέλου εκτίμησης της διασποράς ραδιονουκλιδίων (¹³⁷Cs και ⁹⁰Sr) στο υδάτινο περιβάλλον και της ραδιοοικολογικής ευαισθησίας βιοτικών και αβιοτικών παραγόντων την περιοχή του Θερμαϊκού Κόλπου, στα πλαίσια του προγράμματος Environmental Modelling for Radiation Safety II (EMRAS II) της Διεθνούς Επιτροπής Ατομικής Ενέργειας (International Atomic Energy Agency, IAEA) με συμμετοχή στην ομάδα εργασίας Environmental Sensitivities Working Group με θεματική Approaches for Assessing Emergency Situations.

Με τον τρόπο αυτό ευελπιστεί να συνεισφέρει στην μελέτη της διασποράς ραδιονουκλιδίων στο υδάτινο περιβάλλον αλλά και να συμπληρώσει την υπάρχουσα γνώση και τεχνογνωσία της ερευνητικής ομάδας.

Σε αυτό το σημείο, θα ήθελα να ευχαριστήσω θερμά για το σύνολο της επιστημονικής μου πορεία τους δασκάλους αλλά και συνεργάτες μου κ. Ρόζα Ζαννή-Βλαστού, Καθηγήτρια Φυσικής του ΕΜΠ και υπεύθυνη αυτής της διδακτορικής διατριβής, τον κ. Χρήστο Τσαμπάρη, Ερευνητή του ΕΛΚΕΘΕ και ερευνητικό επιβλέποντα, και τον κ. Μιχάλη Κόκκορη, Αναπληρωτή Καθηγητή του ΕΜΠ και μέλος της τριμελούς συμβουλευτικής επιτροπής, για τις πολύτιμες συμβουλές και παρατηρήσεις τους, τη διαρκή τους στήριξη και καθοδήγηση, αλλά και εμπιστοσύνη που μου έχουν δείξει όλα αυτά τα χρόνια.

Θα ήθελα επίσης να εκφράσω την ιδιαίτερη εκτίμηση και σεβασμό μου στον Ερευνητή του ΕΚΕΦΕ "Δημόκριτος" κ. Κώστα Κάλφα, για την διαρκή συμβουλευτική και τεχνική του βοήθεια, τον Αναπληρωτή Καθηγητή του ΕΜΠ κ. Κώστα Παπαδόπουλο για τις επιμορφωτικές και πάντα ενδιαφέρουσες συζητήσεις, καθώς και στα υπόλοιπα μέλη της επταμελής εξεταστικής επιτροπής κ. Δημήτρη Γεωργόπουλο Ερευνητής Α του ΕΛΚΕΘΕ, κ. Θεόδωρου Μερτζιμέκη Επίκουρο Καθηγητή του Εθνικού Καποδιστριακού Πανεπιστημίου Αθηνών (ΕΚΠΑ) και κ. Αλεξάνδρα Ιωαννίδου Επίκουρο Καθηγητή του Αριστοτελείου Πανεπιστημίου Θεσσαλονίκης (ΑΠΘ), για τις γόνιμες παρατηρήσεις τους επί του κειμένου.

Ξεχωριστά επίσης ευχαριστήσω τους ερευνητικούς συνεργάτες κ. Luigi Monte Ερευνητή του INFN και κ. John Brittain Καθηγητή του Oslo University για την πολύτιμη επιστημονική τους βοήθεια στον τομέα της ραδιοοικολογίας, καθώς και τον συμφοιτητή και φίλο Δρ. Νίκο Μαραγκό για την τεχνική του βοήθεια. Παράλληλα, θα ήθελα να ευχαριστήσω για την πολύτιμη βοήθειά τους με την παροχή δεδομένων, τεχνογνωσίας και επιστημονικών πληροφοριών απαραίτητων για την υλοποίηση του ραδιολογικού μοντέλου του Θερμαϊκού Κόλπου τους ερευνητές του ΕΛΚΕΘΕ, Γ. Κορρέ, Α. Παυλίδου, Π. Δρακοπούλου, Α. Μαχιά., Β. Καψημάλη και Σ. Καββαδά.

Θερμά ευχαριστώ τους συναδέλφους και συνεργάτες από την ομάδα ραδιενέργειας περιβάλλοντος του ΕΛΚΕΘΕ Δήμητρα Παπαγεωργίου, Φρόσω Ανδρουλακάκη, Φιλοθέη Παπά, Άγγελο Φίλη, Διονύση Πατήρη, Χρίστο Μπαγκατέλα, Στέλλιο Αλεξάκη και Άρη Προσπαθόπουλο που κομμάτι και της δικής τους προσπάθειας είναι η εργασία αυτή, καθώς και τους συμφοιτητές Μαίρη Διακάκη, Αντρέα Τσιγγάνη, Βαλεντίνα Πανέτα και το σύνολο της ομάδας Πυρηνικής Φυσικής του ΕΜΠ και του ΕΚΕΦΕ "Δημόκριτος", για την διαρκή συμπαράσταση και φιλική τους βοήθεια, όποτε αυτή χρειάστηκε.

Τέλος, ένα μεγάλο ευχαριστώ πάνω απ' όλους στην οικογένεια μου για τη συνεχή ηθική και υλική στήριξη τους όλα αυτά τα χρόνια, καθώς και στα υπόλοιπα αγαπημένα πρόσωπα που με βοήθησαν η καθεμία και ο καθένας με τον τρόπο του.

Γιώργος Ελευθερίου, Ιούνιος 2014

Περίληψη

Τα ραδιονουκλίδια αποτελούν μέρος του φυσικού περιβάλλοντος και η ακτινοβολία που εκπέμπουν επηρεάζει σημαντικά τη ζωή μας. Οι ανθρωπογενείς δραστηριότητες από τα μέσα του 20° αιώνα εμπλουτίζουν επιπλέον το περιβάλλον με τεχνητά ραδιονουκλίδια ή διαταράσσουν την κατά τόπους υπάρχουσα φυσική ισορροπία. Οι διαρκώς αυξανόμενες απαιτήσεις για κατανάλωση ενέργειας και η πληθώρα εφαρμογών που χρησιμοποιούν ραδιονουκλίδια, προοιωνίζουν την ήδη παραγωγή πυρηνικών καυσίμων, παραπροϊόντων αυξανόμενη γρήσης ραδιονουκλιδίων αλλά και αποβλήτων που έχουν σαν τελικό αποδέκτη το περιβάλλον, κυρίως το υδάτινο. Το γεγονός αυτό σε συνδυασμό με την περιορισμένη επιστημονική γνώση για την ακριβή συμπεριφορά των ραδιονουκλιδίων στα διάφορα οικοσυστήματα καθιστούν ιδιαίτερα σημαντική την συστηματική τους μελέτη.

Σκοπός της παρούσας διατριβής είναι η παροχή αξιόπιστων δεδομένων ραδιολογικών μετρήσεων στο υδάτινο περιβάλλον, η αξιοποίησή τους ως ραδιοϊχνηθετών για τον χαρακτηρισμό περιοχών και η χωροχρονική μοντελοποίηση της ραδιενεργού διασποράς με άμεσο στόχο τον προσδιορισμό της επίδρασής τους άνθρωπο. Συγκεκριμένα, αναπτύγθηκε ολοκληρωμένη μεθοδολογία στον γαρακτηρισμού υδάτινων περιοχών και μοντελοποίησης ραδιολογικού της χωροχρονικής διασποράς ραδιονουκλιδίων με σκοπό την πρόβλεψη των ραδιολογικών επιπτώσεων. Η μεθοδολογία υλοποιήθηκε ενδεικτικά στο Θερμαϊκό Κόλπο περιλαμβάνοντας μετρήσεις υποβάθρου (νερό και ίζημα), ανάπτυξη ραδιολογικού προτύπου και αξιολόγηση των αποτελεσμάτων της μοντελοποίησης με βάση επιστημονικά και κοινωνικά κριτήρια, ενώ παράλληλα προσδιορίστηκε και ο ρυθμός ιζηματογένεσης σε υδάτινα περιβάλλοντα με διαφορετικά χαρακτηριστικά εφαρμόζοντας μεθόδους ραδιοχρονολόγησης. Σε κάθε περίπτωση, οι πειραματικές μετρήσεις στο σύνολό τους παρέχουν σύγχρονα ποιοτικά δεδομένα σε περιοχές ενδιαφέροντος στη ΒΑ Μεσόγειο.

Η διατριβή είναι διαρθρωμένη σε επτά κεφάλαια αποτελούμενη από το θεωρητικό (1° και 2° Κεφάλαιο), το μεθοδολογικό (3° και 4° Κεφάλαιο) και το πειραματικό (5° και 6° Κεφάλαιο) μέρος, ενώ η διατριβή ολοκληρώνεται με ένα επιπλέον κεφάλαιο σύνοψης των συμπερασμάτων και συζήτησης των προοπτικών (7° Κεφάλαιο).

Συγκεκριμένα, στο εισαγωγικό 1° Κεφάλαιο παρουσιάζεται το βασικό θεωρητικό υπόβαθρο (§1.1) σε σχέση με τη φύση των ραδιονουκλιδίων και την ραδιενεργό ακτινοβολία, την προέλευσή και τα χαρακτηριστικά της, τους τρόπους ανίχνευσής της και τις επιπτώσεις στους ζωντανούς οργανισμούς. Κατόπιν περιγράφονται τα κίνητρα και οι ερευνητικοί στόχοι της μελέτης (§1.2), ενώ παρουσιάζονται αναλυτικά και όλες οι περιοχές μελέτης όπου πραγματοποιήθηκαν πειραματικές μετρήσεις (§1.3). Στο 2° Κεφάλαιο που ακολουθεί δίνεται μια αναλυτικότερη θεωρητική ανάλυση σχετικά με τη διασπορά των ραδιονουκλιδίων στο υδάτινο περιβάλλον. Αρχικά αναφέρονται οι τρόποι σχηματισμού, έκλυσης και μεταφοράς ραδιονουκλιδίων στο νερό και το ίζημα με τον αντίστοιχο μαθηματικό φορμαλισμό (§2.1). Κατόπιν περιγράφονται τα μοντέλα ραδιοχρονολόγησης για τον προσδιορισμό του πρόσφατου ρυθμού ιζηματογένεσης με βάση την κατακόρυφη διασπορά ²¹⁰Pb_{ex} και ¹³⁷Cs στην στήλη του ιζήματος (§2.2) και τέλος περιγράφονται οι τρόποι μοντελοποίησης της διασποράς των ραδιονουκλιδίων στο υδάτινο περιβάλλον δίνοντας ιδιαίτερη έμφαση στον κώδικα MOIRA PLUS που εφαρμόστηκε στην παρούσα διατριβή (§2.3).

Εν συνεχεία, στο 3° Κεφάλαιο περιγράφονται οι πειραματικές μέθοδοι που εφαρμόστηκαν στο σύνολο των μετρήσεων της διατριβής. Συγκεκριμένα, αναφέρονται οι μετρήσεις πεδίου με την συλλογή δειγμάτων και επιτόπιων καταγραφών (§3.1), οι εργαστηριακές μετρήσεις για τον χαρακτηρισμό των δειγμάτων ιζήματος ως προς την κοκκομετρία, τις βασικές φυσικές ιδιότητες και τα βαρέα μέταλλα (§3.2) με ξεχωριστή αναλυτική περιγραφή της μεθοδολογίας εργαστηριακών μετρήσεων ραδιονουκλιδίων σε δείγματα ιζήματος, νερού και προσυγκεντρωμένου ¹³⁷Cs με ανιχνευτές ακτίνων-γ υψηλής διακριτικής ικανότητας (§3.3). Εδώ γίνεται και αναλυτική περιγραφή και χαρακτηρισμός των ανιχνευτικών διατάξεων ΗPGe που χρησιμοποιήθηκαν, ενώ αναφέρεται και η μέθοδος προσυγκέντρωσης και μέτρησης με φασματομετρία-α του ²¹⁰Pb σε δείγματα ιζήματος.

Στο Κεφάλαιο 4 περιγράφονται αναλυτικά οι θεωρητικοί υπολογισμοί που πραγματοποιήθηκαν που ήταν απαραίτητοι για να διασφαλιστούν αξιόπιστες και ποιοτικές μετρήσεις φασματοσκοπίας-γ ραδιονουκλιδίων σε περιβαλλοντικά δείγματα. Πρώτα περιγράφονται οι διορθώσεις στη βαθμονόμηση των ανιχνευτικών συστημάτων HPGe που αφορούν στον ακριβή προσδιορισμό της απόλυτης απόδοσης με τον κώδικα EFFTRAN και περιλαμβάνουν τεχνικές μεταφοράς απόδοσης και υπολογισμού της πραγματικής συμπτωτικής άθροισης φωτοκορυφών (§4.1). Κατόπιν παρουσιάζεται η δυνατότητα βελτιστοποίησης και επέκτασης των πειραματικών αποτελεσμάτων βαθμονόμησης με την χρήση Monte Carlo υπολογιστικών τεχνικών προσομοίωσης, ενώ αναφέρεται και η εφαρμογή της για συγκεκριμένη περίπτωση που κρίθηκε απαραίτητη με τη χρήση του κώδικα MCNP5 (§4.2). Το κεφάλαιο ολοκληρώνεται με την περιγραφή του υπολογισμού της ελάχιστης ανιχνευόμενης ενεργότητας (MDA) με την εφαρμογή κατάλληλου αλγορίθμου επεξεργασίας των φασμάτων υποβάθρου, ενώ παρουσιάζονται και τα αποτελέσματα για όλες τις γεωμετρίες μέτρησης και όλους τους ανιχνευτές που χρησιμοποιήθηκαν. Αναλυτικά Παραρτήματα παρέχουν όλες τις απαραίτητες τεχνικές πληροφορίες για την υλοποίηση των υπολογισμών που περιγράφονται παραπάνω.

Στο 5° Κεφάλαιο παρουσιάζονται τα αποτελέσματα των επιμέρους πειραματικών μετρήσεων και η ανάλυσή τους ανά περιοχή μελέτης. Συγκεκριμένα, παρουσιάζονται οι συγκεντρώσεις ενεργότητας ¹³⁷Cs, αλατότητας και θερμοκρασίας στην υδάτινη στήλη των περιοχών μελέτης ενώ τα αποτελέσματα συσχετίζονται με άλλες ωκεανογραφικές παραμέτρους και προηγούμενα πειραματικά δεδομένα (§5.1). Κατόπιν, προβάλλονται εκτενώς οι συγκεντρώσεις των φυσικών ραδιονουκλιδίων και του ¹³⁷Cs σε πυρήνες ιζήματος από διαφορετικά υδάτινα περιβάλλοντα με παράλληλο προσδιορισμό του ρυθμού ιζηματογένεσης και των συνολικών επιφανειακών εναποθέσεων ραδιονουκλιδίων κατακρήμνισης (¹³⁷Cs και ²¹⁰Pb_{ex}) σε κάθε σημείο. Τέλος, παρουσιάζεται η οριζόντια χαρτογράφηση, από τη μία, της διασποράς του ¹³⁷Cs, του οργανικού άνθρακα και της κοκκομετρίας σε περιορισμένη θαλάσσια περιοχή (Ακτή Αερολιμένας Θεσσαλονίκης) και από την άλλη, της διασποράς φυσικών ραδιονουκλιδίων, ¹³⁷Cs και βαρέων μετάλλων σε εκτενέστερη θαλάσσια περιοχή έντονης ανθρωπογενούς δραστηριότητας (Πορθμός Πειραιά-Σαλαμίνας) για τον χαρακτηρισμό της ποιότητας του ιζήματος (φόρτου (§5.3). Σε κάθε περίπτωση οι μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν, παρείχαν σύγχρονα ραδιολογικά δεδομένα σε ένα μεγάλο γεωγραφικό εύρος, τόσο στο νερό όσο και το ίζημα.

Στο επόμενο κεφάλαιο, Κεφάλαιο 6, παρουσιάζεται αναλυτικά η μεθοδολογία και η υλοποίηση της μοντελοποίησης της χωροχρονικής διασποράς ραδιονουκλιδίων σε υδάτινα οικοσυστήματα. Αρχικά προβάλλονται το πλαίσιο, οι λόγοι και οι στόγοι ανάπτυξης του γαρακτηριστικού πρότυπου διασποράς ¹³⁷Cs και ⁹⁰Sr στον Θερμαϊκό Κόλπο (§6.1). Στη συνέγεια, παρουσιάζεται αναλυτικά ο τρόπος ανάπτυξης του ραδιολογικού προτύπου με βάση τον τροποποιημένο κώδικα MOIRA PLUS για το θαλάσσιο περιβάλλον, την μοντελοποίηση των απαραίτητων χαρακτηριστικών της περιοχής μελέτης και την βαθμονόμησή του για τις συγκεντρώσεων ¹³⁷Cs λαμβάνοντας υπόψη όλα τα διαθέσιμα έως τώρα πειραματικά δεδομένα, συμπεριλαμβανομένων και αυτών της παρούσας εργασίας (§6.2). Τέλος, το μοντέλο εφαρμόστηκε σε υποθετικό σενάριο ακαριαίας κατακρήμνισης 137 Cs και 90 Sr (ραδιορύπανση) για την εκτίμηση της χωροχρονικής διασποράς των ραδιονουκλιδίων στο νερό, το ίζημα και τα ψάρια, και τον προσδιορισμό των επιπτώσεων της ραδιολογικής επιβάρυνσης στον πληθυσμό (§6.3). Παράλληλα, αξιολογήθηκε ο βαθμός αβεβαιότητας και η ευαισθησία του προτύπου, ενώ ελέχθηκε περαιτέρω η αξιοπιστία του με βάση τη σύγκριση με αντίστοιχα μοντέλα προσομοίωσης σε άλλες θαλάσσιες περιοχές.

Τέλος, στο 7° Κεφάλαιο περιλαμβάνεται μία σύνοψη της διδακτορικής διατριβής, αναφέρονται τα κυριότερα αποτελέσματα και προβάλλονται οι προτάσεις επέκτασης-εφαρμογής και οι προοπτικές βελτίωσης της μεθοδολογίας της παρούσας εργασίας.

Abstract

Radionuclides as part of the natural environment affects significantly our lives due to the radiation they emit. Since the mid-20th century human activities further enrich the environment with artificial radionuclides or disrupt the existing local natural balance. The increasing demands for electric energy and the variety of applications that use radionuclides foreshadow the already growing production of nuclear fuels, retreatment of byproducts and disposal of radionuclide wastes that have as final recipient the environment, especially the aquatic. This fact, coupled with the limited scientific knowledge about the exact behavior of radionuclides in different ecosystems makes particularly important the systematic study in this scientific field.

In this frame the present PhD thesis entitled "Estimation and Spatial-temporal dispersion of radionuclides in the aquatic environment" has been realized by the physicist Georgios Eleftheriou, BS and MS graduate of the School of Applied Physical and Mathematical Sciences of the National Technical University of Athens, Greece. The purpose of this study is to provide reliable data of radiological measurements in the aquatic environment, use them as radiotracers to characterize regions of interest and model the spatial and temporal dispersion of radionuclides with final objective to determine their impact on humans.

In particular, an integrated methodology for radiological characterization and radionuclides' dispersion modeling of aquatic areas has been developed in order to predict the environmental radiological impacts. The methodology, indicatively, have been implemented at Thermaikos Gulf, N Aegean Sea including background measurements of sea water and sediment, radionuclides' dispersion simulation for ¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr; and evaluation of the modeling estimations based on scientific and social criteria. Additionally, the sedimentation rates have been deduced by applying radiochonology methods and the radiological mapping of the seabed has also been performed for different characteristic aquatic environments. On the whole, the experimental measurements provide resent data in regions of interest at the NE Mediterranean.

The thesis consists on seven chapters including the theoretical (Chapters 1 and 2), methodological (Chapters 2 and 4) and experimental (Chapters 5 and 6) part, concluding with an additional chapter of main findings and perspectives (Chapter 7):

In the introductory Chapter 1 the basic theoretical background are presented, with respect to the nature of the radionuclides and the radioactive radiation, its origins and characteristics, the detection methods and their effects on living organisms (§ 1.1). Furthermore, the motivation and the research goals of the study are described (§ 1.2), as well as the study areas where experimental measurements have been performed (§ 1.3).

In Chapter 2 a detailed theoretical review of the radionuclides' dispersion mechanisms in the aquatic environment is performed. In particular, the formation, the release and the transport of radionuclides in the water and the sediment are described with the corresponding mathematical formalism (§ 2.1). Subsequently, the radiochronology models for the determination of recent sedimentation rate based on vertical dispersion of ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs in the sediment column are presented (§ 2.2), while the methods of modeling the dispersion of radionuclides in the aquatic environment are also discussed with particular emphasis on code MOIRA PLUS (§ 2.3).

Chapter 3 is the main experimental part where all the applied measuring methods are described in detail. The field measurements are presented including samples collection and field acquisitions (§ 3.1), the laboratory measurements for the characterization of sediment samples according galunometry, basic physical properties and heavy metals content (§ 3.2) and the methodology of radionuclides measurements in sediment samples and water by means of gamma-ray spectrometry (§ 3.3).

Chapter 4 contains all the necessary theoretical calculations in order to ensure the reliability and the high-quality of the gamma-spectroscopy measurements of radionuclides in environmental samples with high purity germanium (HPGe) detectors. The calibration corrections of HPGe detection systems are described, namely the determination of the absolute efficiency of volumetric samples through efficiency transfer technique and the true coincidence summing correction (TCS) using the EFFTRAN code (§ 4.1). Moreover, in order to optimize and extend the experimental efficiency calibration results, the Monte Carlo simulation code MCNP5 was applied for the case of extended water geometries (§ 4.2). The chapter concludes with the calculation of the minimum detected activity (MDA) for all measured geometries from the background spectra (§ 4.3). Separate appendices provide all the necessary technical information of the implemented calculations described above.

Chapter 5 contains the results of the experimental measurements and the data analysis for each study area. Analytically, the activity concentrations of ¹³⁷Cs, the salinity and the temperature in the water column, as well as the correlation of the results with other oceanographic parameters and previous experimental data are presented (§ 5.1). Following, the concentrations of natural radionuclides and ¹³⁷Cs in various sediment cores have been estimated, while radiochronology of the cores have been performed based on the vertical profiles of the fallout radionuclide (FRN) concentrations – namely ¹³⁷Cs and the excess of ²¹⁰Pb (§ 5.2). Finally, the seabed mapping of ¹³⁷Cs, organic carbon and mean grain size of the sediment at the Thessaloniki Airport Bay have been performed, while the horizontal dispersion of natural radionuclides, ¹³⁷Cs and the main heavy metals have also been realized in an extensive marine area at Salamina-Piraeus Strait in order to characterize the quality of the sediment and locate potential pollution hot-spots (§ 5.3).

In Chapter 6 the methodology and the implementation of the spatial and temporal dispersion modeling of radionuclides in the aquatic ecosystems. The chapter starts with the scientific framework, the reasons and objectives of the Thermaikos Gulf model development (§ 6.1). Hence, more details about the model itself are given covering the appropriate code modifications of the MOIRA PLUS program in order to be implemented in the marine environment, the essential characteristics of the study area and the calibration of the ¹³⁷Cs concentrations taking into account all available experimental data, including and the ones presented in this work (§ 6.2). Finally, the developed model was tested for hypothetical radiological contamination scenarios of instantaneous fallout of ¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr by assessing the spatial and temporal dispersion of radionuclides in water, sediment and fish; and determining the effects of radiological pollution to the population (§ 6.3). The degree of uncertainty and the sensitivity of the model were also estimated, while its reliability was further tested by comparing the model's results with analogous simulation models applied in other sea areas.

Finally, Chapter 7 summarizes the main achievements and results of the present work, while the potential extensions and perspectives are also discussed.

Acknowledgements

This work was partially supported by the FMO / EEA FM Grants through the EL0086 – NTUA Scholarship and Mobility Program 2004 – 2011. The work of the researcher L. Monte from ENEA Institute and of J.E. Brittain from Oslo University is gratefully acknowledged with regard to their constant cooperation and scientific support throughout the modelling implementation. The contributions of the researchers P.A. Georgopoulos, G. Korres, A. Paulidou, P. Drakopoulou, A. Machias, V. Kapsimalis and S. Kabbadas from HCMR and N. Maragos and M. Katsoulis from NTUA, is acknowledged with regard to their contributions of unpublished data, scientific information, as well as fruitful and informative discussions. The author would like also to thank the members of the advisory committee R. Vlatou-Zanni, C. Tsabaris and M. Kokkoris for their constant support and scientific mentoring, the members of the PhD examination committee C. Papadopoulos, C.A. Kalfas, A. Ioannidou and Th. Mertzimekis for their aptly comments and corrections, as well as all the members of the Nuclear Physics Laboratory of NTUA and Environmental Radioactivity Laboratory of HCMR for their collaboration and friendly help.

Περιεχόμενα

Πρόλογος	3
Περίληψη	5
Abstract	9
Acknowledgements	13
Περιεχόμενα	15
КЕФАЛАІО 1	19
ΕΙΣΑΓΩΓΗ	19
1.1 Στοιχεία ραδιενέργειας περιβάλλοντος	19
1.1.1 Χαρακτηριστικά και ιδιότητες ραδιονουκλιδίων	19
1.1.2 Φυσική και τεχνητή ραδιενέργεια	25
1.1.3 Αλληλεπίδραση φωτονίων με την ύλη	
1.1.4 Ανίχνευση ραδιενέργειας	35
1.1.5 Επιπτώσεις ραδιενέργειας	
1.1.6 Στοιχεία ραδιοοικολογίας	43
1.2 Ερευνητικοί στόχοι	45
1.3 Περιοχές μελέτης	47
1.3.1 Βόρειο Αιγαίο	50
1.3.2 Θερμαϊκός Κόλπος	54
1.3.3 Σαρωνικός Κόλπος	57
1.3.4 Κορινθιακός Κόλπος	60
1.3.5 Αμβρακικός Κόλπος	62
1.3.6 Λίμνη Ulubat	65
КЕФАЛАЮ 2	69
ΔΙΑΣΠΟΡΑ ΡΑΔΙΟΝΟΥΚΛΙΔΙΩΝ ΣΤΟ ΥΔΑΤΙΝΟ ΠΕΡΙΒΑΛΛΟΝ	69
2.1 Έκλυση και διασπορά ραδιονουκλιδίων	69
2.1.1 Έκλυση ραδιενέργειας στο περιβάλλον	69
2.1.2 Διασπορά ραδιονουκλιδίων στο νερό	76
2.1.3 Διασπορά ραδιονουκλιδίων στο ίζημα	81
2.2 Μοντέλα ραδιοχρονολόγησης ιζήματος	
2.2.1 Ραδιοχρονολόγιση με 210 Pb	84
2.2.2 Ραδιοχρονολόγηση με 137 Cs	91
2.3 Μοντέλα διασποράς ραδιονουκλιδίων	95

2.3.1 Πρότυπα διασποράς στο υδάτινο περιβάλλον	97
2.3.2 Το λογισμικό MOIRA-PLUS	105
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 3	115
ΠΕΙΡΑΜΑΤΙΚΕΣ ΜΕΘΟΔΟΙ	115
3.1 Μέθοδοι μέτρησης	115
3.1.1 Δειγματοληψίες	115
3.1.2 Επιτόπιοι καταγραφείς ωκεανογραφικών παραμέτρων	121
3.1.3 Υποθαλάσσιοι ανιχνευτές ακτινοβολίας-γ	122
3.1.3.1 Σύστημα ανίχνευσης RADAM III	
3.1.3.2 Σύστημα ανίχνευσης KATERINA	127
3.2 Χαρακτηρισμός ιζήματος	130
3.2.1 Φυσικές παράμετροι	131
3.2.2 Κοκκομετρία	132
3.2.3 Οργανικός άνθρακας	137
3.2.4 Βαρέα μέταλλα	
3.2.4.1 Μετρήσεις βαρέων μετάλλων	139
3.3 Μετρήσεις ραδιονουκλιδίων	143
3.3.1 Δειγματοποίηση	143
3.3.2 Ανιχνευτικές διατάξεις ακτινοβολίας-γ	145
3.3.2.1 Φασματοσκοπία με ανιχνευτές υπερκαθαρού γερμανίου (HPGe)	145
3.3.2.2 Εργαστηριακές εγκαταστάσεις	149
3.3.3 Μεθοδολογία βαθμονόμησης	156
3.3.3.1. Βαθμονομήσεις ανιχνευτών	156
3.3.3.2 Πηγές βαθμονόμησης	163
3.3.4 Φασματοσκοπία-γ περιβαλλοντικών δειγμάτων	177
3.3.5 Μέτρηση 210 Pb στο ίζημα με φασματοσκοπία-α	184
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 4	
ΘΕΩΡΗΤΙΚΟΙ ΥΠΟΛΟΓΙΣΜΟΙ	
4.1 Διορθώσεις απόλυτης απόδοσης	
4.1.1 Ο κώδικας EFFTRAN	191
4.1.2 Μεταφορά απόδοσης	195
4.1.3 Πραγματική συμπτωτική άθροιση	197
4.2 Monte Carlo προσομοιώσεις	202
4.2.1 Ο κώδικας MCNP	203

4.2.2 Προσομοιώσεις μετρήσεων	204
4.3 Ελάχιστη Ανιχνεύσιμη Ενεργότητα (MDA)	212
4.3.1 Αλγόριθμος υπολογισμού MDA	214
4.3.2 MDA μετρήσεων δειγμάτων	216
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 5	222
ΜΕΤΡΗΣΕΙΣ ΡΑΔΙΟΝΟΥΚΛΙΔΙΩΝ ΣΤΟ ΥΔΑΤΙΝΟ ΠΕΡΙΒΑΛΛΟΝ	222
5.1 Συγκεντρώσεις 137 Cs στην υδάτινη στήλη	222
5.1.1 Σαρωνικός Κόλπος	223
5.1.2 Θερμαϊκός Κόλπος	226
5.1.3 Βόρειο Αιγαίο	230
5.2 Κατακόρυφη διασπορά ραδιονουκλιδίων στο ίζημα	237
5.2.1 Κόλπος Ελευσίνας	239
5.2.2 Θερμαϊκός Κόλπος	243
5.2.3 Κορινθιακός Κόλπος	250
5.2.4 Αμβρακικός Κόλπος	252
5.2.5 Λίμνη Ulubat	256
5.3 Οριζόντια χαρτογράφηση διασποράς ραδιονουκλιδίων πυθμένα	260
5.3.1 Ακτή Αερολιμένα Θεσσαλονίκης	261
5.3.2 Πορθμός Σαλαμίνας-Πειραιά	269
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 6	280
ΜΟΝΤΕΛΟΠΟΙΗΣΗ ΧΩΡΟΧΡΟΝΙΚΗΣ ΔΙΑΣΠΟΡΑΣ ΡΑΔΙΟΝΟΥΚΛΙΔΙΩΝ	280
6.1 Πρότυπο ραδιενεργού διασποράς στον Θερμαϊκό Κόλπο	280
6.2 Ανάπτυξη προτύπου	281
6.2.1 Μοντελοποίηση περιοχής μελέτης	282
6.2.2 Δεδομένα εισόδου	284
6.2.3 Βαθμονόμηση προτύπου	290
6.3 Προσομοιώσεις διασποράς 137 Cs και 90 Sr	296
6.3.1 Εκτίμηση επιπτώσεων ραδιολογικής επιβάρυνσης	297
6.3.2 Αβεβαιότητα και ευαισθησία προτύπου	301
6.3.3 Σύγκριση μοντέλων προσομοίωσης	301
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 7	304
ΣΥΜΠΕΡΑΣΜΑΤΑ ΚΑΙ ΠΡΟΟΠΤΙΚΕΣ	304
ПАРАРТНМАТА	310
ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ 1: Κατάλογος ακτίνων-Χ και -γ	310

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ 2: Αποτελέσματα βαθμονόμησης ανιχνευτών HPGe	314
ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ 3: Δεδομένα εισόδου στον κώδικα EFFTRAN	320
ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ 4: Αρχεία εισόδου στον κώδικα MCNP5	322
ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ 5: Κώδικας υπολογισμού MDA (C++)	326
ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ 6: Κώδικας υπολογισμού ροών (MATLAB)	328
Λίστα Πινάκων	336
Λίστα Σχημάτων	340
Βιβλιογραφία	350

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 1

ΕΙΣΑΓΩΓΗ

1.1 Στοιχεία ραδιενέργειας περιβάλλοντος

Η ραδιενέργεια είναι ένα φυσικό φαινόμενο που αναφέρεται στην εκπομπή ιοντίζουσας ακτινοβολίας από ασταθείς πυρήνες στοιχείων, τα ραδιονουκλίδια. Τα στοιγεία αυτά, είτε φυσικής προέλευσης είτε τεγνητά, αποτελούν κομμάτι του περιβάλλοντος διαβίωσής μας. Η μελέτη του φαινομένου της ραδιενέργειας, που αποτελεί μέρος της πυρηνικής φυσικής επιστήμης, και η κατανόηση των φυσικών νόμων που το διέπουν συντελούν στη διεύρυνση των γνώσεων μας για τον φυσικό κόσμο αλλά και την βελτίωση της ποιότητας ζωής μας, καθώς πλήθος εφαρμογών έχουν αναπτυχθεί με βάση την ανίχνευση, μέτρηση αλλά και παραγωγή ραδιονουκλιδίων. Στο κεφάλαιο αυτό γίνεται μια σύντομη ανασκόπηση των βασικών χαρακτηριστικών των ραδιενεργών στοιχείων και της ραδιενέργειας καθεαυτής που κρίνονται ως απαραίτητο υπόβαθρο στα πλαίσια της παρούσας εργασίας. Συγκεκριμένα, εξετάζεται η πυρηνική σταθερότητα και αστάθεια με την συνεπακόλουθη αυθόρμητη μετάπτωση του πυρήνα σε πιο σταθερές καταστάσεις με εκπομπή ακτινοβολίας. Σε συνδυασμό με τη μαθηματική ανάλυση των πυρηνικών παρουσιάζονται αποδιεγέρσεων 01 φυσικές ραδιενεργές σειρές, ουσικά ραδιονουκλίδια καθώς και τεχνητά, ανθρωπογενούς προέλευσης. Αναφέρονται οι τρόποι αλληλεπίδρασης της ακτινοβολίας με την ύλη και πως αυτοί χρησιμοποιούνται για την ανίχνευση της ραδιενέργειας. Τέλος, δίδονται μερικά γενικά στοιχεία για την επίδραση της ραδιενεργού ακτινοβολίας στον άνθρωπο και το περιβάλλον, αλλά και εφαρμογές σε διάφορα επιστημονικά πεδία.

1.1.1 Χαρακτηριστικά και ιδιότητες ραδιονουκλιδίων

Με τον όρο ραδιονουκλίδια (radionuclides), αναφερόμαστε σε πυρήνες που σε αντιδιαστολή με τους σταθερούς πρόκειται κάποια στιγμή να μεταπέσουν προς κάποιον ελαφρύτερο με ταυτόχρονη εκπομπή της επιπλέον ενέργειας υπό μορφή ακτινοβολίας. Ωστόσο, όλοι οι πυρήνες αποτελούνται από ένα σύνολο Α νουκλεονίων, Z θετικά φορτισμένα πρωτόνια και N ουδέτερα ηλεκτρικά νετρόνια με μάζες $m_p=938,272$ MeV/c² και $m_n=938,566$ MeV/c² αντίστοιχα, που δεσμεύονται στον πυρήνα μέσω της μεταξύ τους ισχυρής πυρηνικής αλληλεπίδρασης, που σε επίπεδο πυρήνα εκφράζεται από την ενέργεια σύνδεσης B(N,Z) με τη σχέση:

$$M(Z,N) = Z \cdot m_p + N \cdot m_n - B(Z,N)/c^2$$
(1.1)

όπου M η μάζα του πυρήνα. Η ενέργεια σύνδεσης αποτελεί το μέτρο της πυρηνικής σταθερότητας, με μεγάλες τιμές της να συνεπάγεται υψηλή σταθερότητα. Οι πυρήνες που έχουν έντονη σταθερότητα και μεγάλη ενέργεια σύνδεσης αντιστοιχούν σε τιμές του ατομικού αριθμού Z ή του αριθμού νετρονίων N = 2, 8, 20, 28, 50, 82 και 126,

που αποκαλούνται μαγικοί αριθμοί και ερμηνεύτηκαν θεωρητικά με τη θεωρία του πυρηνικού προτύπου φλοιών (shell model) [Mayer and Jensen, 1955]. Ο ανταγωνισμός δε μεταξύ των ηλεκτρικών απωστικών δυνάμεων μεταξύ των πρωτονίων και των πυρηνικών ελκτικών δυνάμεων έχει ως αποτέλεσμα ο λόγος του αριθμού νετρονίων προς τον αριθμό πρωτονίων στους σταθερούς πυρήνες να αυξάνεται, όταν αυξάνεται το Z καθώς και την αδυναμία ενός πυρήνα να είναι σταθερός αν το A ή το Z είναι αρκετά μεγάλα. Έτσι για στοιχεία με Z > 83 ή/και A > 206 έχουμε ασταθείς δομές, πράγμα που εξηγεί τον μικρό αριθμό των σταθερών νουκλιδίων στη φύση - περίπου 300 από τους 2500 γνωστά νουκλίδια. Σχηματικά η επίδραση του πλήθους από κάθε είδος νουκλεονίων ενός πυρήνα στην πυρηνική σταθερότητα αποτυπώνονται από την επονομαζόμενη κοιλάδα σταθερότητας στο διάγραμμα Segrè.



Σχήμα 1.1. Το διάγραμμα Segrè, με βάση τους χρόνους ημιζωής των πυρήνων [BenRG, 2014].

Στο διάγραμμα αυτό, όσο οι πυρήνες αποκλίνουν από την κοιλάδα σταθερότητας, τόσο αυξάνεται και η πιθανότητά τους να αποδιεγερθούν ή ισοδύναμα μειώνεται ο χρόνος ημιζωής (half life) $T_{1/2}$ τους. Ο χρόνος ημιζωής ή χρόνος υποδιπλασιασμού αποτελεί εγγενές χαρακτηριστικό κάθε ραδιονουκλιδίου, που εκφράζει το χρόνο που απαιτείται ώστε ένας δεδομένος αριθμός αρχικών ραδιενεργών πυρήνων N(0) να μειωθεί στο μισό. Εναλλακτικά, η ποσότητα αυτή εκφράζεται από την σταθερά διάσπασης (decay constant) λ ή του μέσου χρόνου ζωής (mean life) τ του ραδιονουκλιδίου. Οι παραπάνω εκφράσεις συνδέονται μεταξύ τους με τη σχέση:

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} = \frac{0.693}{\lambda} = 0.693\tau$$
(1.2)

ενώ η ραδιενέργεια (radioactivity) ενός συγκεκριμένου ραδιονουκλιδίου, ή αλλιώς ο ρυθμός αποδιέγερσης Ν ραδιονουκλιδίων, εκφράζεται από τον νόμο της ραδιενεργού αποδιέγερσης (decay law):

$$\frac{\mathrm{dN}(t)}{\mathrm{dt}} = -\lambda N(t) \Leftrightarrow N(t) = N(0)e^{-\lambda t}$$
(1.3)

με μονάδα εκπεμπόμενης ραδιενέργειας ή απλά ενεργότητας (activity) σύμφωνα με το Διεθνές Σύστημα SI, το Becquerel (Bq) με 1 Bq = 1 διάσπαση/s και ιστορικά το Curie (Ci) με 1 Ci = $3.7 \cdot 10^{10}$ Bq.



Σχήμα 1.2. Εκθετικός νόμος ραδιενεργού αποδιέγερσης ραδιονουκλιδίων[ICT, 2010].

Στην πραγματικότητα όμως, τα ραδιονουκλίδια συνήθως αποδιεγείρονται με μια σειρά από διαδογικές μεταπτώσεις μέγρις ότου προκύψει σταθερό σύστημα (πυρήνας). Στατιστικά, εξετάζοντας την αλυσίδα των αποδιεγέρσεων, ο πληθυσμός κάθε είδους πυρήνα της σειράς αυξάνει με τροφοδοσία από τον αμέσως προηγούμενο μητρικό, ενώ παράλληλα μειώνεται καθώς αποδιεγείρεται προς τον αμέσως επόμενο θυγατρικό. Η κατανομή του πληθυσμού ενός δείγματος ισοτόπων της σειράς διέπεται σε κάθε επιμέρους περίπτωση από τον νόμο αποδιέγερσης και εξαρτάται από την σταθερά αποδιέγερσης κάθε πυρήνα (...,λ_α, λ_β,...) σύμφωνα με την αλυσίδα των διαδοχικών αποδιεγέρσεων $(...A \xrightarrow{\lambda_{\alpha}} B \xrightarrow{\lambda_{b}} C \xrightarrow{\lambda_{c}} ...)$, ενώ η τελική μορφή του νόμου αποδιέγερσης για κάθε επιμέρους ραδιονουκλίδιο περιγράφεται μαθηματικά από τις εξισώσεις Bateman [Evans, 1955]. Σε αυτή την περίπτωση, η χρονική εξέλιξη ενός ραδιενεργού δείγματος εξαρτάται από τους χρόνους ημιζωής του μητρικού και θυγατρικού πυρήνα. Η διαφορά στους χρόνους υποδιπλασιασμού έχει σαν αποτέλεσμα την αποκατάσταση μιας συνθήκης ισορροπίας μεταξύ των ραδιενεργειών του μητρικού και του θυγατρικού που μπορεί να είναι είτε μεταβατική $(10 \cdot \lambda_{\beta} > \lambda_{\alpha} > 3 \cdot \lambda_{\beta})$ είτε μόνιμη $(\lambda_{\alpha} > 10 \cdot \lambda_{\beta})$ είτε και να μην επιτυγχάνεται ποτέ $(\lambda_{\alpha} < 10 \cdot \lambda_{\beta})$ λ_{β}).

Οι τρόποι με τους οποίους αποδιεγείρονται οι ραδιενεργοί πυρήνες ποικίλουν και συχνά ανταγωνίζονται μεταξύ τους ή συμβαίνουν διαδοχικά, ενώ επί της ουσίας καθορίζονται από τον αριθμό και το είδος τον νουκλεονίων που φέρουν. Οι μηχανισμοί αποδιέγερσης, συνίστανται είτε στην μετάπτωση του πυρηνικού συστήματος των νουκλεονίων σε χαμηλότερες ενεργειακές στάθμες – κατά αντιστοιχία με το ατομικό πρότυπο των φλοιών – είτε σε μεταβολή του αριθμού των

νουκλεονίων (A,Z), κατά τέτοιο τρόπο ώστε να προκύψουν σταθερότεροι πυρήνες. Οι διαδικασίες αυτές είναι πάντα εξώθερμες και συνοδεύονται με εκπομπή ηλεκτρομαγνητικής ακτινοβολίας ή σωματιδίων, για αυτό και έχει επικρατήσει και ο ισοδύναμος όρος *ραδιενεργός διάσπαση* (radioactive decay) που αναφέρεται στην αυθόρμητη αποδιέγερση των ασταθών πυρήνων. Οι πιο συνηθισμένοι μηχανισμοί διάσπασης αναφέρονται ως *α*, *β* και γ-διάσπαση που υποδηλώνουν την εκπομπή της αντίστοιχης ακτινοβολίας. Συγκεκριμένα [Ασημακόπουλος, 2002]:

- αποδιέγερση ή διάσπαση-α (α-decay), συμβαίνει όταν ένας ασταθής πυρήνας εκπέμπει ένα σωματίδιο το οποίο αποτελείται από δύο πρωτόνια και δυο νετρόνια, δηλαδή ένα πυρήνα ⁴He. Η εκπομπή αυτή οδηγεί σε μείωση του μαζικού αριθμού Α και ατομικού Z του μητρικού ραδιονουκλιδίου M κατά 4 και 2 μονάδες αντίστοιχα, με αποτέλεσμα τη δημιουργία του θυγατρικού νουκλίδιου Θ. Η διάσπαση-α μπορεί να συνοδεύεται ή όχι και από εκπομπή ακτίνων-γ, δηλαδή ηλεκτρομαγνητικής ακτινοβολίας. Η γενική εξίσωση, που περιγράφει την διάσπαση-α είναι :

$${}^{A}_{Z}M \rightarrow {}^{A-4}_{Z-2}\Theta + {}^{4}_{2}He + (\alpha\varkappa\taui\nu\epsilon\varsigma\gamma)$$
(1.4)

Η εκπομπή αυτού του είδους συμβαίνει όταν έχουμε βαρείς πυρήνες πολύ μεγάλου μεγέθους, όπου το σωμάτιο α διαφεύγει από το πυρηνικό δυναμικό *Coulomb*, μέσω του κβαντικού φαινομένου σήραγγας. Τα σωματίδια-α εκπέμπονται πάντα με διακεκριμένες τιμές κινητικής ενέργειας, η οποία καθορίζεται από τη διατήρηση της ορμής και της ενέργειας. Παρ' όλα αυτά, τα φάσματα των σωματιδίων-α προς την ενέργειά τους, αν και διακριτά, περιέχουν διευρυμένες κορυφές που οφείλονται στην αρχή απροσδιοριστίας και σε πειραματικούς παράγοντες. Εφόσον έχουν μεγάλο μέγεθος μπορούν να διανύσουν μερικά εκατοστά στον αέρα, αλλά ακινητοποιούνται μπροστά σε πιο πυκνά μοριακά πλέγματα, λόγω των έντονων κρούσεών τους με τα μόρια της ύλης.

- αποδιέγερση ή διάσπαση-β (β-decay) είναι η αποδιέγερση ενός νουκλίδιου κατά την οποία ο μαζικός αριθμός Α μένει σταθερός ενώ ο ατομικός Ζ μεταβάλλεται, δηλαδή ένα πρωτόνιο μετατρέπεται σε νετρόνιο ή αντίστροφα, με την παράλληλη εκπομπή ακτινοβολίας. Αυτό πρακτικά υλοποιείται με τρείς διαφορετικούς τρόπους που περιλαμβάνουν:

α) διάσπαση-β⁻ (β⁻ decay), κατά την οποία εκπέμπεται από τον πυρήνα ένα αρνητικά φορτισμένο ηλεκτρόνιο (σωματίδιο β⁻) λόγω της ασθενούς πυρηνικής αλληλεπίδρασης (weak interaction) πρωτονίου-νετρονίου: n \Leftrightarrow p + e⁻ + $\overline{\nu}$. Η γενική εξίσωση για τη διάσπαση είναι της μορφής:

$${}^{A}_{Z}M \to {}^{A}_{Z+1}\Theta + \beta^{-} + \overline{\nu} + (\alpha \varkappa \tau i \nu \epsilon \varsigma - \gamma)$$
(1.5)

και πραγματοποιείται αρκεί η μάζα του θυγατρικού πυρήνα να είναι μικρότερη του μητρικού. Τα νουκλίδια που είναι πλούσια σε νετρόνια (μεγάλο N/Z) έχουν την μεγαλύτερη πιθανότητα να υποστούν β⁻ διάσπαση, ενώ οι χρόνοι υποδιπλασιασμού όσο και οι ενέργειες της διάσπασης κυμαίνονται σε ευρεία κλίμακα. Γενικά ισχύει ότι

οι μεγαλύτερες ενέργειες διάσπασης συνδέονται με μικρότερους χρόνους υποδιπλασιασμού.

β) διάσπαση-β⁺ (β⁺ decay), όπου ένα πρωτόνιο στον αρχικό πυρήνα μετατρέπεται σε ένα νετρόνιο με εκπομπή ενός θετικά φορτισμένου ηλεκτρονίου (ποσιτρονίου): $p \iff n + e^+ + v$, ενώ παράλληλα απομακρύνεται ένα τροχιακό ηλεκτρόνιο που ήταν παρόν αρχικά στο μητρικό άτομο, προκειμένου να σχηματιστεί ένα ουδέτερο θυγατρικό άτομο:

$${}^{A}_{Z}M \rightarrow {}^{A}_{Z-1}\Theta + \beta^{+} + \nu + (\alpha \varkappa \tau i \nu \epsilon \varsigma - \gamma)$$
(1.6)

Η διάσπαση με εκπομπή ποζιτρονίου συμβαίνει κυρίως σε νουκλίδια πλούσια σε πρωτόνια (μικρό N/Z), πιο συχνά στα ελαφριά και σπάνια στα βαριά νουκλίδια. Στις πιο πολλές περιπτώσεις, υπάρχουν λιγότερα σωματίδια με χαμηλότερη ενέργεια απ' ότι στο ενεργειακό φάσμα των σωματιδίων-β⁻ με την ίδια μέγιστη ενέργεια. Αυτό οφείλεται στο γεγονός ότι τα ποζιτρόνια που εκπέμπονται, επιταχύνονται λόγω της επιδράσεως των απωστικών δυνάμεων Coulomb του πυρήνα.

γ) διάσπαση με σύλληψη ηλεκτρονίου (electron conversion) EC κατά την οποία ένα ηλεκτρόνιο των ατομικών τροχιακών συλλαμβάνεται από ένα διεγερμένο πυρήνα: $p + e \rightarrow n + \overline{\nu}$ και κατόπιν το μητρικό διασπάται σύμφωνα με την αντίδραση:

$${}^{A}_{Z}M \rightarrow {}^{A}_{Z-1}\Theta + \nu + (\text{Bremsstrahlung}) + (e^{-}\text{Auger}/\alpha\varkappa\taui\nu\epsilon\varsigma-X) + (\alpha\varkappa\taui\nu\epsilon\varsigma-\gamma)$$
(1.7)

και αποτελεί ανταγωνιστική διάσπαση της β⁺ για ενέργειες μεγαλύτερες του 1.022 MeV. Για χαμηλότερες διαφορές ενέργειας η μεταστοιχείωση πραγματοποιείται αποκλειστικά από ηλεκτρονική σύλληψη. Όταν και οι δύο τρόποι διασπάσεως είναι δυνατοί, ευνοείται η σύλληψη ηλεκτρονίου αντί της εκπομπής ποζιτρονίου στις περιπτώσεις όπου η ενέργεια της μετάπτωσης είναι σχετικά χαμηλή και όταν ο Ζ του μητρικού νουκλίδιου είναι μεγάλος, καθώς στοιχεία με μεγάλο Ζ έχουν μεγαλύτερη πυκνότητα ηλεκτρονίων στο πεδίο του πυρήνα που αυξάνει την πιθανότητα σύλληψής τους από αυτόν. Κατά την σύλληψη ηλεκτρονίου εμφανίζονται επιπλέον η εσωτερική ακτινοβολία πέδησης (inner Bremsstrahlung) που είναι ένα συνεχές φάσμα ηλεκτρομαγνητικής ακτινοβολίας με πολύ χαμηλή ένταση που εκπέμπεται καθώς το ηλεκτρόνιο, κατά την πορεία της σύλληψής του από τον πυρήνα, επιταγύνεται λόγω της πυρηνικής ηλεκτρικής έλξης και ηλεκτρόνια Auger (Auger-e) με σχετικά χαμηλή ενέργεια που μπορούν να εκπεμφθούν εναλλακτικά αντί των ακτίνων-Χ, καθώς η σύλληψη ενός τροχιακού ηλεκτρονίου από τον πυρήνα δημιουργεί ένα κενό στην ατομική στιβάδα Κ ή L. Το κενό αυτό συμπληρώνεται με τη μετάπτωση ενός ατομικού ηλεκτρονίου από μία ανώτερη στιβάδα με την ταυτόχρονη εκπομπή ακτίνας-Χ (φθορισμός) ή την εκπομπή από το άτομο ενός άλλου ηλεκτρονίου από μία ανώτερη στιβάδα (ηλεκτρόνια Auger) που απορροφά την ακτινοβολία αυτή. Τα ηλεκτρόνια Auger έχουν σχετικά χαμηλή ενέργεια, πολύ μικρότερη από τις τυπικές ενέργειες των ηλεκτρονίων που εκπέμπονται κατά τη βδιάσπαση.

- αποδιέγερση ή διάσπαση-γ (γ-decay) που είναι η αποδιέγερση ενός διεγερμένου πυρήνα M^{*}, που τα νουκλεόνιά του βρίσκονται για κάποιο λόγο σε υψηλότερες ενεργειακές στάθμες πάνω από την βασική, με την παράλληλη εκπομπή ηλεκτρομαγνητικής ακτινοβολίας καθώς ο πυρήνας μεταπίπτει σε χαμηλότερη ή στη βασική του κατάσταση. Και πάλι, υπάρχουν τρεις τρόποι διασπάσεως που σχετίζονται με εκπομπή ακτίνων-γ:

α) καθαρή εκπομπή ακτίνων-γ, όπου μονοενεργειακές ακτίνες-γ εκπέμπονται κατά την μετάπτωση μεταξύ ενεργειακών σταθμών του πυρήνα με τυπικό ενεργειακό εύρος 0.002 – 7 MeV:

$${}^{A}_{Z}M^{*} \rightarrow {}^{A}_{Z}M + (\alpha \varkappa \tau i \nu \varepsilon \varsigma - \gamma)$$
(1.7)

Οι ενέργεια των ακτίνων-γ πρακτικά ισούται με τις ενέργειες των μεταπτώσεων μεταξύ των διαφόρων κβαντικών καταστάσεων του πυρήνα, εφόσον η ενέργεια ανάκρουσης του θυγατρικού πυρήνα είναι αναλογικά πολύ μικρότερη.

β) εσωτερική μετατροπή (internal conversion) IC, ο διεγερμένος πυρήνας αποδιεγείρεται μεταφέροντας την ενέργεια διεγέρσεώς του σε ένα τροχιακό ηλεκτρόνιο, το οποίο κατόπιν εκπέμπεται από το άτομο. Επειδή η διάσπαση με εσωτερική μετατροπή δημιουργεί ένα κενό σε ένα ατομικό τροχιακό, θα ακολουθήσει επίσης εκπομπή ακτίνων-X ή e⁻ Auger, ενώ σε κάθε περίπτωση δεν εκπέμπεται ακτινοβολία-γ:

$${}^{A}_{Z}M^{*} \rightarrow {}^{A}_{Z}M + e^{-}(IC) + (e^{-}Auger/\alpha \varkappa \tau i \nu \epsilon \varsigma - X)$$
(1.8)

Τα ηλεκτρόνια εσωτερικής μετατροπής είναι μονοενεργειακά, ενώ ως μηχανισμός είναι ανταγωνιστικός της καθαρής εκπομπής ακτίνων-γ. Το ποιος μηχανισμός επικρατεί μεταξύ εσωτερικής μετατροπής και εκπομή ακτίνων-γ κάθε φορά εξαρτάται από την ενέργεια μεταπτώσεως, τον ατομικό αριθμό και τη μεταβολή του πυρηνικού σπιν.

γ) παραγωγή ζεύγους (pair production) PP e⁻ και e⁺ που, αν και σπάνια, συμβαίνει όταν η ενέργεια της πυρηνικής μεταπτώσεως είναι μεγαλύτερη από 1.024 MeV:

$${}^{A}_{Z}M^{*} \rightarrow {}^{A}_{Z}M + \beta^{-} + \beta^{+}$$
(1.9)

Κατά την παραγωγή ζεύγους, η ενέργεια της μετάπτωσης χρησιμοποιείται για τη δημιουργία ενός ζεύγους ηλεκτρονίου-ποζιτρονίου, το οποίο κατόπιν διαφεύγει από τον πυρήνα.

Άλλοι, λιγότερο συνηθισμένοι τρόποι διάσπασης που έχουν παρατηρηθεί, συνοπτικά είναι:

- αυθόρμητη σχάση, διάσπαση δηλαδή του πυρήνα σε δύο θραύσματα με εκπομπή 2-3 νετρονίων. Είναι συνηθισμένη στους βαρύτερους πυρήνες και

ανταγωνίζεται μερικές φορές την διάσπαση-α σε υπερουράνια στοιχεία [Bahcall et al., 1988].

- εκπομπή καθυστερημένου νετρονίου, όπου έχουμε εκπομπή νετρονίου μετά από διάσπαση-β πρϊόντων σχάσης που τα νουκλίδια βρίσκονται σε υψηλές στάθμες διεγέρσεως. Τα νετρόνια αυτά εκπέμπονται πολύ γρήγορα μετά την β-διάσπαση [Reines, 1979]

- εκπομπή καθυστερημένου πρωτονίου, που πρόκειται για τον αντίστοιχο μηχανισμό των καθυστεριμένων νετρονίων αλλά για πλούσια σε πρωτόνια προϊόντα σχάσης που εκπέμπουν πρωτόνια [Ehmann and Vance, 1991].

- διπλή β-διάσπαση που περιλαμβάνει ταυτόχρονη, όχι διαδοχική, εκπομπή δύο σωματίων β χωρίς παραγωγή αντινετρίνου, όπως στην διάσπαση-β που θα εξετάσουμε [Elliott et al., 1987; Moe and Rosen, 1989].

- διάσπαση με εκπομπή δύο προτωνίων, η οποία είναι παρόμοια ως προς την αρχή με τη διπλή β-διάσπαση, αλλά λαμβάνει χώρα στα ελαφρότερα νουκλίδια [Cable et al. 1983; Honkanen et al., 1983].

- διάσπαση με εκπομπή ¹⁴C και συσσωμάτων σωματιδίων, όπως το ²⁴Ne και το τρίτιο φαινόμενα ιδιαίτερα σπάνια [Rose and Jones, 1984; Langevin et al., 1984; Barwich et al., 1985].

1.1.2 Φυσική και τεχνητή ραδιενέργεια

Η ραδιενέργεια, που εμφανίζεται με τις μορφές που παρουσιάστηκαν παραπάνω, απαντάται στο περιβάλλον από φυσικές ή τεχνητές πηγές προέλευσης. Τα νουκλίδια με Z>82 (στοιχεία μετά τον ²⁰⁸Pb) που προϋπάρχουν στη Γη ή έχουν κατασκευαστεί τεχνητά (μέχρι σήμερα έως Z=118) είναι μετασταθή και αποδιεγείρονται με σταδιακές διασπάσεις μέσω εκπομπής ακτινοβολίας-α ή β προς σταθερούς πυρήνες με Z≤82. Οι ασταθείς πυρήνες που υπάρχουν σήμερα στη φύση προέρχονται είτε από την αρχική πυρηνοσύνθεση (Big Bang), είτε από κοσμικές εκρηκτικές διαδικασίες (π.χ. σούπερνοβα), είτε από πυρηνικές αντιδράσεις που συντελούνται στη γη από φυσικά και ανθρωπογενή αίτια.

Το μεγαλύτερο ποσοστό φυσικών ραδιονουκλιδίων (Naturally Occurring Radioactive Material, NORM) που βρίσκονται διάχυτα στον στερεό φλοιό της γης, με Ζ>82, ομαδοποιούνται σε τρεις σειρές φυσικής ραδιενέργειας, με τα εξής χαρακτηριστικά:

1. Κάθε σειρά χαρακτηρίζεται αντίστοιχα από τη συναρτησιακή μορφή του μαζικού αριθμού Α των πυρήνων που περιέχει σύμφωνα με τις ακολουθίες

4n, 4n+1, 4n+2, 4n+3 (n ακέραιος)

2. Οι αλυσίδες των αποδιεγέρσεων αποτελούνται από μεταπτώσεις μέσω εκπομπής σωματίων. Η αποδιέγερση-α εξηγεί τις μεταστοιχειώσεις μέσω των παραπάνω ακολουθιών ενώ η ύπαρξη αποδιεγέρσεων-β⁻ οφείλεται στο πλεόνασμα νετρονίων των θυγατρικών πυρήνων που προκαλούν οι αποδιεγέρσεις-α. Πολλά ισότοπα έχουν την δυνατότητα αποδιέγερσης εναλλακτικά με διάσπαση-α ή β, αλλά με διαφορετική πιθανότητα.

3. Κάθε σειρά αρχίζει με ένα μακρόβιο ισότοπο με μέσο χρόνο ζωής συγκρίσιμο με την ηλικία της δημιουργίας του σύμπαντος (~14·10⁹ y) [Verde et al., 2013].

4. Κάθε σειρά καταλήγει σε σταθερό πυρήνα, προφανώς με Z≤82.

Με βάση τα παραπάνω προκύπτουν οι τέσσερις φυσικές ραδιενεργές σειρές. Η αλυσίδα των αποδιεγέρσεων αποτελείται αποκλειστικά από μεταπτώσεις μέσω εκπομπής σωματίων α και β⁻. Η παρουσία μόνο αποδιεγέρσεων-β⁻ εξηγείται από το γεγονός ότι κάθε αποδιέγερση-α αφήνει τον θυγατρικό πυρήνα με σχετικά μεγάλο πλεόνασμα νετρονίων. Η κατάσταση αυτή διορθώνεται με τη μετάπτωση β⁻ που μετατρέπει ένα νετρόνιο σε πρωτόνιο. Πολλά ισότοπα έχουν τη δυνατότητα να αποδιεγερθούν εναλλακτικά με δύο μηχανισμούς αποδιέγερσης (α ή β⁻) προς διαφορετικούς κατώτερους πυρήνες. Το όνομα των σειρών προκύπτει από αυτό του μακροβιότερου μητρικού πυρήνα της κάθε σειράς και είναι:

- η σειρά του Θορίου [4n] με μητρικό το 232 Th (T_{1/2} =1.39·10¹⁰ y) και τερματικό το 208 Pb. Άλλα ραδιονουκλίδια της σειράς είναι ισότοπα του Pb, Ac, Bi, Po, Ra και Rn, τα οποία εμφανίζονται αυτούσια στο περιβάλλον και αποτελούν κομμάτι της φυσικής ραδιενέργειας.

- η σειρά του Ποσειδωνίου [4n+1] με μητρικό το πλουτόνιο ²⁴¹Pu (T_{1/2}=14.35 y) και τελικό το ²⁰⁵Th. Η σειρά αυτή ανακαλύφθηκε μετά τη δημιουργία τεχνητών ραδιοϊσοτόπων σε πυρηνικούς αντιδραστήρες κατά τη δεκαετία του 1940. Σήμερα δεν υπάρχει στη φύση γιατί ο μακροβιότερος πυρήνας της σειρά, το νεπτούνιο ²³⁷Np, έχει χρόνο ημιζωής 2.25·10⁶ y που σημαίνει ότι όλοι οι πυρήνες που δημιουργήθηκαν κατά την κοσμογονία έχουν ήδη αποδιεγερθεί.

- η σειρά του Ουρανίου [4n+2] με αρχικό το 238 U (T_{1/2}=4.51·10⁹ y) και τελικό το 206 Pb. Το 238 U είναι ο βαρύτερος πυρήνας που συναντάται αυτούσιος στη φύση, ενώ η σειρά περιλαμβάνει ραδιονουκλίδια των στοιχείων As, Bi, Pb, Po, Pa, Ra, Rn, Tl και Th.

- η σειρά του Ακτινίου [4n+3] με αρχικό το ²³⁵U (T_{1/2}=7.07·10⁸ y) και τελικό το ²⁰⁶Pb. Είναι η πιο μακροσκελής σειρά εκ των τεσσάρων και περιλαμβάνει ραδιενεργά ισότοπα των Ac, As, Bi, Fr, Pb, Po, Pa, Ra, Th και Tl, τα οποία εμφανίζονται σε οποιοδήποτε περιβάλλον υπάρχει το μητρικό ²³⁵U.



Σχήμα 1.3. Οι φυσικές ραδιενεργές σειρές.

Τα ραδιονουκλίδια που ανήκουν στις σειρές του ουρανίου και του θορίου βρίσκονται σήμερα σε μεταβατική ισορροπία στο φυσικό περιβάλλον, ενώ του ακτινίου σε μόνιμη, οπότε όλα τα ραδιονουκλίδα των φυσικών σειρών αναμένονται να έγουν συγκεκριμένες αναλογίες. Στην πράξη οι αναλογίες αυτές μπορούν να επηρεαστούν από διάφορους γεωλογικούς και ραδιογημικούς λόγους. Από τα παραπάνω ραδιονουκλίδια μεγαλύτερη συνεισφορά στη φυσική ακτινοβολία παρουσιάζουν το 232 Th και το 238 U ενώ το 235 U βρίσκεται σε μικρότερη αναλογία. Συγκεκριμένα, τα ισότοπα του φυσικού ουρανίου με τις αντίστοιχες αναλογίες τους είναι το ²³⁸U (99.27%), το ²³⁵U (0.72%) και ²³⁴U (0.0057%), ενώ άλλα ισότοπα του ουρανίου, όπως το ²³⁶U, είναι προϊόντα νετρονικής ενεργοποίησης. Η ραδιενέργεια που αντιστοιχεί σε 1 g καθαρού φυσικού ουρανίου είναι 12 kBq 238 U, 0.555 kBq 235 U και περίπου 12.9 kBq για το ²³⁴U, λόγω του συγκριτικά μικρού χρόνου ημιζωής του (~10⁵ y). Αντίστοιχα, η αναλογία των σταθερών ισοτόπων του μολύβδου Pb στη φύση είναι ²⁰⁸Pb (51.55%), ²⁰⁷Pb (20.80%) και ²⁰⁶Pb (26.26%), ενώ το υπόλοιπο 1.4% αντιστοιχεί στο μακρόβιο ραδιενεργό 204 Pb (T_{1/2}=1.4·10¹⁷ y). Σημαντική συνεισφορά στη φυσική ακτινοβολία οφείλεται στο ευγενές αέριο ραδόνιο 222 Rn (T_{1/2}=3.82 d), καθώς και σε πολύ μικρότερο βαθμό στα α
έρια θορόνιο 220 Rn (T $_{1/2}$ =3.82 d) και ακτινόνιο 219 Rn (T_{1/2}=4 s), που παράγεται στο έδαφος και διαχέεται στο περιβάλλον σε μεγάλες περιεκτικότητες (~50 Bq/m^3 και 5-10 Bq/m^3 για εσωτερικούς και εξωτερικούς χώρους αντίστοιχα), ενώ σε ορισμένες περιοχές εμφανίζονται αμμώδη εδάφη πλούσια σε 232 Th (π.χ. Ινδία, Ιράν, Βραζιλία). Τέλος, αξίζει να σημειωθεί ότι τα ραδιενεργά ισότοπα του ραδίου ²²⁶Ra, ²²⁸Ra και ²²⁴Ra παρουσιάζουν ιδιαίτερο ενδιαφέρον καθώς ακολουθούνται πάντα από τα αέρια ραδιενεργά θυγατρικά ισότοπα του Rn, είναι διαλυτά στο νερό σχηματίζοντας ενώσεις που απορροφούνται από τα φυτά σε μεγαλύτερο βαθμό σε σχέση με τις αντίστοιχες ενώσεις του ουρανίου και του θορίου, και μεταβολίζονται με αντίστοιχο τρόπο με αυτόν του Ca, καθώς ανήκουν στην ίδια ομάδα του περιοδικού συστήματος [Shaw, 2007].

Πέρα από τις ραδιενεργές σειρές, πολλά σχετικά ελαφρά στοιχεία (Z<82) διαθέτουν ραδιενεργά ισότοπα και βρίσκονται ως προσμίξεις στο στερεό φλοιό της γης, τους ωκεανούς και την ατμόσφαιρα. Τα ραδιονουκλίδια που παρουσιάζονται στον Πίνακα 1.1 είναι πρωτογενούς προέλευσης κατάλοιπα της πυρηνοσύνθεσης κατά τη κοσμογονία, με εξαίρεση τους ελαφρύτερους κατά βάση πυρήνες που παράγονται μετά από σειρά αντιδράσεων της κοσμικής ακτινοβολίας (πρωτόνια και νετρόνια υψηλής ενέργειας) με το άζωτο και το οξυγόνο της ατμόσφαιρας. Τα κοσμικά ρ αντιδρούν με τα άτομα της ατμόσφαιρας και παράγουν κατά μέσο όρο 2.4 n s⁻¹ cm⁻², σύμφωνα με τις αντιδράσεις:

$$p + {}^{16}O \rightarrow {}^{16}F + n \ \kappa \alpha \ p + {}^{16}N \rightarrow {}^{14}O + n$$
 (1.10)

Για την περίπτωση του τριτίου ³Η και του άνθρακα ¹⁴C, έχουμε τα χαμηλοενεργειακά n να απορροφώνται από το άζωτο της ατμόσφαιρας μέσω της αντίδρασης:

$$n + {}^{14}N \rightarrow {}^{14}C + p \tag{1.11}$$

ενώ τα η μεγαλύτερης ενέργειας δίνουν τις αντιδράσεις:

$$n + {}^{14}N \rightarrow {}^{3}H + {}^{12}C \text{ kal } n + {}^{14}N \rightarrow {}^{3}He + {}^{12}B$$
 (1.12)

Στη συνέχεια, ο ραδιενεργός ¹⁴C οξειδώνεται σε CO₂ και ως βαρύτερο μόριο κατέρχεται στην επιφάνεια της γης, όπου απορροφάται από τους ζώντες οργανισμούς μέσω της αναπνοής και της φωτοσύνθεσης, ενώ το ³H που δημιουργείται εμφανίζεται ως φυσική πρόσμιξη του υδρογόνου στην υγρασία της ατμόσφαιρας και στο νερό της βροχής [Kathern, 1991]. Άλλα λιγότερο συνηθισμένα κοσμικά ραδιονουκλίδια που προέρχονται είτε και αυτά από σύλληψη νετρονίων είτε από κατακερματισμό πυρήνων (spalation) στην ατμόσφαιρα (π.χ. Ar) είναι τα ²²Na, ²⁶Al, ³²Si, ³⁵S, ³⁶Cl, ³⁹Ar και ⁸¹Kr, ενώ σπάνια είναι και η συνεισφορά από ραδιενεργά κοσμικής σκόνης και μετεωριτών (κυρίως ⁷Be, ²²Na, ²⁶Al, ⁴⁶Sc, ⁴⁸V, ⁵¹Cr, ^{53,54}Mn, ^{56,57,58,60}Co και ⁵⁹Ni). Σε κάθε περίπτωση, η παραγωγή των ισοτόπων κοσμικής προέλευσης εξαρτάται σημαντικά από το ύψος και το γεωγραφικό μήκος και πλάτος, ενώ παρουσιάζει και χρονική διακύμανση [Froehlich, 2009].

Ραδιονιυκλίδιο	Χρόνος ημιζωής Τ _{1/2} (y)	Μηχανισμός αποδιέγερσης	Αφθονία σε σχέση με τα υπόλοιπα ισότοπα του στοιχείου (%)		
³ H*	12.23	β⁻	_		
⁷ Be [*]	0.15	β⁻	_		
¹⁴ C*	5730	β⁻	_		
⁴⁰ K	1.28×10 ⁹	β-, β+, ΕC	0.012		
⁵⁰ V	>4×10 ¹⁵	EC	0.25		
⁸⁷ Rb	4.7×10 ¹⁰	β⁻	27.83		
¹¹³ Cd	9×10 ¹⁵	β⁻	12.3		
¹¹⁵ In	5×10 ¹⁴	β⁻	12.3		
¹²³ Te	1.2×10 ¹³	EC	0.87		
¹³⁸ La	1.05×10 ¹¹	EC, β-	0.09		
¹⁴² C	5×10 ¹⁶	α	11.1		
¹⁴⁴ Nd	2.1×10 ¹⁵	α	23.9		
¹⁴⁷ Sm	1.07×10^{11}	α	15		
¹⁴⁸ Sm	8×10 ¹⁵	α	11.2		
¹⁴⁹ Sm	1×10 ¹⁶	α	13.8		
¹⁵² Gd	1.1×10 ¹⁴	α	0.2		
¹⁵⁶ Dy	2×10 ¹⁴	α	0.06		
¹⁷⁶ Lu	2.7×10 ¹⁰	β⁻	2.6		
¹⁷⁴ Hf	2.0×10 ¹⁵	α	0.17		
¹⁸⁰ Ta	>1.6×10 ¹³	EC, β-	0.012		
¹⁸⁷ Re	5×10 ¹⁰	β⁻	62.5		
¹⁹⁰ Pt	7×10 ¹¹	α	0.013		
²⁰⁴ Pb	1.4×10 ¹⁷	α	1.4		

Πίνακας Ι.Ι. Τα σ	ημαντικότερα	ωυ σ ικά ραδιο	νουκλίδια ει	κτός ραδιε	νερνών σε	ιρών ((Z < 82).
111100000 1.1.1.1000	ipoli ino lopol y	φ o o mo po o ro		$n \log p 0.010$	<i>vop f</i> 00 <i>v</i> 00	ipwr (2 .02).

* κοσμογενούς προέλευσης

Πιο σημαντικό φυσικό ραδιενεργό ισότοπο εκτός των φυσικών σειρών είναι το κάλιο ⁴⁰K. Παρόλο που βρίσκεται στη φύση μόνο σε ποσοστό 0.012% προς τα σταθερά του ισότοπα ³⁹K (93%) και ⁴¹K (6.1%), λόγω του μεγάλου χρόνου ημιζωής $(T_{1/2}=1.277\cdot10^9 \text{ y})$ και της αφθονίας του στα στερεά πετρώματα (από 0.1% στους ασβεστόλιθους έως 3.5% σε γρανίτες) και σε διαλυτή μορφή στο νερό, συνεισφέρει με την ακτινοβολία του σε ένα μεγάλο ποσοστό στη συνολική θερμότητα του πλανήτη. Αξίζει δε να σημειωθεί ότι το ⁴⁰K αποτελεί την κυριότερη πηγή ραδιενέργειας στους ωκεανούς με τυπική τιμή 12.5 kBq/m³, σε σχέση με τις τιμές της χημικά συγγενής του αλκαλικής γαίας ⁸⁷Rd με ενεργότητες της τάξης 100 Bq/m³, του ευδιάλυτου ραδίου (~2 Bq/m³ για το ²²⁶Ra και ακόμα χαμηλότερες τιμές για το ²²⁸Ra) και του ²³⁸U με τιμές 12-40 μBq/m³ [Livingston, 2004].

Πέραν της φυσικής ακτινοβολίας, που είναι και το μεγαλύτερο ποσοστό (~90%), στο περιβάλλον συναντάμε και ραδιενεργά ισότοπα που απελευθερώνονται από ανθρώπινες δραστηριότητες, που χρονολογικά παράγονται τα τελευταία 70 χρόνια. Οι κυριότερες πηγές τεχνητής ραδιενέργειας, με κύριο αποδέκτη τα θαλάσσια οικοσυστήματα, είναι σε παγκόσμια κλίμακα σήμερα είναι οι δοκιμές πυρηνικών όπλων, τα πυρηνικά ατύχηματα (πυρηνικών εργοστασίων, υποβρυχίων και αεροσκαφών), οι διαρροές και εναποθέσεις από πυρηνικούς σταθμούς και αντιδραστήρες, ρίψη πυρηνικών αποβλήτων σε υδάτινους ορίζοντες, κατάλοιπα ραδιοφαρμάκων και ραδιονουκλιδίων βιομηχανικής χρήσης κ.ά.

Κατά την λειτουργία των πυρηνικών αντιδραστήρων λόγω των αντιδράσεων και σχάσεων που λαμβάνουν χώρα παράγεται ένα πολύ μεγάλο πλήθος ραδιονουκλιδίων σε στερεή, υγρή και αέρια φάση όπως τα ³H, ²⁴Na, ⁵¹Cr, ⁵⁴Mn, ⁵⁹Fe, ⁵⁸Co, ⁶⁰Co, ⁶⁵Zn, ⁸⁵Kr, ⁹¹Sr, ^{99m}Tc, ^{131,133}I, ^{51,133,135}Xe, ^{134,137}Cs, ¹²⁴Sb κ.ά. Αντίστοιχα, στην περίπτωση πυρηνικών ατυχημάτων παράγονται ραδιονουκλίδια, σημαντικότερα από τα οποία είναι τα ³³Xe, ^{89,90}Sr, ⁹⁵Zr, ^{103,106}Ru, ¹³¹I, ¹³²Te, ^{134,137}Cs, ¹⁴⁰Ba, ¹⁴¹Ce, ¹⁴⁴Ce, ²³⁸Pu, ²³⁹Np, ^{239,240,241}Pu, ²⁴¹Am και ²⁴²Cm, ενώ μετά από χρήση πυρηνικών όπλων διασπείροντα στην ατμόσφαιρα ³H, ¹⁴C, ⁹⁰Sr, ⁹⁵Zr, ¹⁰⁶Ru, ¹³⁷Cs, ¹⁴⁴Ce και ²³⁹Pu, ανάλογα με το είδος της αρχικής σχάσιμης ύλης.

To ραδιενεργό ισότοπο ¹³⁷Cs είναι ο συνηθέστερος αντιπρόσωπος τεχνητής ραδιενέργειας στον πλανήτη και μαζί με τα ^{90,91}Sr και τα ^{239,240,241}Pu αποτελούν το μεγαλύτερο ποσοστό ραδιενεργού ρύπανσης ανθρωπογενούς προέλευσης στο περιβάλλον. Επιπλέον, παρά τους μικρότερους χρόνους ημιζωής, ιδιαίτερα σημαντικά τεχνητά ραδιονουκλίδια από άποψη ραδιορύπανσης θεωρούνται και τα ^{131,133}I, ¹³⁴Cs και ^{99m}Tc, λόγω της έντονης επιρροής τους στην δημόσια υγεία. Τα σπουδαιότερα ραδιονουκλίδια σε περιπτώσεις χρήσης πυρηνικών όπλων είναι ο ¹⁴C, ⁹⁵Zr, ⁹⁰Sr και ¹³⁷Cs, ενώ στους σταθμούς παραγωγής πυρηνικής ενέργειας, υπό κανονικές συνθήκες εκπέμπεται το αέριο ⁸⁵Kr σε χαμηλές δίσρος ¹³³Xe (π.χ. στο Three Miles Island, H.Π.Α.) και ¹³⁷Cs (π.χ στο Chernobyl της Ουκρανίας) [UNSCEAR, 1988].

1.1.3 Αλληλεπίδραση φωτονίων με την ύλη

Κατά την αποδιέγερση των ραδιενεργών πυρήνων, όπως αναφέρθηκε και νωρίτερα, εκπέμπονται φορτισμένα (σωμάτια α, β⁻ και β⁺) και ουδέτερα (νετρίνα) σωματίδια ή/και φωτόνια (ηλεκτρομαγνητική ακτινοβολία υψηλής ενέργειας). Η ακτινοβολία αυτή αντιδρά με την ύλη με μια σειρά από πιθανούς μηχανισμούς ατομικών αλληλεπιδράσεων, πυρηνικών αντιδράσεων ή αλληλεπίδρασης μεταξύ σωματιδίων-πυρήνα, ανάλογα με το είδος και την ενέργεια της εκπεμπόμενης ακτινοβολίας. Οι συγκρούσεις μεταξύ των εκπεμπόμενων σωματιδίων και πυρήνων του υλικού είναι σπάνιες και οι επιδράσεις τους σε αυτά οφείλονται ως επί το πλείστον στην αλληλεπίδρασή της με τα ηλεκτρικά πεδία των ατόμων.

Στην περίπτωση των φορτισμένων σωματιδίων, όταν ένα τέτοιο σωματίδιο περάσει κοντά από ένα άτομο, μπορεί να μεταφέρει ενέργεια σε ένα τροχιακό ηλεκτρόνιο. Με τον τρόπο αυτό το άτομο διεγείρεται καθώς το τροχιακό ηλεκτρόνιο μεταφέρεται σε υψηλότερη ενεργειακή στάθμη από την οποία και μεταπίπτει στην αρχική κατάσταση, απελευθερώνοντας την αποκτούμενη ενέργεια με εκπομπή ηλεκτρομαγνητικής ακτινοβολίας. Εναλλακτικά το άτομο μπορεί να ιοντιστεί, καθώς είναι δυνατό το ηλεκτρόνιο να αποκτήσει αρκετή ενέργεια, ώστε να εγκαταλείψει εντελώς το άτομο, το οποίο και φορτίζεται θετικά. Άλλοι μηχανισμοί αλληλεπίδρασης που περιλαμβάνουν πυρηνικά φαινόμενα, όπως ελαστική και ανελαστική σκέδαση, αντιδράσεις υφαρπαγής και έμμεσες αντιδράσεις δημιουργίας σύνθετου πυρήνα, είναι πάρα πολύ σπάνιοι στην περίπτωση της αυθόρμητης εκπομπής ακτινοβολίας από ραδιενεργούς πυρήνες.

Στην περίπτωση της ηλεκτρομαγνητικής ακτινοβολίας, οι ακτίνες-γ μπορούν είτε να σκεδαστούν ελαστικά ή ανελαστικά, είτε να απορροφηθούν πλήρως από την ύλη μέσω της αλληλεπίδρασής τους με τα ατομικά ηλεκτρόνια, τα νουκλεόνια του πυρήνα ή το ηλεκτρικό τους πεδίο. Οι κυριότεροι μηχανισμοί αλληλεπίδρασης είναι [Ehmann and Vance, 1991]:

- το φωτοηλεκτρικό φαινόμενο (photoelectric effect), κατά το οποίο πραγματοποιείται πλήρης απορρόφηση ενός φωτονίου που αλληλεπιδρά με ένα άτομο του απορροφητή – όχι με επιμέρους ελεύθερα ηλεκτρόνια – με παράλληλη τα δεσμευμένα ηλεκτρόνια στιβάδας εκπομπή ενός από του ατόμου (φωτοηλεκτρόνιο). Παράλληλα η αλληλεπίδραση προκαλεί ιονισμό του ατόμου με κενό σε μία από τις ενεργειακές του στοιβάδες, που καλύπτεται με σύλληψη ενός ελεύθερου ηλεκτρονίου από τις άλλες στοιβάδες του ατόμου με παράλληλη εκπομπή γαρακτηριστικών ακτίνων-Χ. Αν και στις περισσότερες περιπτώσεις αυτές οι ακτίνες-Χ απορροφώνται εκ νέου κοντά στην αρχική περιοχή μέσω της φωτοηλεκτρικής απορρόφησης που περιλαμβάνει τις λιγότερο στενά συνδεδεμένες στιβάδες, με πιθανή την συνεπακόλουθη διαφυγή τους. Το εκπεμπόμενο αυτό ηλεκτρόνιο, ηλεκτρόνιο Auger, μεταφέρει το πλεόνασμα ενέργειας του ατόμου.



Σχήμα 1.4. Σχηματική αναπαράσταση του φωτοηλεκτρικού φαινομένου[FESAus, 2014].

Το φωτοηλεκτρικό φαινόμενο, παρατηρείται κυρίως σε ακτίνες-γ σχετικά χαμηλής ενέργειας και για απορροφητές με υψηλό ατομικό αριθμό Ζ. Η πιθανότητα τ να πραγματοποιηθεί αυτή η διαδικασία δίδεται προσεγγιστικά από την σχέση :

$$\tau = \sigma \tau \alpha \theta \epsilon \varrho \dot{\alpha} \times \frac{Z^{n}}{E_{\gamma}^{3.5}}$$
(1.13)

όπου το n κυμαίνεται από 4 έως 5 ανάλογα την ενεργειακή περιοχή των ακτίνων-γ, ενώ για φωτόνια αρκετής ενέργειας, η προέλευση των φωτοηλεκτρονίων είναι από τις πιο στενά συνδεδεμένες στοιβάδες του ατόμου (π.χ. την K).

- η σκέδαση Compton, δηλαδή η ανελαστική σκέδαση της προσπίπτουσας ηλεκτρομαγνητικής ακτινοβολίας με τα ατομικά ηλεκτρόνια. Στην περίπτωση αυτή το εισερχόμενο φωτόνιο σκεδάζεται από ένα ατομικό ηλεκτρόνιο, κατά μια γωνία θ από την αρχική του κατεύθυνση. Το φωτόνιο μεταφέρει μέρος της ενέργειάς του στο ηλεκτρόνιο, γνωστό ως ηλεκτρόνιο ανάκρουσης (recoil electron). Επειδή όλες οι γωνίες σκέδασης είναι πιθανές (αλλά όχι και ισοπίθανες), η ενέργεια του ηλεκτρονίου ανάκρουσης κυμαίνεται από μηδέν έως μια μέγιστη τιμή για θ=180°, στην σκέδαση που χαρακτηριστικά ονομάζεται οπισθοσκέδαση (backscattering) Compton.



Σχήμα 1.5. Σχηματική αναπαράσταση της σκέδασης Compton [FESAus, 2014].

Η πιθανότητα της σκέδασης Compton είναι ανάλογη του αριθμού των ηλεκτρονίων του απορροφητή (και συνεπώς του Ζ) και αντιστρόφως ανάλογη της ενέργειας Εγ της ακτινοβολίας-γ :

$$\sigma = \sigma_{\alpha} + \sigma_{s} = \sigma \tau \alpha \theta \epsilon \varrho \dot{\alpha} \times \frac{Z}{E_{\gamma}}$$
(1.14)

όπου οι παράγοντες σ_α και σ_s (σ_s=σ_α·Z) είναι οι γραμμικοί συντελεστές απορρόφησης (απορρόφηση Klein-Nishina) και σκέδασης (σκέδαση Klein-Nishina) αντίστοιχα, και συσχετίζονται με τα δευτερογενή φαινόμενα της σκεδαζόμενης ακτινοβολίας.

Η σκέδαση Compton είναι πιθανότερη για φωτόνια ενέργειας 0.6-4 MeV και ως εκ τούτου είναι ο κυρίαρχος μηχανισμός αλληλεπίδρασης για τις ακτίνες-γ χαρακτηριστικές των πηγών ραδιονουκλιδίων σε απορροφητικά υλικά μεγάλου Ζ. Επιπλέον, αναφέρεται ότι η γωνιακή διασπορά των σκεδαζόμενων ακτίνων-γ εξαρτάται κυρίως από την ενέργεια της προσπίπτουσας ακτινοβολίας με επικρατούσα την εμπρόσθια σκέδαση για μεγάλες ενέργειες προσπίπτουσας ακτινοβολίας-γ, όπως προκείπτει και από το γράφημα Klein-Nishina που ακολουθεί.



Σχήμα 1.6. Σχηματική αναπαράσταση της σκέδασης Compton [Knoll, 2000].

- η δίδυμη γένεση (pair production), κατά την οποία τα φωτόνια απορροφούνται πλήρως κατά την αλληλεπίδρασή τους με το πυρηνικό ηλεκτρικό πεδίο. Συγκεκριμένα, η διαδικασία της δίδυμης γένεσης ή αλλιώς παραγωγής ζεύγους, πραγματοποιείται όταν η ενέργεια της ακτίνας-γ υπερβαίνει δύο φορές την ενέργεια της μάζας ηρεμίας ενός ηλεκτρονίου (1.02 MeV). Στην αλληλεπίδραση (που πρέπει να πραγματοποιηθεί στον πεδίο Coulomb ενός πυρήνα), το φωτόνιο εξαφανίζεται και αντικαθίσταται από ένα ζευγάρι ηλεκτρονίου-ποζιτρονίου. Όλη η πλεονάζουσα ενέργεια του φωτονίου, πάνω από τα 1.024 MeV που απαιτείται για να δημιουργηθεί το ζεύγος, μοιράζεται στην κινητική ενέργεια του ζεύγους των προϊόντων. Επειδή το ποζιτρόνιο στη συνέχεια θα εξαϋλωθεί, μετά από την επιβράδυνσή του στο απορροφητικό μέσο, παράγονται δύο φωτόνια εξαΰλωσης ως δευτερογενή προϊόντα της αλληλεπίδρασης.



Σχήμα 1.7. Σχηματική αναπαράσταση της δίδυμης γένεσης [FESAus, 2014].

Δεν υπάρχει απλή έκφραση για την πιθανότητα της παραγωγής ζευγαριού e⁻.e⁺ ανά πυρήνα, αλλά σχετίζεται τόσο με την ενέργεια της ακτίνας-γ όσο και με το Z του απορροφητικού υλικού, σύμφωνα με την σχέση που ισχύει για ακτίνες-γ με ενέργειες πάνω από 4 MeV :

Πρακτικά, η πιθανότητα αυτής της αλληλεπίδρασης παραμένει πολύ χαμηλή μέχρι η ενέργεια των ακτίνων-γ να φτάσει αρκετά MeV. Η παραγωγή ζεύγους είναι κυρίως περιορισμένη στις υψηλής ενέργειας ακτίνων-γ (1 MeV) και αυξάνεται αισθητά με αυτήν.



Σχήμα 1.8. Σχετική συνεισφορά της πιθανότητας του φωτοηλεκτρικού φαινομένου (τ), της σκέδασης Compton (σ) και της δίδυμης γένεσης (κ)κατά την αλληλεπίδραση της ακτινοβολίας-γ με την ύλη ως συνάρτηση της ενέργειας των εκπεμπόμενων φωτονίων [Γαζής, 2002].

Αλλοι, λιγότερο συνηθισμένοι ή προτεινόμενοι τρόποι αλληλεπίδρασης της ακτινοβολίας-γ συνοπτικά είναι:

- η σκέδαση Rayleigh, δηλαδή ελαστική σκέδαση με τα ατομικά ηλεκτρόνια που απαιτεί φωτόνια ενέργειας > 0.1 MeV [Wedekind et al., 1999].

 - η σκέδαση Thomson, δηλαδή ελαστική σκέδαση με νουκλεόνια του πυρήνα που συνδυάζεται με την σκέδαση Rayleigh [Thomson, 1906].

- η σκέδαση Delbruck ή η ελαστική σκέδαση πυρηνικού δυναμικού που οφείλεται στον σχηματισμό εικονικού ζεύγους ηλεκτρονίων στο πεδίο του πυρήνα. [Schumacher, 1999].

 - η ανελαστική σκέδαση πυρηνικού μαγνητικού συντονισμού, που οφείλεται στη πυρηνική διέγερση από το προσπίπτον φωτόνιο [Mouton et al., 1963].
- η φωτοδιάσπαση του πυρήνα, το αποκαλούμενο και πυρηνικό φωτοηλεκτρικό φαινόμενο, με την πλήρη απορρόφηση του φωτονίου από τον πυρήνα [Chadwick and Goldhaber, 1935].

 η παραγωγή μεσονίων, με πλήρη απορρόφηση των φωτονίων λόγω της αλληλεπίδρασης με το πεδίο μεσονίων που περιβάλλει τα νουκλεόνια, που απαιτεί ενέργειες ακτίνων-γ >150 MeV [Kramer et al., 1968].

1.1.4 Ανίχνευση ραδιενέργειας

Εκμεταλλευόμενοι τις πιθανές αλληλεπιδάσεις της ιοντίζουσας ακτινοβολίας με την ύλη κατέστη δυνατό να αναπτυχθούν κατάλληλες ανιχνευτικές διατάξεις με την βοήθεια των οποίων γίνεται αντιληπτή η παρουσία και η ποιοτική και ποσοτική μέτρησή τους, άρα έμμεσα και η ανίχνευση των ραδιονουκλιδίων. Οι συσκευές οι οποίες χρησιμοποιούνται για την μετατροπή του γεγονότος της διέλευσης ενός φωτονίου ή ενός φορτισμένου σωματιδίου σε ένα ορατό ή αναγνωρίσιμο φαινόμενο, με καταγραφή του χρόνου άφιξης, της θέσης, της τροχιάς, της ενέργειας και της ταυτότητας της ακτινοβολίας, ονομάζονται *ανιχνευτές ακτινοβολίας* (radiation detectors). Επειδή δε, τα διάφορα είδη ιοντίζουσας ακτινοβολίας παρουσιάζουν μεγάλες διακυμάνσεις στον ρυθμό εκπομπής τους (από λίγες εκπομπές την ώρα μέχρι και >10¹⁵ εκπομπές/sec) και στην ενέργειά τους (από κλάσματα του eV έως και GeV), έχουν αναπτυχθεί ποικίλα ανιχνευτικά συστήματα για διάφορους τύπους, έντασης και ενέργειας ακτινοβολίας.

Τα συστήματα ανίχνευσης διακρίνονται σε δύο γενικές κατηγορίες, που είναι οι ηλεκτρονικοί ανιχνευτές, οι οποίοι βασίζονται στα ηλεκτρικά σήματα που δημιουργούνται όταν η ακτινοβολία διέρχεται μέσα από την ύλη και είναι οι πλέον συνηθισμένοι, και όλοι οι άλλοι, που περιλαμβάνουν τις φωτογραφικές πλάκες, τα χημικά δοσίμετρα, τους θερμιδομετρικούς ανιχνευτές, τους θαλάμους νεφώσεως και φυσαλίδων και τους θερμοφωταυγειακούς ανιχνευτές, που δεν απαιτούν την άμεση μέτρηση ηλεκτρικού παλμού ή ρεύματος. Για την ανίχνευση των ραδιονουκλιδίων χρησημοποιόυνται κυρίως ηλεκτρονικοί ανιχνευτές φορτισμένων σωματιδίων και ακτινοβολίας-γ και οι βασικές τους κατηγορίες είναι [Leo, 1987]:

- οι ανιχνευτές αερίων, που είναι η απλούστερη μορφή ανιχνευτή ιοντίζουσας ακτινοβολίας. Όλοι οι ανιχνευτές με αέριο συνίστανται από έναν όγκο αερίου τοποθετημένο σε κλειστό θάλαμο ή σε θάλαμο που επιτρέπει τη συνεχή ροή του αερίου. Συγκεκριμένα, εφαρμόζεται τάση μεταξύ ηλεκτροδίων εντός του όγκου του αερίου, δημιουργώντας ηλεκτρικό πεδίο. Καθώς η ακτινοβολία διασχίζει το θάλαμο με το αέριο, προκαλεί τον ιονισμό του δημιουργώντας ζεύγη ιόντων, αποτελούμενα από ηλεκτρόνια και θετικά ιόντα. Τα ιόντα έλκονται από τα ηλεκτρόδια παράγοντας ηλεκτρικό σήμα. Το ηλεκτρικό σήμα που μετριέται, μπορεί να είναι ένα ρεύμα, ένας παλμός δυναμικού ή το συνολικό φορτίο. Η εκλογή εξαρτάται από το σχεδιασμό της διατάξεως. Η απώλεια ενέργειας της προσπίπτουσας ακτινοβολίας για το σχηματισμό ενός ζεύγους ιόντων σ' ένα αέριο είναι περίπου 30-35 eV. Η πραγματική τιμή διαφέρει λίγα eV ανάλογα με τον τύπο του αερίου, καθώς επίσης με το είδος και την

ενέργεια της προσπίπτουσας ακτινοβολίας. Η διαφοροποίηση μεταξύ ανιχνευτών αερίων έγκειται στη διαφορά δυναμικού μεταξύ των ηλεκτροδίων που οδηγούν και σε άλλες διαδικασίες ιονισμού του αερίου.

Στα πλεονεκτήματα των ανιχνευτών αερίων περιλαμβάνεται η απλότητα στο σχεδιασμό, η ανθεκτικότητα, η ανοχή σε μικρές μεταβολές της εφαρμοζόμενης τάσης και το χαμηλό κόστος. Επειδή κατά την αλληλεπίδραση της ακτινοβολίας εκκενώνεται ολόκληρος ο σωλήνας του αερίου, το ύψος του σήματος είναι αρκετά μεγάλο με αποτέλεσμα να απαιτείται μικρή μόνο εξωτερική ενίσχυση, γεγονός που απλουστεύει τη σχεδίαση και την κατασκευή.

Από την άλλη, στα μειονεκτήματά τους περιλαμβάνεται η έλλειψη ικανότητας παροχής πληροφοριών για την ενέργεια και το είδος της προσπίπτουσας ακτινοβολίας και ο μεγάλος νεκρός χρόνος (100-500 μs), στην περίπτωση των υψηλών περιοχών τάσης, που απαιτείται για την απορρόφηση πολλών θετικών ιόντων τα οποία σχηματίζονται. Το τελευταίο περιόριζε τη χρησιμότητά τους για τη μέτρηση ισχυρών ραδιενεργών δειγμάτων εκτός αν πραγματοποιούνται κατάλληλες διορθώσεις.

- οι σπινθηριστές, των οποίων η λειτουργία τους στηρίζεται στην ιδιότητα που έχουν ορισμένα υλικά να εκπέμπουν ορατό φως (σπινθηρισμούς), όταν σε αυτά προσπέσει ιοντίζουσα ακτινοβολία. Αν η εκπομπή του φωτός συμβεί κατά την διάρκεια της διέγερσης ή σε χρόνο μικρότερο από 10⁻⁸ sec, χρονικό διάστημα που εκφράζει την τάξη μεγέθους του χρόνου ζωής μιας ατομικής στάθμης για μια επιτρεπόμενη μετάπτωση, το φαινόμενο λέγεται φθορισμός, ενώ αν η εκπομπή συμβεί μετά από την αποδιέγερση, το φαινόμενο λέγεται φωσφορισμός. Το υλικό που αντιδρά με την ακτινοβολία και ονομάζεται φώσφορος μπορεί να είναι οργανικών ουσιών, ανόργανοι κρύσταλλοι και ευγενή αέρια. Η διάρκεια του φωσφορισμού εξαρτάται από το υλικό και μπορεί να είναι από μερικά με ως μερικές ώρες.

Ο μηγανισμός σπινθηρισμού στους ανόργανους σπινθηριστές εξαρτάται από τις ενεργειακές καταστάσεις, που καθορίζονται από τη δομή του κρυσταλλικού πλέγματος του υλικού. Τα ηλεκτρόνια στους ημιαγωγούς ή στους μονωτές έχουν μόνο διακριτές ενεργειακές ζώνες. Η χαμηλότερη ενεργειακά ζώνη είναι η ζώνη σθένους όπου βρίσκονται τα ηλεκτρόνια, που είναι δεσμευμένα από το δυναμικό των ατόμων του κρυστάλλου. Στη ζώνη αγωγιμότητας βρίσκονται τα ηλεκτρόνια, που έχουν αρκετή ενέργεια, ώστε να αποδεσμευτούν από το δυναμικό των ατόμων του κρυστάλλου. Ανάμεσα στην ζώνη σθένους και στην ζώνη αγωγιμότητας υπάρχει η περιοχή απογύμνωσης (απαγορευμένη ζώνη), που είναι ενεργειακά απαγορευμένη για τα ηλεκτρόνια του καθαρού κρυστάλλου. Απορροφώντας ενέργεια ένα ηλεκτρόνιο μεταπηδά από τη ζώνη σθένους στη ζώνη αγωγιμότητας, αφήνοντας έτσι μία οπή στην πρώτη του θέση. Στους καθαρούς κρυστάλλους υπάρχει μικρή πιθανότητα να επιστρέψει το ηλεκτρόνιο από την ζώνη αγωγιμότητας στην ζώνη σθένους οπότε να εκπεμφθεί ένα φωτόνιο. Για να αυξηθεί η πιθανότητα μετάπτωσης του ηλεκτρονίου αγωγιμότητας στη ζώνη σθένους, προστίθενται μικρές προσμίξεις από διάφορα συστατικά στον καθαρό κρύσταλλο (π.χ. TI). Αυτές οι προσμίξεις ονομάζονται

ενεργοποιητές και τοποθετούνται σε ορισμένες θέσεις στο κρυσταλλικό πλέγμα. Με τον τρόπο αυτό δημιουργούνται ενεργειακές στάθμες στην απαγορευμένη ζώνη, με αποτέλεσμα τα ηλεκτρόνια κατά την αποδιέγερσή τους να μεταβαίνουν στην ζώνη σθένους, μέσω των ενδιάμεσων ενεργειακών σταθμών του ενεργοποιητή. Επειδή η ενέργεια μετάβασης είναι μικρότερη από αυτή της απαγορευμένη ζώνης, αυτή η μετάπτωση θα δώσει φωτόνια και αποτελεί το μηχανισμό του σπινθηρισμού. Αυτές οι θέσεις αποδιέγερσης ονομάζονται κέντρα φωταύγειας ή κέντρα επανασύνδεσης. Η ενεργειακή διάρθρωσή τους στο κρυσταλλικό πλέγμα καθορίζει και το φάσμα εκπομπής του σπινθηριστή.



Σχήμα 1.9. Ενεργειακές ζώνες ενός ενεργοποιημένου κρυσταλλικού σπινθηριστή.

Κατόπιν τα φωτόνια που δημιουργούνται στον σπινθηριστή ανιχνεύονται από έναν φωτοπολλαπλασιαστή (photomultiplier). Ο φωτοπολλαπλασιαστής αποτελείται από ένα σύστημα μετατροπής της φωτεινής ακτινοβολίας σε μετρούμενο ηλεκτρικό παλμό. Τα φωτόνια που παράγονται στο σπινθηριστή, εκπέμπονται σε τυχαίες κατευθύνσεις, που με κατάλληλο ανακλαστήρα (συνήθως λεπτό φύλλο αλουμινίου), μπορεί ένα μεγάλο ποσοστό αυτών να οδηγηθεί προς στην φωτοκάθοδο. Τα φωτόνια χτυπούν στο μέταλλο της φωτοκαθόδου, οπότε μέσω φωτοηλεκτρικού φαινομένου εκπέμπονται ηλεκτρόνια, γνωστά και ως φωτοηλεκτρόνια. Τα εκπεμπόμενα φωτοηλεκτρόνια κινούνται, με τη βοήθεια ενός ηλεκτρικού πεδίου υψηλής τάσης, σε ένα σύστημα διαδοχικών ηλεκτροδίων (δυνόδων) και παράγουν ολοένα και περισσότερα ηλεκτρόνια Τελικά τα ηλεκτρόνια συλλέγονται στην άνοδο οπότε και δημιουργείται ένας ηλεκτρικός παλμός συγκεκριμένου ύψους ανάλογα με τον αριθμό των ηλεκτρονίων που συγκεντρώθηκαν και προφανώς της ενέργειας της προσπίπτουσας ακτινοβολίας.

Αυτό καθιστά τους σπινθηριστές κατάλληλους όχι μόνο για ανίχνευση, αλλά και για ενεργειακή ανάλυση ακτινοβολιών (φασματοσκοπία),συνηθέστερα ακτινοβολίας-γ. Τα υλικά που χρησιμοποιούνται σήμερα για την κατασκευή ανιχνευτών σπινθηρισμού περιλαμβάνουν ανόργανους ιοντικούς κρυστάλλους, οργανικές ουσίες και πλαστικά υλικά. Το μήκος κύματος του φωτός που εκπέμπουν βρίσκεται μεταξύ 300 και 450 nm, ενώ η διεργασία διαμόρφωσης του παλμού μπορεί να διαρκεί από 2 έως 1000ns. Ο πιο διαδεδομένος τύπος ανιχνευτή σπινθηρισμού χρησιμοποιεί κρύσταλλο ιωδιούχου νατρίου με μικρές προσμίζεις θαλίου [NaI(Tl)]

και χρησιμοποιείται σήμερα σχεδόν αποκλειστικά για την παρατήρηση ακτινοβολίας γ. Σε σχέση με ανιχνευτές στερεάς κατάστασης, που παρουσιάζονται στην συνέχεια, υπερτερεί σε απόδοση, στο χαμηλό κόστος και στο γεγονός ότι μπορεί να λειτουργήσει σε θερμοκρασία δωματίου. Μειονεκτεί όμως σημαντικά σε διακριτική ικανότητα στη μέτρηση ενέργειας των φωτονίων.

- ανιχνευτές στερεάς κατάστασης, δηλαδή για ημιαγωγούς που βασίζουν την λειτουργία τους στις ιδιότητες των ενεργειακών ζωνών, που φέρουν οι ημιαγώγιμοι κρύσταλλοι, όταν αντιδρούν με την ακτινοβολία. Κατασκευάζονται συνήθως από κρυστάλλους Ge ή Si και εμφανίζουν δομή με ζώνες, όμοια με εκείνη που περιγράφηκε προηγουμένως για τους στερεούς σπινθηριστές, με την διαφορά ότι στους ημιαγωγούς η απόσταση των ζωνών είναι πολύ μικρότερη από εκείνη των σπινθηριστών. Έτσι στο Si και στο Ge η απόσταση των ζωνών είναι αντίστοιχα 1.1 eV και 0.66 eV περίπου. Η δίοδος ακτινοβολίας μπορεί να δώσει τόση ενέργεια στο σύστημα, ώστε να ανεβάσει ένα ηλεκτρόνιο από τη ζώνη σθένους στη ζώνη αγωγιμότητας, δημιουργώντας έτσι ένα ζεύγος ηλεκτρονίου- οπής, ανάλογο με το ζεύγος ιόντων που δημιουργείται στους μετρητές με αέριο. Η οπή και το ηλεκτρόνιο μπορούν να μετακινηθούν μέσα στον κρύσταλλο κάτω από την επίδραση ενός ηλεκτρικού πεδίου και να δημιουργήσουν ένα ηλεκτρικό σήμα.



Σχήμα 1.10. Απλοποιημένο ενεργειακό διάγραμμα ημιαγωγού, όπου φαίνεται το ενεργειακό χάσμα E_g και η ενέργεια ελεύθερων ηλεκτρονίων E_{vacuum} του ημιαγώγιμου κρυστάλλου.

Τελείως καθαροί (ενδογενείς) ημιαγωγικοί κρύσταλλοι, δηλαδή κρύσταλλοι που αποτελούνται μόνο από άτομα Si ή Ge, δεν μπορούν να παρασκευασθούν στην πράξη, γιατί πάντα υπάρχουν διάφορες προσμίξεις ή προστίθενται σκόπιμα επιδρώντας σημαντικά στις ιδιότητές τους. Οι προσμίξεις αυτές είναι στοιχεία (π.χ. Li) που αντικαθιστούν ουδέτερα άτομα πλεγματικών θέσεων του κρυστάλλου, και έχουν είτε ένα περισσότερο είτε ένα λιγότερο ηλεκτρόνιο σθένους. Έτσι δημιουργούν μια νέα ενεργειακή στάθμη ανάμεσα στις ζώνες. Στην πρώτη περίπτωση της περίσσειας ηλεκτρονίων ονομάζεται στάθμη δότη, που βρίσκεται πλησίον της ζώνης αγωγιμότητας, και οι ημιαγωγοί αυτοί τύπου-n, ενώ στην περίπτωση λιγότερων ηλεκτρονίων ή ισοδύναμα πλειονότητας οπών ονομάζεται στάθμη δέκτη, που βρίσκεται κοντά στη ζώνη σθένους και οι ημιαγωγοί αντίστοιχα τύπου-p. Με διάφορους σχεδιασμούς βρέθηκε ότι για ανιχνευτικό σύστημα ακτινοβολίας τα πιο χρήσιμα αποτελέσματα δίδονται για επαφή ημιαγωγών των δύο τύπων (p-n σύνδεσμος) με εφαρμογή σε αυτών αντίστροφης τάσης (εφαρμογή θετικής τάσης στην n-πλευρά και αρνητικής στην p-πλευρά), όπως φαίνεται στο Σχήμα 1.10. Όταν οι δύο τύποι ημιαγωγών έρχονται σε επαφή ή δημιουργούνται τεχνητά ως υποπεριοχές σε ένα μονό κρύσταλλο, στο σημείο επαφής πραγματοποιείται μετακίνηση φορέων, δηλαδή ηλεκτρονίων και οπών, στης περιοχές p- και n-ζώνης αντίστοιχα. Με τον τρόπο αυτό, στο σημείο επαφής δημιουργείται μια ουδέτερη περιοχή, χωρίς περίσσια οπών ή ηλεκτρονίων. Η περιοχή αυτή που ονομάζεται περιοχή κει αντιδρά έντονα με την διέλευση ηλεκτρικού ρεύματος. Έτσι, όταν ακτινοβολία προσπέσει στην n-πλευρά.

Τα συνήθη υλικά ανίχνευσης, το Si και το Ge, είναι σήμερα διαθέσιμα σε μορφή μεγάλων κρυστάλλων λόγω της διαδεδομένης εφαρμογής τους στην κατασκευή ηλεκτρονικών εξαρτημάτων. Το κυριότερο μειονέκτημά τους είναι το μικρό σχετικά εύρος της απαγορευμένης ζώνης. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα θερμικές διαταραχές του πλέγματος να προωθούν ηλεκτρόνια στη ζώνη αγωγιμότητας με αποτέλεσμα το ρεύμα που δημιουργείται με την ανάπτυξη ηλεκτρικού πεδίου να υπερβαίνει τα ανεκτά όρια. Το πρόβλημα αυτό λύνεται συνήθως είτε με ψύξη του ανιχνευτή (σε θερμοκρασία υγρού αζώτου) ή με την εισαγωγή προσμίξεων στον κρύσταλλο του ημιαγωγού. Ανιχνευτές στερεάς κατάστασης χρησιμοποιούνται σε ευρεία κλίμακα σε πειράματα πυρηνικής φυσικής τόσο για την ανίχνευση ηλεκτρομαγνητικής ακτινοβολίας όσο και φορτισμένων σωματίων. Σε πολλά σημεία υπερτερούν σε απόδοση και ποιότητα αποτελεσμάτων σε σχέση με κάθε άλλο τύπο ανιχνευτή ιοντίζουσας ακτινοβολίας.

1.1.5 Επιπτώσεις ραδιενέργειας

Με την μέχρι τώρα ανάλυση έχει γίνει σαφές ότι οι ιοντίζουσες ακτινοβολίες αποτελούν μέρος του περιβάλλοντος διαβίωσης του ανθρώπου και των υπόλοιπων έμβιων όντων. Έχει σημασία λοιπόν να προσδιοριστεί ο τρόπος και ο βαθμός που επηρεάζουν τα διάφορα είδη ακτινοβολίας τα βιολογικά συστήματα ώστε τελικά να αξιολογηθεί και να ποσοτικοποιηθεί η επίπτωσή τους σε αυτά. Στα πλαίσια της υγειοφυσικής επιστήμης έχουν οριστεί συγκεκριμένες ποσότητες ακτινοβόλησης και όρια επικινδυνότητας της.

Με την διέλευση οποιουδήποτε σωματιδίου ιοντίζουσας ακτινοβολίας μέσα από τους ζωντανούς οργανισμούς πραγματοποιείται διάσπαση μοριακών δεσμών (μέσω ιονισμού), γι' αυτό ακριβώς ονομάζονται και ιοντίζουσες ακτινοβολίες. Οι ακτίνες-Χ και η ακτινοβολία-γ αλληλεπιδρούν με την έμβια ύλη μέσω κυρίως του φωτοηλεκτρικού φαινομένου ή και της σκέδασης Compton, ενώ τα νετρόνια προκαλούν έμμεσο ιονισμό με την βοήθεια ελαστικής κρούσεως με τους πυρήνες ή απορρόφησής τους από αυτούς. Αυτό που κυρίως συμβαίνει όταν ένα φορτισμένο

σωματίδιο ή φωτόνιο εισέρχεται στο κύτταρο είναι ο ιοντισμός του νερού, σχηματίζοντας ενώσεις από τις οποίες οι πιο σημαντικές είναι οι ρίζες του υδροξυλίου -OH και το υπεροξείδιο του υδρογόνου H₂O₂, σταθερό μέσα στα κύτταρα και ιδιαίτερα τοξικό για τα βιολογικά μόρια. Υπάρχει πάντα η πιθανότητα το φορτισμένο σωματίδιο ή η ακτινοβολία να χτυπήσει ένα μόριο DNA αλλά αυτή είναι πολύ μικρότερη από την πιθανότητα της έμμεσης καταστροφής εξαιτίας του υπεροξειδίου του υδρογόνου. Οι βλάβες που προξενούν οι ιοντίζουσες ακτινοβολίες στους βιολογικούς οργανισμούς μπορούν να διακριθούν σε δύο βασικές κατηγορίες: (α) σωματικές βλάβες, (εγκαύματα, καρκινογενέσεις, καταστροφή μορίων και ιστών κ.ά..) στα οποία η βλάβη εμφανίζεται στον οργανισμό που ακτινοβολείται και (β) κληρονομικές επιπτώσεις, οι οποίες εμφανίζονται στους απογόνους και στα γονίδια των αναπαραγωγικών κυττάρων (μετάλλαξη DNA) [Γαζής, 2002].

Η πρώτη έννοια που αναφέρεται στην ποσότητα ακτινοβολίας που δέχεται ένας οργανισμός και πρακτικά είναι εναλλακτικό της ενεργότητας, είναι η έκθεση (exposure) X, που εκφράζει το συνολικό ηλεκτρικό φορτίο Q (ιοντισμός), που παράγεται σε μια δεδομένη μάζα m ή όγκο αέρα (X=dQ/dm). Μονάδα έκθεσης σε ακτινοβολία είναι το Roentgen (R) και πρακτικά ισούται με

$$1 \text{ R} = 2.58 \cdot 10^{-4} \text{ Bq/kg} = 1 \text{ C/kg}.$$

Όπως είναι προφανές το Röentgen ως μονάδα έκθεσης δεν παρέχει επακριβείς πληροφορίες για την ποσότητα ακτινοβολίας που πρακτικά απορροφήθηκε από το μέσο, ούτε για τα αποτελέσματα της επιδράσεώς της. Η έκθεση διακρίνεται σε εξωτερική, όταν οφείλεται σε πηγές που βρίσκονται εκτός του σώματος και σε εσωτερική, η οποία οφείλεται σε πηγές που έχουν εισέλθει στον οργανισμό μέσω της αναπνευστικής και πεπτικής οδού. Το σύνολο της εσωτερικής κι εξωτερικής έκθεσης αποτελεί την ολική έκθεση [Draganić et al., 1990].

Η ποσοτική μέτρηση των επιδράσεων της ακτινοβολίας στους ζώντες οργανισμούς, στα πλαίσια της δοσιμετρίας, δίνεται από την απορροφούμενη δόση (absorbed dose) D που ορίζεται ως η μέση ποσότητα ενέργειας από την προσπίπτουσα ακτινοβολία που αποτίθεται σε ένα μέσο/οργανισμό (D = $d\overline{e}/dm$) ανά μονάδα μάζας και με μονάδα μέτρησης στο SI το joule/kg. Παραδοσιακή μονάδα της δόσεως ακτινοβολίας είναι το rad, που ορίζεται ως η δόση οποιουδήποτε είδους ακτινοβολίας, η οποία αποδίδει ενέργεια 0.01 Joule ανά κιλό απορροφούσης ύλης, ενώ στο SI έχει οριστεί νεότερη μονάδα που είναι το Gray (Gy), που ορίζεται ως

$$1 \text{ Gy} = 100 \text{ rad} = 1 \text{ j/kg}$$

Δεδομένου ότι το Gray και το rad είναι μονάδες δόσεως, σε αντίθεση με το Röentgen που είναι μέτρο της έκθεσης ή της έντασης πεδίου ακτινοβολίας, δεν υπάρχει απλή σχέση μεταξύ του Röentgen και του Gray ή του rad [Lapp and Andrews, 1972].

Αν και η έννοια της απορροφούμενης δόσης δίνει περιορισμένη πληροφορία ως προς την επίπτωση που έχει η συνολική ακτινοβολία που δέχεται ένας οργανισμός, είναι ιδιαίτερα χρήσιμη στο προσδιορισμό της συνεισφοράς από το περιβάλλον, καθώς συχνά χρησιμοποιείται η εκτίμηση τους ρυθμού δόσης (σε nGy/h) στον αέρα σε ύψος 1 m από την επιφάνεια του εδάφους εξαιτίας της ενεργότητας ακτινοβολίας-γ (Bq/kgr) από τα φυσικά ραδιενεργά ισότοπα του εδάφους σύμφωνα με την σχέση:

$$D = 0.621A_{\rm Th} + 0.462A_{\rm U} + 0.0417A_{\rm K}$$
(1.16)

όπου A_{Th} , A_U και A_K η ενεργότητα του²³²Th, ²³⁸U και ⁴⁰K αντίστοιχα [UNSCEAR, 2000]. Αξίζει επίσης να σημειωθεί ότι ο υπολογισμός του ρυθμού αποροφούμενης δόσης λόγω των φυσικών ραδιονουκλιδίων του εδάφους προσφέρει και την δυνατότητα έμμεσης σύγκρισης διαφορετικών περιοχών μελέτης.

Για να εξειδικευτεί η διαφορετικότητα των φαινομένων που προκύπτουν από την απορρόφηση διαφορετικής ακτινοβολίας – καθώς η σοβαρότητα της μοριακής βλάβης που προκαλείται είναι άμεσα συνδεδεμένη με το βαθμό ιοντισμού τον οποίο παράγει η ακτινοβολία στο βιολογικό ιστό – ορίστηκαν κατάλληλες ποσότητες περιγραφής τους. Μια μονάδα, η οποία έχει χρησιμοποιηθεί κυρίως από φυσικούς είναι η γραμμική μετάδοση ενέργειας (Linear Energy Transfer) LET που είναι ο ρυθμός μεταφοράς ενέργειας σε μια συγκεκριμένη περιοχή της ύλης (LET=dE/dx) με μονάδα μέτρησης το keV/μm. Όσο μεγαλύτερη είναι η LET της ακτινοβολίας, τόσο μεγαλύτερη είναι η πιθανή βλάβη η οποία μπορεί να προκληθεί σε βιολογικούς ιστούς, ενώ η τιμή της LET για τα τρία είδη της ραδιενεργού ακτινοβολίας (α, β και γ) είναι διαφορετική. Αντίστοιχα, επειδή ίδιες δόσεις διαφόρων τύπων ακτινοβολίας είναι πιθανό να μην εμφανίζουν τα ίδια βιολογικά αποτελέσματα, ορίζεται για λόγους αποτελεσματικότητα η σγετική βιολογική (Relative **Biological** σύγκρισης Effectiveness) RBE, που είναι ο λόγος της ποσότητας ακτίνων-Χ ή γ με ενέργεια 200 keV, ως προς την ποσότητα οποιασδήποτε άλλης ακτινοβολίας, που απαιτείται για την παραγωγή συγκεκριμένου βιολογικού αποτελέσματος.

Συνυπολογίζοντας τα παραπάνω για να αποδοθούν, από υγειοφυσικής άποψης, οι διαφορετικές βιολογικές επιπτώσεις που προκαλούν τα διαφορετικά είδη ιοντίζουσας ακτινοβολίας σε κάθε όργανο του ανθρώπινου σώματος και για να εκτιμήσει ποσοτικά τα αποτελέσματά τους, εισήγαγε το φυσικό μέγεθος της *ισοδύναμης δόσης* (equivalent dose) Η. Η ισοδύναμη δόση σε έναν ιστό Τ, λόγω ενός συγκεκριμένου είδους ακτινοβολίας R, ορίζεται ως το γινόμενο της μέσης απορροφούμενης δόσης D πολλαπλασιασμένη με έναν συντελεστή ποιότητας (quality factor) w_R (H= w_R ·D), που εκφράζει τη σχετική επικινδυνότητα της ακτινοβολίας R και σχετίζεται με το LET. Μονάδα μέτρησης είναι το rem στην περίπτωση που η απορροφούμενη δόση μετράται σε rad ή το Sievert (Sv) που είναι η νεότερη μονάδα στο SI όταν η δόση μετράται σε Gy, δηλαδή

$$1Sv = 100 \text{ rem} = 1 \text{ j/kg}$$

Χαρακτηριστικές τιμές του συντελεστή ποιότητας σύμφωνα με τις τιμές που έχουν προταθεί από το Εθνικό Συμβούλιο Ακτινοπροστασίας και Ραδιομετρήσεων των ΗΠΑ (National Council on Radiation Protection and Measurements) NCRP για τα διάφορα ήδη ακτινοβολίας είναι 1 για τις ακτίνες-Χ,-β και -γ, 5 για τα θερμικά νετρόνια και τα

ταχέα νετρόνια, και 20 για τα ταχέα νετρόνια, πρωτόνια και σωμάτια-α, δείχνοντας ότι ισοδύναμες δόσεις διαφορετικής ακτινοβολίας προξενούν πολύ διαφορετικές βιολογικές βλάβες [Kerr, 1988].

Εφόσον η επίδραση ενός συγκεκριμένου τύπου ακτινοβολίας διαφοροποιείται ανάλογα τους ιστούς και τα όργανα του σώματος με βάση τη ραδιοευαισθησία τους στην ακτινοβολία αυτή, η Διεθνής Επιτροπή Ακτινοπροστασίας (International Commission on Radiological Protection, ICRP) από το 1977 έχει προτείνει ένα νέο μέγεθος, το ενεργό ισοδύναμο δόσης (effective dose equivalent) Ε, που αφορά στο των επιμέρους σταθμισμένων ισοδυνάμων άθροισμα δόσεως στους πιο ραδιοευαίσθητους ιστούς και όργανα του οργανισμού [ICRP, 1977]. Το ενεργό ισοδύναμο δόσης ή απλά ενεργός δόση, που λαμβάνει κάποιος ιστός, όργανο ή τμήμα του σώματος, είναι εκείνη η ολόσωμη δόση, η οποία θα είχε το ίδιο βιολογικό αποτέλεσμα με εμφάνιση καρκίνου. Η ενεργός δόση που ορίζεται ως το άθροισμα των επιμέρους ισοδύναμων δόσεων Η για το σύνολο των ακτινοβολιών R και το σύνολο των ιστών Τ, πολλαπλασιασμένων με τον συντελεστή ποιότητας w_r που εκφράζει τη σχετική ευπάθεια των ανθρώπινων ιστών στην ακτινοβολία, με σκοπό να εκτιμάται ο ολικός κίνδυνος που διατρέχει ο οργανισμός από την έκθεση του στις διάφορες ακτινοβολίες:

$$E = \sum_{T} \sum_{R} w_{T} w_{R} D_{T,R}$$
(1.17)

Ακτινοβολία (R)	W _R	Ιστός ή Όργανο (Τ)	WT
Ακτίνες-Χ, -β και -γ, σωμάτια μ	1	Δέρμα, επιφάνια οστών	0.01
Νετρόνια <10 keV και >20 MeV, πρωτόνια >2 MeV	5	Γεννητικά όργανα	0.2
Νετρόνια 10 - 100 keV και 10 - 20 MeV	10	Ουροδόχος κύστη, μαστός, ήπαρ, οισοφάγος, θυρεοειδής αδένας, λοιποί ιστοί	0.05
Νετρόνια 100 keV - 2 MeV, σωμάτια α, βαρέα ιόντα , θραύσματα σχάσης	20	Μυελός οστών, πνεύμονας, όρθον, στομάχι	0.12

Πίνακας 1.2. Ποιοτικοί συντελεστές επικινδυνότητας ακτινοβολίας [ICRP, 1991].

Η μονάδα μέτρησης της ενεργού δόσης είναι προφανώς ίδια με αυτή της ισοδύναμης δόσης (Sv). Η ενεργός δόση χρησιμοποιείται κυρίως για θεσμοθέτηση ανώτατων επιτρεπτών ορίων έκθεσης σε ιοντίζουσα ακτινοβολία. Ανώτατο όριο ενεργού δόσης στην Ευρωπαϊκή Ένωση από το 2000 θεσπίστηκε το 1 mSv/y (επιπλέον στο φυσικό υπόβαθρο) για το γενικό πληθυσμό και 50 mSv/y για όσους εργάζονται σε πυρηνικούς σταθμούς παραγωγής ηλεκτρικής ενέργειας ή για όσους το επάγγελμά τους έχει σχέση με διάφορες μορφές ακτινοβόλησης, με συνολικό επιτρεπτό μέγιστο τα 100 mSv ανά πενταετία [IAEA, 2007].

1.1.6 Στοιχεία ραδιοοικολογίας

Ο άνθρωπος εκτός από τις εξωτερικές πηγές ακτινοβόλησης δέχεται και ακτινοβολία από ραδιονουκλίδια που καταλήγουν στο ίδιο του το σώμα μέσω της τροφής, του νερού και του αέρα που εισπνέει. Πιο σημαντικό από όλα, όπως φαίνεται και στον Πίνακα 1.3, είναι το αέριο ραδόνιο που όταν δεσμεύεται στους πνεύμονες διασπάται παράγοντας ακτινοβολία-α. Επιπλέον οι διασπάσεις του ⁴⁰K που υπάρχουν στο νερό του σώματος είναι της τάξης των 10⁵ dpm. Τέλος, στο ανθρώπινο σώμα υπάρχουν μεγάλες ποσότητες ¹⁴C και ³H, με χαμηλή συνεισφορά στην ολική ετήσια δόση, εκπέμποντας ακτινοβολία-β μικρής ενέργειας.

Ακτινοβολία	E (mSv/y)	Ποσοστό (%)
Φυσικές πηγές		
Ραδόνιο	2	55
Κοσμική ακτινοβολία	0.27	8
Εσωτερική ακτινοβόληση	0.39	11
Πετρώματα	0.28	8
Ολική φυσική ακτ/λία	3	82
Ανθρωπογενής πηγές		
Οικιακές συσκευές	0.1	3
Ιατρική ακτινοβόληση	0.39	11
Πυρηνική ιατρική	0.114	4
Έκθεση εργαζομένων	< 0.01	<0.03
Πυρηνικά απόβλητα	< 0.01	<0.03
Πυρηνική επίπτωση	< 0.01	<0.03
Ολική ανθρωπογενής ακτ/λία	0.63	18
Ολική ακτ/λία	3.6	100

Πίνακας 1.3. Μέσες τιμές ετήσιας ενεργού δόσης στις ΗΠΑ και τον Καναδά [NCRP, 1987].

Παράλληλα, το γεγονός ότι το κατά τόπους οικοσύστημα, οι κλιματικές, γεωγραφικές, οικονομικές και κοινωνικές συνθήκες διαβίωσης, καθώς και οι διατροφικές συνήθειες μπορούν να επηρεάσουν την μεταφορά ραδιονουκλιδίων μέσω της τροφικής αλυσίδας και συνεπώς τις δόσεις στους ανθρώπινους πληθυσμούς, οδήγησε στη μελέτη των πιθανών συνδυασμών των παραγόντων που δίνουν τις υψηλότερες δόσεις και στην ανάπτυξη της έννοιας της *ραδιοοικολογικής ευαισθησίας* (radioecological sensitivity) [Hakanson et al., 1996; Howard, 2000]. Η κατανόηση των παραγόντων ευαισθησίας είναι σημαντική τόσο για ερευνητικούς λόγους, όσο και για τους φορείς χάραξης πολιτικής στην προσέγγιση της διαχείρισης κινδύνου ραδιορύπανσης. Πλέον, σημαντικός όγκος πληροφοριών είναι διαθέσιμες ως προς το ποιοι συνδυασμοί ραδιονουκλιδίων, περιβαλλοντικών παραμέτρων και διατροφικής συνήθειας δίνει τις υψηλότερες δόσεις στον άνθρωπο [ΙΑΕΑ, 2009; 2010].

Παρ' όλα αυτά, η έννοια της ευαισθησίας είναι σε μεγάλο βαθμό διφορούμενη και δυστυχώς αυτή η ασάφεια έχει μεταφερθεί και σε επιστημονικό επίπεδο. Στο πλαίσιο της ραδιοοικολογίας, ο Hakanson et al., 1996 αναφέρει ότι «ένα δεδομένο φορτίο (π.χ. κατακρήμνιση νέφους) οποιασδήποτε ουσίας σε μια συγκεκριμένη λίμνη

μπορεί να προκαλέσει πολύ διαφορετικές συγκεντρώσεις στο νερό και τους ζώντες οργανισμούς ανάλογα με τα χαρακτηριστικά της λίμνης και της λεκάνης απορροής του». Αντίστοιγα, σύμφωνα με συγκεκριμένη ανάλυση της ευαισθησίας περιβάλλοντος από τον Aarkrog, 1979 «οι τιμές, ολοκληρωμένες στο χρόνο, της ενεργότητας του 137 Cs και 90 Sr στο γάλα (Bq/L y⁻¹) ανά Bq/m² του νέφος ραδιονουκλιδίων που κατέπεσε εξαρτάται από τη γεωγραφική περιοχή, όπου συνέβη η μόλυνση». Η μελέτη του Howard, 2000, από την άλλη, επικεντρώθηκε στις «ατομικές και συλλογικές δόσεις για ένα δεδομένο νέφος ραδιονουκλιδίων σε διαφορετικές περιοχές». Εναλλακτικά, ο Buckley, 1982 έχει δώσει τον ορισμό της περιβαλλοντικής ευαισθησίας (environmental sensitivity), σύμφωνα με τον οποίο «η περιβαλλοντική ευαισθησία μιας δεδομένης μονάδας περιβάλλοντος, μπορεί επωφελώς να οριστεί ως η σχέση μεταξύ της απόκρισης της εν λόγω μονάδας σε μια δεδομένη πίεση και τη σοβαρότητα της επιβάρυνσης». Ο γενικότερος όρος της περιβαλλοντικής ευαισθησίας έχει από τότε αναφερθεί σε πολλές ραδιοοικολογικές μελέτες με διαφορετική ερμηνεία, ενώ πλέον έχει επικρατήσει και στην περίπτωση των ραδιονουκλιδίων.

Υπό μια έννοια, όλοι οι παραπάνω ορισμοί είναι συγκεκριμένες περιπτώσεις μιας γενικότερης αρχής κατά την οποία: Ευαισθησία είναι η επίδραση (ή σύνολο αποτελεσμάτων) Υ σε μια κατάσταση (ή σύνολο συνθηκών) Χ για μια δεδομένη επιβάρυνση (ή σύνολο πιέσεων) D. Σύμφωνα με τον ορισμό αυτό, η έννοια της ευαισθησίας είναι μια τριαδική σχέση ανάμεσα σε μια σειρά από αποτελέσματα ή συνέπειες, ένα ανεξάρτητο σύνολο προϋποθέσεων και μια σειρά συγκεκριμένων πιέσεων. Αν τα X και D μπορούν να εκφραστούν ως μαθηματικές συναρτήσεις ανεξάρτητων ή εξαρτημένων μεταβλητών, τότε εισάγεται η έκφραση $Y = S(X) \cdot D$ όπου στην περίπτωση που το Y είναι ανάλογο του D, η εξίσωση παίρνει την μορφή:

$$Y = S(X) \cdot D \Longrightarrow S(X) = \frac{Y}{D}$$
(1.18)

Έτσι, η ευαισθησία S(X) είναι ο λόγος των επιπτώσεων προς την επιβάρυνση και μπορεί να χρησιμοποιηθεί για να ταξινομηθούν οι προϋποθέσεις συνάρτηση των επιπτώσεων που αυτές έχουν. Για παράδειγμα, η επιβάρυνση D θα μπορούσε να είναι μια εναπόθεση ραδιονουκλιδίου σε μια επιφάνεια λίμνης σε Bq/m², το αποτέλεσμα Y οι συγκεντρώσεις του ραδιονουκλιδίου στο νερό και X το σύνολο των παραμέτρων που απαιτούνται για τον περιβαλλοντικό χαρακτηρισμό της λίμνης. Εάν υπάρχει ένα ευρύ φάσμα διακύμανσης στο Y για μια συγκεκριμένη παράμετρο X, π.χ. ο μέσος χρόνος παραμονής του νερού, τότε μπορούμε να πούμε ότι η συγκέντρωση ραδιονουκλιδίων στης λίμνης είναι πολύ ευαίσθητη στο μέσο χρόνο παραμονής του νερού. Ο ορισμός της περιβαλλοντικής ευαισθησίας με τον τρόπο αυτό είναι ιδιαίτερα χρήσιμος, καθώς συνάδει με την έννοια της ανάλυσης ευαισθησίας (sensitivity analysis) ραδιολογικών μοντέλων που αξιολογεί το πώς οι διακυμάνσεις των παραμέτρων του μοντέλου επηρεάζουν τα εκτιμούμενα αποτελέσματα με δεδομένες αρχικές τιμές.

Τα στοιχεία που απαρτίζουν την παραπάνω σχέση, δηλαδή το σύνολο των επιπτώσεων, των συνθηκών και των επιβαρύνσεων, προέρχονται από τρεις κύριες κατηγορίες - περιβαλλοντικούς, κοινωνικούς και οικονομικούς παράγοντες - που είναι υψίστης σημασίας στη διαδικασία λήψης αποφάσεων για τη διαχείριση των περιβαλλοντικών καταστάσεων έκτακτης ανάγκης και η επιλογή τους εξαρτάται κάθε φορά από την προσέγγιση στην ανάλυση της περιβαλλοντικής ευαισθησίας (Πίνακας 1.4). Στην τελευταία προσέγγιση από την ΙΑΕΑ [ΙΑΕΑ, 2014] ως επιβάρυνση θεωρείται η ακαριαία εναπόθεση ραδιονουκλιδίων (σε Bq/m²), κύρια επίδραση είναι οι ενεργές δόσεις σε έναν ενήλικο, παιδί 10 χρονών και αντλούν ένα μεγάλο μέρος της τροφής τους από το τοπικό περιβάλλον, ενώ στο μέλλον αναμένεται να συμπεριληφθούν και άλλες πιθανές επιπτώσεις και σε άλλα είδη οργανισμών, στο τοπικό οικοσύστημα ή στην τοπική οικονομία.

	Κατηγοριοποίηση όρων στον ορισμό της ευαισθησίας				
Αναφορά	Y	Х	D		
	Αποτέλεσμα	Συνθήκες	Επιβάρυνση		
Håkanson et al., 1996	Περιβαλλοντικός (ραδιονουκλίδια στο νερό και στους ζωντανούς οργανισμούς)	Περιβαλλοντικός (χαρακτηριστικά λιμναίων συστημάτων)	Περιβαλλοντικός (εναπόθεση ραδιονουκλιδίων)		
Aarkrog, 1979	Περιβαλλοντικός (ραδιονουκλίδια στο γάλα)	Περιβαλλοντικός (τύπος γεωγραφικής περιοχής)	Περιβαλλοντικός (εναπόθεση ραδιονουκλιδίων)		
Howard, 2000	Κοινωνικός (δόση ακτινοβόλισης)	Περιβαλλοντικός (τύπος γεωγραφικής περιοχής)	Περιβαλλοντικός (εναπόθεση ραδιονουκλιδίων)		
Shaw et al., 2001	Κοινωνικός	Οικονομικός/ Περιβαλλοντικός	Περιβαλλοντικός		
	(μείωση δόσης ακτινοβόλισης)	(οικονομικά/περιβαλλο- ντικά χαρακτηριστικά επιλεγμένων αντιμέτρων)	(ραδιορύπανση δασών)		

Πίνακας 1.4. Κατηγοριοποίηση των όρων της γενικής δομής του ορισμού της ευαισθησίας για διαφορετικούς τύπους εφαρμογών ραδιοοικολογικών εκτιμήσεων.

1.2 Ερευνητικοί στόχοι

Από την μέχρι τώρα ανάλυση είναι σαφές ότι τα ραδιονουκλίδια και συνεπώς η εκπεμπόμενη εξ αυτών ακτινοβολία, η ραδιενέργεια, αποτελεί μέρος του φυσικού περιβάλλοντος και επηρεάζει σε μεγάλο βαθμό όλα τα έμβια όντα, Παράλληλα, ανθρωπογενείς δραστηριότητες, ήδη από τα μέσα του 20^{ου} αιώνα, εμπλουτίζουν επιπλέον το περιβάλλον με τεχνητά ραδιονουκλίδια ή διαταράσσουν την κατά τόπους υπάρχουσα ισορροπία με τεχνολογική επαύξηση φυσικών ραδιονουκλιδίων

(Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Material, TENORM). Σε πολλές περιπτώσεις δε η επίδραση είναι τόσο έντονη που επηρεάζει ολόκληρη την υφήλιο για πάρα πολλά χρόνια, όπως π.χ. το τεχνητό ραδιονουκλίδιο ¹³⁷Cs από τις πυρηνικές δοκιμές έως το 1963 και το πυρηνικό ατύχημα του Chernobyl το 1986 που είναι μέχρι και σήμερα παντού ανιχνεύσιμο στο νερό και το ίζημα. Επιπλέον, στις μέρες μας, οι διαρκώς αυξανόμενες απαιτήσεις για κατανάλωση ενέργειας και η πληθώρα των εφαρμογών που χρησιμοποιούν ραδιονουκλίδια, προοιωνίζουν την ήδη αυξανόμενη παραγωγή πυρηνικών καυσίμων, παραπροϊόντων χρήσης ραδιονουκλιδίων, αλλά και αποβλήτων ή ατυχημάτων (π.χ. το πρόσφατο πυρηνικό ατύχημα στη Fukushima το 2011) που έχουν σαν τελικό αποδέκτη το περιβάλλον.

Το γεγονός αυτό σε συνδυασμό με την περιορισμένη επιστημονική γνώση για την ακριβή συμπεριφορά των ραδιονουκλιδίων στα διάφορα οικοσυστήματα καθιστούν ιδιαίτερα σημαντική τη διερεύνησή τους σε δύο βασικές κατευθύνεις: α) στην συνδυαστική μελέτη τους με όλους τους συσχετιζόμενους παράγοντες – φυσικούς, χημικούς, περιβαλλοντικούς, κ.ά. – και την εν δυνάμει χρήση τους ως μέσο έρευνας και σε άλλους επιστημονικούς τομείς και β) στην θεωρητικοποίησημοντελοποίηση της υπάρχουσας γνώσης με σκοπό να προβλεφθεί ο τρόπος αλληλεπίδρασής τους με το περιβάλλον ώστε να εξαχθούν πολύτιμα συμπεράσματα για τον τρόπο με τον οποίο επηρεάζει τα οικοσυστήματα και τον άνθρωπο. Για να πραγματοποιηθεί αυτό απαιτείται, αφενός, επέκταση και συστηματική ανανέωση των ραδιολογικών δεδομένων με αξιόπιστες πειραματικές μετρήσεις σε συνδυασμό και με άλλα διαθέσιμα πειραματικά δεδομένα και αφετέρου ανάπτυξη και βελτιστοποίηση των θεωρητικών προτύπων περιγραφής της συμπεριφοράς των ραδιονουκλιδίων στο χώρο και τον χρόνο.

Οι παραπάνω διαπιστώσεις σε συνδυασμό με το γεγονός ότι το υδάτινο περιβάλλον αποτελεί τον βασικότερο φορέα και κυριότερο τελικό αποδέκτη των ραδιονουκλιδίων αποτέλεσαν το κίνητρο της παρούσας διδακτορικής διατριβής. Κύριος στόχος ήταν η παροχή αξιόπιστων δεδομένων ραδιολογικών μετρήσεων στο υδάτινο περιβάλλον τόσο στο νερό όσο και το ίζημα, η αξιοποίησή τους ως ραδιοϊχνηθέτες για τον χαρακτηρισμό περιοχών και η χωροχρονική μοντελοποίηση της ραδιενεργού διασποράς με άμεσο στόχο τον προσδιορισμό της επίδρασής τους στον πληθυσμό.

Συγκεκριμένα, αναπτύχθηκε ολοκληρωμένη μεθοδολογία ραδιολογικού χαρακτηρισμού υδάτινων περιοχών και μοντελοποίησης της χωροχρονικής διασποράς ραδιονουκλιδίων με σκοπό την πρόβλεψη των ραδιολογικών επιπτώσεων. Η μεθοδολογία υλοποιήθηκε ενδεικτικά για μία από τις περιοχές μελέτης περιλαμβάνοντας μετρήσεις υποβάθρου (νερό και ίζημα), ενώ τα αποτελέσματα της μοντελοποίησης αξιολογήθηκαν με βάση επιστημονικά και κοινωνικά κριτήρια. Παράλληλα, οι πειραματικές μετρήσεις στο σύνολό τους παρέχουν σύγχρονα ποιοτικά δεδομένα για την εφαρμογή της μεθόδου και σε άλλες περιοχές ενδιαφέροντος, καθώς και για την ευρύτερη μελέτη του υδάτινου περιβάλλοντος με πυρηνικές μεθόδους. Στο πειραματικό κομμάτι της διατριβής, πραγματοποιήθηκαν:

- μετρήσεις ¹³⁷Cs στην υδάτινη στήλη με in situ και εργαστηριακές τεχνικές προσυγκέντρωσης σε διαφορετικά θαλάσσια περιβάλλοντα, ενώ τα αποτελέσματα αποτέλεσαν και αντικείμενο ωκεανογραφικής μελέτης με τον χαρακτηρισμό θαλασσίων μαζών με βάση την ταυτοποίησή τους (ραδιοϊχνηθέτηση).

- προσδιορισμός της κατακόρυφης διασποράς ραδιονουκλιδίων σε πυρήνες ιζήματος από χαρακτηριστικά δυναμικά περιβάλλοντα με υπολογισμό της συνολικής εναπόθεσης ραδιονουκλιδίων κατακρήμνισης (²¹⁰Pb_{ex} και ¹³⁷Cs) και γεωλογική εκτίμηση ρυθμού ιζηματογένεσης με τεχνικές ραδιοχρονολόγησης.

- ραδιολογική χαρτογράφηση πυθμένα (TENORM και ¹³⁷Cs) περιοχών με έντονη ανθρωπογενή δραστηριότητα με τη μέτρηση επιφανειακών ιζημάτων με ανιχνευτές HPGe, με ραδιοοικολογική μελέτη της επιφανειακής διασποράς ραδιονουκλιδίων για τον εντοπισμό σημείων φόρτου και ραδιοχημική συσχέτιση της ενεργότητάς τους με χαρακτηριστικά του ιζήματος (βαρέα μέταλλα, κοκκομετρία και οργανικό άνθρακα)

ενώ στο θεωρητικό κομμάτι υλοποιήθηκε:

- μοντελοποίηση της χωροχρονικής διασποράς ραδιονουκλιδίων (137 Cs και 90 Sr) με την ανάπτυξη στοχαστικού πρότυπου με την μέθοδο διακριτοποίησης σε ομογενοποιημένες υποπεριοχές (box model).

Εδώ πρέπει να σημειωθεί ότι δεδομένης της πολυπλοκότητας των ραδιολογικών μοντέλων για τέτοια πολυπαραμετρικά συστήματα, όπως το παράκτιο θαλάσσιο περιβάλλον, είναι απαραίτητες χρονοσειρές δεδομένων υψηλής ποιότητας ώστε να είναι δυνατή η βαθμονόμησή τους και η μεγαλύτερη δυνατή εξάλειψη της τυχαιότητάς τους. Σε αυτά τα πλαίσια εντάσσεται και η πραγματοποίηση ενός μεγάλου αριθμού μετρήσεων πεδίου, που μέρος τους χρησιμοποιήθηκαν και στην ανάπτυξη ραδιολογικού προτύπου. Επιπλέον, η υλοποίηση των παραπάνω εφαρμογών έγινε έτσι ώστε να καλυφθεί και ένα ευρύ, όσο το δυνατόν, φάσμα αντιπροσωπευτικών περιπτώσεων που, παράλληλα, να παρουσιάζουν ερευνητικό ενδιαφέρον και να έχουν κοινωνικό αντίκτυπο, όπως αναλύεται και στη συνέχεια.

1.3 Περιοχές μελέτης

Η προτεινόμενη μεθοδολογία και όλες οι πειραματικές μετρήσεις πραγματοποιήθηκαν σε σημεία ενδιαφέροντος στην ευρύτερη περιοχή του Αιγαίου Πελάγους στη ΒΑ Μεσόγειο. Πρόκειται για μια θαλάσσια περιοχή με περίπλοκη και εκτεταμένου μήκους ακτογραμμή, συμπεριλαμβάνοντας πλήθος κόλπων, πορθμών και ισθμών, νησιών και βραχονησίδων (περισσότερα από 2000), πολύπλοκη βυθομετρία, που συγκροτείται από τρεις κύριες βαθιές λεκάνες (με μέγιστο βάθος τα 2 km) μεταξύ των οποίων εκτείνονται ρηχές υφαλοκρηπίδες νησιωτικά οροπέδια και βαθιές υπο-λεκάνες, ενώ παράλληλα αποτελεί την τέταρτη σε μέγεθος (με 1.8·10⁵ km² επιφανειακή κάλυψη και 8.5·10⁴ km³ όγκο νερού) θαλάσσια περιοχή της Ανατολικής Μεσογείου, ημίκλειστη, καθώς από τα Νότια φράσσεται από την Κρήτη, και σχετικά ρηχή με μέσο βάθος 450 m [Velaoras and Lascaratos, 2005]. Στα βόρεια συνδέεται μέσω των στενών των Δαρδανελίων (με μέσο μήκος 62 km, πλάτος 1.3-7,0 km και μέσο βάθος 55 m) με την κατά πολύ μικρότερη (με 1.15·10⁴ km² επιφανειακή κάλυψη και $378 \cdot 10^3$ km³ όγκο νερού και μέγιστο βάθος 1.39 km) με την κλειστή Θάλασσα του Μαρμαρά που εν συνεχεία βορειοανατολικά καταλήγει στη Μαύρη Θάλασσα μέσω των στενών του Βοσπόρου (με μήκος 31 km, πλάτος 0.7-3.5 km και μέσο βάθος 35 m) [Besiktepe et al., 1994; Stashchuk and Hutter, 2001], ενώ στα νότια μέσω του ρηχού περάσματος των στενών του Ανατολικού Κρητικού Τόξου του Κρητικού Πελάγους με το Ιόνιο Πέλαγος και την δεύτερη μεγαλύτερη λεκάνη της Μεσογείου, την Θάλασσα της Λεβαντίνης [Triantafyllou et al., 2002].

Η έντονη αλληλεπίδραση της υπό μελέτη περιοχής με τα νερά από τη Μαύρη Θάλασσα και την Ανατολική Λεβαντίνη, που παρουσιάζουν εντελώς διαφορετικά ωκεανογραφικά χαρακτηριστικά (πυκνότητα, θερμοκρασία και αλατότητα) [Theocharis et al., 2003], συγκροτούν ένα υδρολογικά πολύ δυναμικό περιβάλλον με ρυθμιστικό ρόλο στην εποχιακή τροποποίηση της θερμοαλατικής κυκλοφορίας σε όλη την Ανατολική Μεσόγειο [Lascaratos et al., 1999; Nittis et al., 2003; Gertman et al., 2006]. Πρόκειται επίσης για μία έντονα ολιγοτροφική περιοχή [Ignatiades, 2005] με μικρή αφθονία φυτοπλαγκτονικών πληθυσμών σε συνδυασμό με τον σγετικά υψηλό αριθμό ειδών [Karageorgis et al., 2003] και πολύ σημαντική αλιευτική παραγωγή και πολλές ιχθυοκαλλιέργειες [Becacos-Kontos, 1977, Tzanatos et al., 2006; Tsagarakis et al., 2010]. Παράλληλα, η μεγάλη πληθυσμιακή πυκνότητα και διατροφική εξάρτηση, η ύπαρξη πολλών παράκτιων πόλεων και η έντονη τουριστική δραστηριότητα καθιστούν την περιοχή ιδιαίτερα σημαντική και αντικείμενο μελέτης πολλών επιστημονικών ερευνών. Από ραδιολογική άποψη, πρόκειται για την πιο επιβαρυμένη θαλάσσια περιογή της Μεσογείου λόγω των αποθέσεων ραδιονουκλιδίων από το ατύχημα του Chernobyl το 1986. Συγκεκρημένα, στο Αιγαίο και στο Ιόνιο Πέλαγος κατά μήκος των Ελληνικών ακτών πραγματοποιήθηκε κατακρήμνιση 0.8 PBq 137 Cs [Kritidis et al., 1990], που αντιστοιχούν περίπου σε 4 kBq/m^2 [Florou and Kritidis, 1994], $\varepsilon v \omega$ or $\alpha v \tau i \sigma \tau o \tau v \varepsilon c$ a $\pi o \theta \varepsilon \sigma \varepsilon c \sigma \tau o \sigma v v \sigma \lambda o \tau r c$ Μεσόγειου Θάλασσας ήταν 2.8 PBq [Livingston and Povinec, 2000] και 1.7-2.4 PBq στη Μαύρη Θάλασσα [Nikitin et al., 1988; Vakulovsky et al., 199]. Επιπλέον, πραγματοποιείται συνεχή εισροή ραδιονουκλιδίων από την Μαύρη Θάλασσα μέσω των στενών των Δαρδανελίων, συνολικά 0.4 PBq ¹³⁷Cs έως το 2000 [Egorov et al., 1999], μέχρι και σήμερα με 0.01 PBq/y [Delfanti et al., 2014]. Όλα τα παραπάνω αποτελούν τους λόγους για τους οποίους επιλέχθηκε η συγκεκριμένη περιοχή ως πεδίο έρευνας και εφαρμογής της μεθοδολογίας που αναπτύσσεται στην παρούσα εργασία. Επιπροσθέτως, πρέπει να σημειωθεί ότι η ευρύτερη θαλάσσια περιοχή της ΒΑ Μεσογείου αποτελεί ως επί το πλείστον και το πεδίο δράσης του Ελληνικού Κέντρου Θαλασσίων Ερευνών, σε συνεργασία με το οποίο πραγματοποιήθηκε η διδακτορική διατριβή, δίνοντας τη δυνατότητα να πραγματοποιηθούν πλήθος επιτόπιων ερευνών και παρέχοντας δεδομένα υψηλής ποιότητας.

Κατηγοριοποιώντας τις μετρήσεις που έγιναν στα πλαίσια της διατριβής ανά θεματική ενότητα, προκύπτουν οι τοποθεσίες που πραγματοποιήθηκαν πειραματικές δειγματοληψίες, μαζί με το όνομα του σταθμού δειγματοληψίας και τα ιδιαίτερα χαρακτηριστικά βάση των οποίων επιλέχθηκαν. Αναλυτικά είναι τα εξής :

α) Μετρήσεις συγκεντρώσεων 137 Cs (σε Bq/m³) στην υδάτινη στήλη:

- Λιμάνι Θεσσαλονίκης (σταθμός TH-P), ως χαρακτηριστικό εμπορικό και τουριστικό λιμάνι μεγάλης κυκλοφορίας.

- Ακτή Βάρης (σταθμός SA-G), ως παράκτια αστική περιοχή με έντονη παραθεριστική δραστηριότητα.

- Περιοχή Λιτόχωρου (σταθμός ΚΑΤ), ως σημείο ανοικτής θάλασσας μεγάλου βάθους σε τοποθεσία με έντονη εισρροή επιφανειακών υδάτων.

- Περιοχή Άθω (σταθμοί DB2 και ATH), ως θαλάσσια περιοχή εισόδου των υδάτων της Μαύρης Θάλασσας και με μία από τις τρείς βαθιές λεκάνες του Αιγαίου.

β) Μετρήσεις κατακόρυφης διασποράς ραδιονουκλιδίων σε πυρήνων ιζήματος:

Κόλπος Θεσσαλονίκης (σταθμοί AM2,4,5,7 και 10), ως χαρακτηριστικός ανοιχτός κόλπος, μέρος του μεγαλύτερου κόλπου (Θερμαϊκός Κόλπος) στο Β Αιγαίο.

 Κόλπος Ελευσίνας (σταθμός S2),ως ημίκλειστος κόλπος έντονα ρυπασμένος από υψηλή ανθρωπογενή δραστηριότητα με δειγματοληψία στο βαθύτερο σημείο του.

- Αμβρακικός Κόλπος (σταθμοί 13Α και 13Β) ως μικρός κλειστός κόλπος, με δειγματοληψίες από την παράκτια ζώνη και κεντρικό σημείο μεγάλου βάθους.

- Κορινθιακός Κόλπος (σταθμός COR82b) ως μεγάλος κλειστός κόλπος, με δειγματοληψίες από πρανές θαλάσσιου ρήγματος.

- Παραλία Λιτόχωρου (σταθμός LT-10), ως σημείο σε εκβολή ποταμού (Μαυρονέρης) μεγάλης ροής και υψηλής απόθεσης φερτής ύλης.

- Ulubat Gölü (σταθμός ΠΝΤ-Κ12-07), ως λίμνη με σημείο δειγματοληψίας στο δέλτα εκβολής ποταμού (Mustafakemalpaşa).

 γ) Μετρήσεις οριζόντιας διασποράς ραδιονουκλιδίων σε δίκτυο δειγμάτων ιζήματος πυθμένα:

 Ακτή Αερολιμένα Θεσσαλονίκης (δίκτυο σταθμών AM), ως σχετικά αδιατάρακτη περιοχή στο BA Θερμαϊκό Κόλπο με πυκνό δίκτυο σημείων δειγματοληψίας.

- Πορθμός Σαλαμίνας-Πειραιά (δίκτυα σταθμών X και KER), ως επιβαρυμένη περιοχή από ανθρωπογενή δραστηριότητα πολλών ετών στο BA Σαρωνικό Κόλπο.



Σχήμα 1.11. Σταθμοί δειγματοληψιών νερού (Δ), πυρήνων ιζήματος (●) και δικτύων επιφανειακών δειγμάτων ιζήματος (□), στην περιοχή μελέτης του ΒΑ Μεσογείου.

Πρέπει τέλος να σημειωθεί ότι τα όλα πειραματικά δεδομένα από την περιοχή του Θερμαϊκού Κόλπου (Λιμάνι και Ακτή Αερολιμένα Θεσσαλονίκης, Κόλπο Θεσσαλονίκης, Παραλία Λιτόχωρου) αξιοποιήθηκαν και για την ανάπτυξη του χωροχρονικού ραδιολογικού μοντέλου της περιοχής στο θεωρητικό κομμάτι της εργασίας. Στην συνέχεια, γίνεται αναλυτική περιγραφή των επιμέρους περιοχών που πραγματοποιήθηκαν οι δειγματοληψίες.

1.3.1 Βόρειο Αιγαίο

Το Βόρειο Αιγαίο είναι μία από τις σημαντικότερες περιοχές διαμόρφωσης βαθέων υδάτων της Μεσογείου και είναι ο σύνδεσμός της με την Μαύρη Θάλασσα διαμέσου του λεγόμενου Συστήματος Τουρκικών Στενών (Turkish Straits System) TSS [Ozsoy, 2002; Zervakis et al., 2003]. Βαθυμετρικά αποτελείται από ρηχά πλατό και ιδιαίτερα βαθιές λεκάνες. Οι σημαντικότερες ρηχές περιοχές είναι το πλάτωμα της Λήμνου κοντά στην έξοδο των Δαρδανελίων (40.1°N, 26.2°E) και το πλάτωμα της Σαμοθράκης στην βορειοανατολική περιοχή, ενώ ιδιαίτερα εκτεταμένες περιοχές υφαλοκρηπίδας εντοπίζονται ανατολικά (Στρυμονικός Κόλπος), δυτικά (Θερμαϊκός Κόλπος) της Χαλκιδικής και βορειοανατολικό άκρο της περιοχής (Κόλπος του Σάρου). Βαθύτερος σχηματισμός είναι η τάφρος του Βορείου Αιγαίου, μία αλληλουχία βαθιών λεκανών που φτάνουν μέχρι και το βάθος των 1550 m, η οποία είναι απομονωμένη σε βάθη μεγαλύτερα των 350 m και περιέχει όγκο νερού 3.2·10³ km³. Η Τάφρος του Βορείου Αιγαίου (North Aegean Trough) ΝΑΤ, με διεύθυνση από τα βορειοανατολικά προς τα νοτιοδυτικά αποτελείται από τις βαθιές λεκάνες της Λήμνου στα βόρεια με μέγιστο βάθος τα 1550 m, του Άθω στα κεντρικά με μέγιστο βάθος τα 1149 m και των Β. Σποράδων στα νότια με μέγιστο βάθος τα 1476 m, οι οποίες διαχωρίζονται μεταξύ τους με εκτεταμένες υφαλοκρηπίδες (350-400 m) διακόπτοντας την απευθείας μεταξύ τους οριζόντια επικοινωνία. Αυτό έχει σαν αποτέλεσμα την απομόνωση των νερών των βαθιών λεκανών και την επικοινωνίαανανέωση των στρωμάτων αυτών με την υπόλοιπη θάλασσα κυρίως με κατακόρυφη ανάμειξη [Velaoras and Laskaratos, 2005].



Σχήμα 1.12. Βαθυμετρία της περιοχής του Βόρειου Αιγαίου [Papanikolaou et. al, 2002].

Οι κύριες θαλάσσιες μάζες που συγκροτούν τον υδατικό όγκο του Βορείου Αιγαίου, περιλαμβάνουν: (α) τα επιφανειακά νερά από τη Μαύρη Θάλασσα (Black Sea Water) BSW με πολύ μικρή αλατότητα και χαμηλή θερμοκρασία. (β) τα επιφανειακά νερά από την Ανατολική Λεβαντίνη (Levantine Surface Water) LSW, με εξαιρετικά υψηλή αλατότητα και υψηλή θερμοκρασία. (γ) τα ενδιάμεσα διαμορφωμένα νερά από την Ανατολική Λεβαντίνη (Levantine Intermediate Water) LIW, που δημιουργούνται τη χειμερινή περίοδο από την ανάμειξη των LSW που ψύχονται και εξ' αιτίας της υψηλής αλατότητας γίνονται πυκνότερα από τα υποκείμενα στρώματα, συνεπώς βυθίζομενα αναμιγνύονται με αυτά και (δ) τα βαθιά νερά (Deep Water) DW που καταλαμβάνουν τις βαθιές λεκάνες και υπολεκάνες έχοντας πολύ υψηλές τιμές πυκνότητας συγκαταλεγόμενα μεταξύ των πυκνότερων μαζών του παγκόσμιου ωκεανού [Μποκώρος, 2006].

Αποτέλεσμα της αλληλεπίδρασης υδάτινων μαζών με έντονες αποκλίσεις στις φυσικογημικές και βιογεωχημικές τους παραμέτρους αποτελεί η έντονη εποχιακή στρωματοποίηση της υδάτινης στήλης, με κύριο ρόλο αυτό των BSW που αφ` ενός την ευνοούν μέσω της δημιουργίας έντονων μετώπων, αφετέρου ανταγωνίζονται τη δημιουργία της διότι δρουν σαν μονωτικό στρώμα στην αλληλεπίδραση της υδάτινης στήλης με την ατμόσφαιρα [Zervakis et al., 2001]. Εποχιακές ή άλλης κλίμακας διακυμάνσεις των εισροών BSW από τα Δαρδανέλια, επιδρούν έντονα στην θερμοαλατική κυκλοφορία της ευρύτερης θαλάσσιας περιοχής, ενώ δευτερεύουσας βαρύτητας και τοπικής εμβέλειας παράγοντες επιρροής στο καθεστώς της υδάτινης στήλης της περιοχής αποτελούν οι εκβολές ποταμών και οι συνδεόμενες με ανέμους βόρειας ή νότιας διεύθυνσης, αναβλύσεις και καταβλύσεις θαλάσσιων μαζών [Zodiatis and Balopoulos, 1993; Ivanov et al., 2001; Nittis et al., 2006]. Λόγω της ανάμειξης των υδάτων, η αλατότητα του επιφανειακού θαλάσσιου στρώματος ποικίλει χωρικά και εποχιακά, με τιμές κάτω των 31 psu στις βόρειες περιοχές, έως πάνω από 39 psu στις νότιες, ενώ τιμές της τάξης των 25 psu επικρατούν στις περιοχές όπου εκβάλλουν ποταμοί. Οι μέγιστες χωρικές διακυμάνσεις στην επιφανειακή αλατότητα εμφανίζονται τη θερμή περίοδο, ενώ τον γειμώνα και το φθινόπωρο η επιφανειακή κατανομή αλατοτήτων είναι πιο ομοιόμορφη [Poulos et al., 1997]. Η πυκνότητα του θαλασσινού νερού στο επιφανειακό στρώμα της υδάτινης στήλης επηρεάζεται από την κατανομή τόσο της θερμοκρασίας όσο και της αλατότητας [Poulos et al., 1997].

Η ετήσια εκροή των BSW στο Αιγαίο είναι περίπου 1300 km³/y και η αντίστοιχη παροχή των νερών του Αιγαίου που εισέρχονται στα Δαρδανέλια είναι 1000 km³/y, δηλαδή, ο καθαρός όγκος που ανταλλάσσεται μέσω των Δαρδανελίων αντιστοιχεί σε είσοδο 300 km³/y [Unluata et al. 1993]. Στην περιοχή του B. Αιγαίου, εμφανίζονται δύο βασικά πρότυπα κυκλοφορίας των BSW: (a) ο BΔ Κλάδος που χαρακτηρίζεται από μία αρχική διάδοση προς τα δυτικά και προς τα βορειοδυτικά ανάμεσα στην Λήμνο και στην Ίμβρο, και (β) ο ΝΔ Κλάδος που αφορά στην νοτιοδυτική κίνηση προς την περιοχή νότια της Λήμνου [Zodiatis, 1994; Jonsson, 2002]. Σειρά μαθηματικών προσομοιώσεων έδειξαν ότι το χειμώνα τα BSW συγκεντρώνονται κυρίως στην περιοχή μπροστά στην έξοδο των Δαρδανελίων, ενώ διάφορα πρότυπα κυκλοφορίας υφάλμυρων νερών αναπτύσσονται κατά την διάρκεια της άνοιξης που το καλοκαίρι σχηματίζεται ένας εμφανής αντικυκλώνας εκροής μπροστά από την έξοδο [Kourafalou and Barbopoulos, 2003]. Ο αντικυκλώνας με τη σειρά του σχηματίζει ένα έντονο κατάντι βόρειο παράκτιο ρεύμα κατά μήκος των ακτών της Μικράς Ασίας, το οποίο συμβάλλει σημαντικά στην ανάπτυξη της κυκλωνικής κυκλοφορίας κατά μήκος των βόρειων και δυτικών ελληνικών ακτών. Παράλληλα, στην βορειοανατολική περιοχή, το σημαντικότερο πρότυπο κυκλοφορίας είναι ο Αντικυκλώνας της Σαμοθράκης, ο οποίος σχετίζεται με το χρονικό διάστημα παραμονής των BSW στην περιοχή του B. Αιγαίου [Zervakis and Georgopoulos, 2002].



Σχήμα 1.13. Σύνοψη των βασικότερων προτύπων κυκλοφορίας του Β. Αιγαίου, όπως προέκυψε από τα αποτελέσματα ενός μεγάλου αριθμού μελετών είτε με μαθηματικές προσομοιώσεις είτε με παρατηρήσεις πεδίου [Ανδρουλακάκης, 2011].

Όσον αφορά τα νερά της Θάλασσας της Λεβαντίνης, λόγω των υψηλών ρυθμών εξάτμισης τη θερμή περίοδο και των περιορισμένων ποταμογενών και χερσογενών εισρροών, αποτελούν τα αλμυρότερα και θερμότερα επιφανειακά νερά της Μεσογείου. Καλύπτουν τα ενδιάμεσα (LIW) και τα επιφανειακά στρώματα (LSW) του Β. Αιγαίου, αφού εισέλθουν από τα ανατολικά Κρητικά Στενά και διασχίσουν το νοτιοανατολικό Αιγαίο, με μέση θερμοκρασία, αλατότητα και πυκνότητα στους 14-15°C, 38.8-39.1 psu και 1029.1 kgr/m³ αντίστοιχα [Velaoras and Laskaratos, 2005]. Τα LSW και τα LIW εισέρχονται στο Αιγαίο και κινούνται προς βορρά υπό την επίδραση του Ρεύματος της Μικράς Ασίας [Zodiatis et al., 1998]. Τα LIW εισέρχονται κυρίως στα ενδιάμεσα στρώματα του Β. Αιγαίου σε βάθος 200-600 m κάτω από τα LSW και τα BSW, ενώ η γενική κυκλοφορία τους ταυτίζεται με την κυκλωνική κυκλοφορία του βόρειου και κεντρικού Αιγαίου, όπου και συναντώνται με τα αντίρροπα κινούμενα BSW σχηματίζοντας νότια της Λήμνου ένα έντονο μέτωπο θερμότητας και αλατότητας, το οποίο αποτελεί μια από τις κυριότερες ημιμόνιμες δυναμικές δομές της περιοχής [Robinson et al., 1992; Triantafyllou et al., 2002]. Τα LSW με υψηλότερη αλατότητα εισέρχονται στο Β. Αιγαίο από τα στενά Κυκλάδων-Ικαρίας και φτάνουν μέχρι την υφαλοκρηπίδα νότια της Λήμνου, όπου συνήθως σχηματίζουν ένα απότομο θερμοαλατικό μέτωπο με τα επιφανειακά υφάλμυρα BSW.

Η είσοδος των νερών αυτών είναι έντονη την άνοιξη, μειώνεται το καλοκαίρι και γίνεται ξανά εμφανής τους φθινοπωρινούς μήνες. Καθώς τα ενδιάμεσα νερά διαδίδονται στο Β. Αιγαίο κατά μήκος της ανατολικής ακτής της Μικράς Ασίας, αναμιγνύονται με τα ανώτερα υφάλμυρα νερά, με αποτέλεσμα να εκρέουν από το δυτικό Β. Αιγαίο προς το νότο με χαμηλότερες αλατότητες [Zervakis and Georgopoulos, 2002].

Η υδροδυναμική κυκλοφορία της περιοχής επηρεάζεται τέλος σημαντικά από την εισροή νερών χαμηλότερης αλατότητας σε σχέση με τα νερά του Β. Αιγαίου, από ένα πλήθος εκβολών ποταμών που βρίσκονται σε όλο το μήκος της περιβάλλουσας παράκτιας ζώνης. Η ύπαρξη υφάλμυρων νερών σε διάφορες περιοχές του Β. Αιγαίου έχει σαν αποτέλεσμα την μεταβολή των επιφανειακών κυρίως φυσικών παραμέτρων της θάλασσας με αποτέλεσμα τον σχηματισμό συγκεκριμένων θερμοαλατικών χαρακτηριστικών κυκλοφορίας. Εκτός από την επίδραση στην υδροδυναμική της περιοχής, οι εκροές υφάλμυρων και γλυκών νερών μπορούν να εισάγουν σημαντική ποσότητα φερτών υλικών στο θαλάσσιο περιβάλλον, τα οποία επηρεάζουν την γεωμορφολογία της παράκτιας ζώνης, ενώ οι εκρροές των ποταμών μεταφέρουν σημαντικές ποσότητες χημικών και βιολογικών καταλοίπων, τα οποία πολλές φορές υποβαθμίζουν την ποιότητα της θάλασσας. Οι σημαντικότεροι ποταμοί του Β. Αιγαίου είναι ο Αξιός και ο Αλιάκμονας στο βόρειο Θερμαϊκό Κόλπο, ο Πηνειός στο νότιο Θερμαϊκό Κόλπο, ο Στρυμόνας στον Στρυμονικό Κόλπο, ο Νέστος βόρεια της Θάσου και ο Έβρος στα βορειοανατολικά της Σαμοθράκης. Η συνολική ποσότητα νερού που εκρέει από τους παραπάνω ποταμούς αγγίζει περίπου τα 19 km³/y, ενώ οι ποταμοί που εκρέουν από τις ακτές τις Μ. Ασίας παρουσιάζουν πολύ μικρότερη συνολική παροχή, η οποία είναι της τάξης των 1.2 km³/y [Βελαώρας, 2008].

1.3.2 Θερμαϊκός Κόλπος

Ο Θερμαϊκός Κόλπος είναι ένας ανοιχτός κόλπος που βρίσκεται στο βορειοανατολικό άκρο της υφαλοκρηπίδας του Αιγαίου (40.20° N, 23.00 °E) και καλύπτει περίπου 3630 km². Πρόκειται για μια σχετικά ρηχή παράκτια περιοχή με βάθος που κυμαίνεται από 10 έως 150 m. Περιορίζεται στα ανατολικά από την χερσόνησο της Χαλκιδικής, στα βόρεια και δυτικά από την ηπειρωτική Ελλάδα, ενώ στα νότια επικοινωνεί με βαθιά λεκάνη των Σποράδων. Χωρίζεται στον εσωτερικό και εξωτερικό Θερμαϊκό Κόλπο στο ύψος της Κατερίνης, ενώ στο ρηχότερο βόρειο άκρο σχηματίζεται ο μικρότερος Κόλπος της Θεσσαλονίκης. Η υδρολογία της περιοχής επηρεάζεται έντονα από το BSW και τις απορροές από μεγάλα ποτάμια που συνδέονται με ευρείες λεκάνες απορροής. Πέντε μεγάλοι ποταμοί είναι οι κύριες πηγές γλυκού νερού, θρεπτικών ουσιών και ιζήματος στον κόλπο: οι γειτονικοί ποταμοί Αξιός, Λουδίας, Αλιάκμονας και ο μικρότερος Γαλλικός στα βόρεια, και ο Πηνειός νοτιότερα, που εκβάλει κάθετα στην βαθύτερη λεκάνη του νοτιοδυτικού κόλπου από μία σχετικά στενή εκβολή. Ο συνδυασμός της χαμηλής παροχής του, της στενής εκβολής του και του παράκτιου ρεύματος προς το νότο έχει σαν αποτέλεσμα την κίνηση των υφάλμυρων νερών του προς το νότο, κυρίως κατά την περίοδο δυνατών βόρειων ανέμων [Poulos et al., 2000; Kourafalou and Tsiaras, 2007]. Στην περίπτωση απουσίας ανέμων μια ποσότητα υφάλμυρων νερών είναι πιθανόν να κινηθεί και προς την αντίθετη κατεύθυνση από την κλασική αντικυκλωνική κίνηση (αντικυκλώνας εκρροής) των εκρροών στο βόρειο ημισφαίριο. Έτσι, μπορεί να σχηματιστεί μία επιμήκης λωρίδα υφάλμυρων νερών κατά μήκος της ακτής βόρεια και νότια της εκρροής [Karageorgis et al., 2000].



Σχήμα 1.14. Βαθυμετρία (σε m) του Θερμαικού Κόλπου στο Β. Αιγαίο.

Ο κόλπος αποτελεί μέρος του παράκτιου συστήματος της νότιας πλευράς της αλπικής ορογενικής ζώνης, με ήπιο κλίμα, υψηλή υγρασία και χωρίς παλίρροιες. Το παράκτιο σύστημα του Θερμαϊκού χαρακτηρίζεται από σημαντική χωρική και χρονική ετερογένεια, όσον αφορά στις υδάτινες μάζες και τη μεταφορά ιζημάτων από την ξηρά προς την υφαλοκρηπίδα και τις βαθιές λεκάνες, το σχηματισμό και την εξέλιξη της παράκτιας ζώνης, τις διεργασίες αλληλεπίδρασης εδάφους και αέρα, τις διάφορες κοινωνικο-οικονομικές πτυχές της περιοχής και τις επιπτώσεις τους στο φυσικό περιβάλλον. Η θαλάσσια κυκλοφορία είναι κυρίως ανεμογενής καθώς οι παλίρροιες της περιοχής είναι συγκριτικά μικρές με ένα μέσο εύρος μεταβολής ύψους 0.25 m. Συνολικά, η κυκλοφορία επηρεάζεται από την παράκτια δυναμική και την αλληλεπίδραση με τις ροές μεγάλης κλίμακας των νερών του Αιγαίου, και κυρίως των BSW. Παράλληλα, οι τοπογραφικές ιδιαιτερότητες του B. Αιγαίου συντελούν στον σχηματισμό συγκεκριμένων παράκτιων ρευμάτων, ρευμάτων ανάμεσα σε νησιά και μόνιμων στροβίλων. Ο στρόβιλος των B. Σποράδων παρουσιάζει εναλλαγές στην φορά του, με πιο μόνιμη κατάσταση την κυκλωνική κίνηση, ενώ κυρίως το φθινόπωρο παρατηρείται μετατροπή του κυκλώνα σε αντικυκλώνα λόγω της εμφάνισης των υφάλμυρων BSW, που διαμορφώνουν σε μεγάλο βαθμό και τους υπόλοιπους κλάδους κυκλοφορίας του Θερμαϊκού Κόλπου [Lykousis et al., 2002; Olson et al., 2007].



Σχήμα 1.15. (Α) Γεωγραφικός χάρτης της λεκάνης απορροής του παράκτιου συστήματος του Θερμαϊκού Κόλπου, ΒΔ Αιγαίο και (Β) Λιθολογία της περιοχής της παράκτιας ζώνης του Θερμαϊκού κόλπου [Q: πρόσφατοι σχηματισμοί, κυρίως προσχώσεις, αποθέσεις ποταμών, αμμόλοφοι, ηφαιστειακά συσσωματώματα; Q1: παράκτιες, ποτάμιες, δεταϊκές και μετακινούμενες εναποθέσεις, Pt: παλιές προσχώσεις, σάρες, κωνικά και επίπεδα υψώματα, κυρίως Πλειστόκαινου εποχής, Ν: μάργες, κυρίως ασβεστόλιθοι, αργιλώδεις μάργες, άμμους, ψαμμίτες, κροκαλοπαγή Νεογενούς και,κατά τοόπους, Πλειστόκαινου εποχής, Κρ: ασβεστόλιθοι και δολομίτες της Πελαγονικής ζώνης, Κto: ασβεστόλιθοι της ζώνης του Ολωνού και της Πίνδου, Βα: βασικά και πολύ βασικά πυριγενή πετρώματα, Gn: γνεύσιοι, αμφιβολίτες μαζί με κρυσταλλικούς σχιστόλιθους και κ: μάρμαρα, κρυσταλλικοί ασβεστόλιθοι και σιπολίτες] (με βάση γεωτεκτονικό χάρτη του ΙΓΜΕ, 1989).

Σημαντικό ρόλο, στην κυκλοφορία των υδάτων του κόλπου, παίζουν και οι δυνάμεις άνωσης λόγω των πυκνομετρικών διαφορών που δημιουργούνται τόσο από τα υφάλμυρα νερά των εκβολών των ποταμών όσο και από πυκνότερα νερά του Αιγαίου στα βαθύτερα στρώματα. Το αποτέλεσμα είναι ο σχηματισμός δύο συγκεκριμένων προτύπων κυκλοφορίας. Το πρώτο πρότυπο παρατηρείται κατά την περίοδο των χαμηλών θερμοκρασιών (χειμώνας-άνοιξη), όπου η εκροή των ποταμών είναι υψηλή. Τότε, χαμηλής αλατότητας νερό επικρατεί στην δυτική περιοχή του κόλπου ρέοντας ταυτόχρονα προς τα νότια, ενώ τα ενδιάμεσα νερά μεταφέρονται προς το βορρά και τα πολύ βαθιά πυκνά νερά του εσωτερικού κόλπου μεταφέρονται και αυτά προς τον νότο. Επίσης, ένας δεύτερος τύπος κυκλοφορίας διαφαίνεται κατά την καλοκαιρινή περίοδο, όπου χαμηλής αλατότητας νερά περιορίζονται στην δυτική περιοχή, όπου οι παροχές των ποταμών είναι χαμηλές εμφανίζοντας μία αριστερόστροφη κυκλοφορία στην κεντρική περιοχή του κόλπου. Η αύξηση των παροχών εκρροής έχει σαν συμπέρασμα την έναρξη ευρύτερης κυκλωνικής κυκλοφορίας στο κόλπο, που επεκτείνεται μέχρι και τον εσωτερικό κόλπο με εντονότερη επιφανειακή κίνηση προς τα νότια κατά μήκος της δυτικής ακτής [Poulos et al., 2000; Krestenitis et al., 2005].

Όπως αναφέρθηκε οι άνεμοι αποτελούν τον κύριο μηχανισμό κυκλοφορίας των ποταμών και των θαλάσσιων υδάτων και μεταφοράς υλικών. Στην περιοχή επικρατούν συνήθως ισχυροί άνεμοι (> 10 m/s) με νότια/νοτιοανατολική κατεύθυνση, το οποίο είναι ένα χαρακτηριστικό του Αιγαίου και της Ανατολικής Μεσογείου γενικότερα. Οι άνεμοι αυτοί συχνά παρουσιάζουν σημαντική ημερήσια διακύμανση, με αυξημένη ένταση κατά τη διάρκεια της ημέρας, ενώ τη νύχτα υποχωρούν. Επιτόπιες παρατηρήσεις δείχνουν μια γενική αριστερόστροφη δίνη στην βόρεια περιοχή της Ακτής της Θεσσαλονίκης υπό κανονικές μετεωρολογικές συνθήκες, γεγονός που μπορεί να αποδοθεί στη ροή γλυκού νερού των ποταμών έξω από τον κόλπο κατά μήκος του δυτικού παράκτιου ορίου [Latinopoulos et al., 1996].

Η μεταφορά ύλης διέπεται από την αλληλεπίδραση μεταξύ ξηράς και θάλασσας, όπου οι ποταμοί αποτελούν τις κύριες πηγές των υδάτων χαμηλής αλατότητας, ιζημάτων και θρεπτικών συστατικών. Η υδροδυναμική κυκλοφορία του ανέμου έχει ιδιαίτερη σημασία, καθώς ο κλειστός χαρακτήρας της περιοχής την καθιστά επιρρεπή σε προβλήματα ρύπανσης. Τα λύματα εισέρχονται στον Κόλπο, με τη μορφή ανεπεξέργαστων οικιακών και βιομηχανικών λυμάτων από την πόλη της Θεσσαλονίκης, ενώ οι ποταμοί συμβάλλουν σημαντικά στις φορτίσεις της ρύπανσης του αζώτου και του φωσφόρου αφού αποστραγγίζουν εντατικά καλλιεργούμενες εκτάσεις. Οι μετρήσεις της ποιότητας του νερού δείχνουν υψηλά επίπεδα μικροβιολογικής μόλυνσης στο εσωτερικό του κόλπου, όπου η κολύμβηση και το ψάρεμα απαγορεύονται. Ο βυθός του Θερμαϊκού Κόλπου αποτελείται από ένα μείγμα κλασμάτων άμμου και λάσπης. Η άμμος συνήθως εναποτίθεται γύρω από τις εκβολές των ποταμών και την ακτή, ενώ ιλύς και άργιλοι εναποτίθενται στα ανοιχτά [Balopoulos, 1982].

1.3.3 Σαρωνικός Κόλπος

Ο Σαρωνικός Κόλπος (γεωγραφικό μήκος 23°00'-24°02'Ε και γεωγραφικό πλάτος 38°03'-37°27'N) είναι ανοιχτός κόλπος έκταση περίπου 2600 km². Περιβάλλεται στα βόρεια και ανατολικά από τις ακτές της Αττικής, στα δυτικά από τις ακτές της

Κορινθίας και στα νοτιοδυτικά από τις ακτές της Αργολίδας, ενώ νοτιοανατολικό επικοινωνεί με το Αιγαίο Πέλαγος με ένα μεγάλο άνοιγμα μήκους 45 km, μεταξύ των ακρωτηρίων του Σουνίου (ΝΑ) και του Σκυλλαίου της Αργολίδας (ΝΔ). Στο βορειοδυτικό του άκρο επικοινωνεί με τον Κορινθιακό Κόλπο μέσω του Ισθμού της Κορίνθου, που λόγω της μικρής του διατομής δεν επηρεάζει την υδάτινη κυκλοφορία στο Σαρωνικό Κόλπο [Κατσούρας, 2005].

Η μορφολογία των ακτών είναι πολύπλοκη με παρουσία μεγάλων νησιών. Ο Σαρωνικός Κόλπος μπορεί να διαιρεθεί σε τέσσερις επιμέρους κόλπους που είναι [Ευαγγελίου, 2009]:



Σχήμα 1.16. Βαθυμετρία του Σαρωνικού Κόλπου και του Κόλπου της Ελευσίνας.

- ο Εξωτερικός Σαρωνικός στα νότια, που οριοθετείται από τη γραμμή Αίγινας Μεθάνων μήκους 7 km στα δυτικά, και από τη γραμμή Αίγινας-Βουλιαγμένης μήκους
19 km στα βόρεια με μέγιστο βάθος μεγαλύτερο από 200 m.

ο Κεντρικός Σαρωνικός στα δυτικά, με 1117 km² έκταση και μέγιστο βάθος
428 m, ο οποίος στα νοτιοανατολικά οριοθετείται από τη γραμμή Αίγινας-Μεθάνων
και στα ανατολικά από τη γραμμή Αίγινας-Σαλαμίνας μήκους 11 km.

 - ο Εσωτερικός Σαρωνικός στα ανατολικά, που οριοθετείται στα νότια από τη γραμμή Αίγινας- Βουλιαγμένης ενώ στα δυτικά από τη γραμμή Αίγινας-Σαλαμίνας, με έκταση 468 km² και μέγιστο βάθος 104 m. Περιλαμβάνει τις ακτές της Αθήνας και του Πειραιά, και για το λόγο αυτό επηρεάζεται έντονα από τις ανθρώπινες δραστηριότητες.

- ο Κόλπος της Ελευσίνας, στο βόρειο άκρο του Σαρωνικού, με μέγιστο βάθος 34 m, που λόγω της μικρής του επικοινωνίας με τον υπόλοιπο Σαρωνικό, μέσω δυο διαύλων βάθους 8 m στα βορειοδυτικά και 11 m στα βορειοανατολικά της Σαλαμίνας, μπορεί να θεωρηθεί ένας ξεχωριστός, μεμονωμένος κόλπος [Γουργιώτη, 1988]. Αποτελείται από μια αβαθή λεκάνη με έκταση 67 km², μέσο και μέγιστο βάθος τα 18 και 33 m, αντίστοιχα, και όγκο υδάτων περίπου 1.282 km³. Επικοινωνεί με τον υπόλοιπο Σαρωνικό Κόλπο διαμέσου δυο στενών διαύλων που ορίζονται από την ακτή της Αττικής και της νήσου Σαλαμίνας: το δίαυλο Κερατσινίου με βάθος 12 m

και πλάτος 1.2 km και το δίαυλο των Μεγάρων με βάθος 8 m και πλάτος 600 m [Friligos, 1983].

Αναφορικά με την υδρολογία του Σαρωνικού Κόλπου, χαρακτηριστικό είναι η έλλειψη εκβολών μεγάλων ποταμών. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα την αργή ανανέωση των υδάτων που γίνεται με την είσοδο ρευμάτων από το Αιγαίο που ακολουθούν τις ακτές της Αττικής μέσω του Σουνίου και τα οποία φθάνουν στο δυτικό Σαρωνικό και στη συνέχεια εξέρχονται από τα κανάλια βόρεια και νότια της Αίγινας. Οι χρόνοι ανανέωσης έχουν υπολογιστεί, για βάθη 0-100 m, σε 1 και περισσότερο από 2 μήνες στον Εσωτερικό και Κεντρικό Σαρωνικό αντίστοιχα, για βάθη 150-200 m σε 2.1 χρόνια, ενώ για βάθη άνω των 200 m οι χρόνοι ανανέωσης ανέρχονται σε 8.1 χρόνια [Αμπατζόγλου, 1988]. Η στασιμότητα των υδάτων στη δυτική λεκάνη είναι ακόμα μεγαλύτερη καθώς για βάθη μεγαλύτερα των 150 m η θερμοκρασία και η αλατότητα μεταβάλλονται ελάχιστα κατά τη διάρκεια του έτους. Από την άλλη, ο Κόλπος της Ελευσίνας που είναι ψυχρότερος από τον υπόλοιπο Σαρωνικό κατά 2-3°C, παρουσιάζει χρόνο ανανέωσης υδάτων τους 2 μήνες [Coachman et al., 1976].

Η κυκλοφορία του νερού στο Σαρωνικό Κόλπο καθορίζεται κυρίως από την κατεύθυνση και την ένταση των ανέμων, ενώ η παλίρροια έχει αμελητέα επίδραση στην κίνηση των υδάτων λόγω των μεγάλων διαστάσεων του κόλπου [Friligos, 1984]. Παρατηρούνται δυο μοντέλα κυκλοφορίας του νερού, το κυκλωνικό λόγω των βόρειων και νοτιοανατολικών ανέμων και το αντικυκλωνικό λόγω των νοτιοδυτικών έως νοτιοανατολικών ανέμων. Η συχνότητα των ανέμων έχει βρεθεί ότι είναι κατά 25% νοτιοδυτικοί-νοτιοανατολικοί (αντικυκλωνική κυκλοφορία) και κατά 50% βόρειοι και 25% νότιοι-νοτιοανατολικοί (κυκλωνική κυκλοφορία) [Laskaratos and Kaltsounidis, 1989]. Ειδικά, στον απομονωμένο Σαρωνικό Κόλπο, τα νερά στο δυτικό άκρο είναι θερμότερα από ότι στο ανατολικό ενώ το Δεκέμβριο παρουσιάζουν ελαφρώς υψηλότερη αλατότητα, γεγονός που φανερώνει μια καθαρή υδάτινη ροή από τα δυτικά προς τα ανατολικά, της τάξης των 240 m³/s.Την καλοκαιρινή περίοδο η ροή των υδάτων αναστρέφεται και η κατεύθυνση είναι από τα ανατολικά προς τα δυτικά με ρυθμό 450 m⁻³ s⁻¹. Η μεταφορά των επιφανειακών υδάτων συμβαίνει από το δυτικό κανάλι, μέσω του Κόλπου του Κερατσινίου και του Δυτικού Σαρωνικού, ενώ τα βαθύτερα ύδατα μεταφέρονται από τον Κόλπο της Ελευσίνας προς το Δυτικό Σαρωνικό [Hopkins and Coachman, 1975; Coachman and Hopkins, 1975].

Η στρωμάτωση στον εσωτερικό κόλπο ξεκινά στην αρχή της άνοιξης. Από τον Ιανουάριο ως το Μάρτιο η υδάτινη στήλη εμφανίζεται καλά αναμεμιγμένη από την επιφάνεια ως το βάθος. Η θερμοκρασία ποικίλλει μεταξύ 14-16 °C. Από το Μάρτιο, εξαιτίας της συνεχούς θέρμανσης της επιφάνειας, ξεκινά ο σχηματισμός του θερμοκλινούς με παράλληλη αύξηση της αλατότητας στην επιφάνεια. Ισχυρότατο θερμοκλινές παρατηρείται από τον Ιούνιο έως το Οκτώβριο. Ψύχρανση των υδάτων ξεκινά το φθινόπωρο με ελάχιστες θερμοκρασίες να επιτυγχάνονται κατά το Φεβρουάριο (14 °C), ενώ θέρμανση ξεκινά κατά την άνοιξη με μέγιστες θερμοκρασίες να επιτυγχάνονται κατά τους ανοιξιάτικους και καλοκαιρινούς μήνες, αλλά με

πολύ πιο αργό ρυθμό, ενώ η μέγιστη θερμοκρασία επιτυγγάνεται τον Οκτώβριο (16-18 °C) [Friligos, 1984]. Στην περιοχή της Ψυττάλειας το θερμοκλινές εμφανίζεται σε βάθος 20-30 m στην αρχή του καλοκαιριού, φθάνει στον πυθμένα έως τον Αύγουστο [Laskaratos and Kaltsounidis, 1989], ενώ στον Κόλπο της Ελευσίνας μέγιστη θερμική στρωμάτωση παρατηρείται τον Αύγουστο με το θερμοκλινές να εντοπίζεται στα 15 m. Η παρουσία θερμοκλινούς παρεμποδίζει και την οξυγόνωση των βαθύτερων στρωμάτων με κίνδυνο εμφάνισης ανοξικών συνθηκών, κάτι που παρατηρείται, κυρίως κατά τους θερινούς μήνες, στον Κόλπο της Ελευσίνας [Scoullos, 1983; Scoullos et al., 2007]. Η αλατότητα κυμαίνεται μεταξύ 36.9- 39.1 ‰ με γαμηλότερες τιμές να παρατηρούνται το γειμώνα, λόγω των εκτεταμένων βρογοπτώσεων, ενώ στα βαθύτερα στρώματα η αλλαγή είναι μικρότερη. Από τον Δεκέμβριο έως τον Απρίλιο η αλατότητα είναι ομοιόμορφη σε όλα τα βάθη λόγω της έλλειψης στρωμάτωσης κατά τους γειμερινούς μήνες [Friligos, 1985]. Ειδικά στον Κόλπο της Ελευσίνας οι θερμοκρασίες και οι αλατότητες των υδάτων εμφανίζονται υψηλότερες στο κέντρο από ότι στους διαύλους, ενώ παρατηρούνται μικρότερες τιμές αλατότητας στις ακτές της λόγω της εκροής γλυκών και υφάλμυρων αποβλήτων και υποθαλάσσιων πηγών γλυκού νερού (π.χ. στην περιοχή της Βλύχας) [Scoullos et al., 2007].

Η περιοχή του Εσωτερικού Σαρωνικού Κόλπου και του Κόλπου της Ελευσίνας είναι ιδιαίτερα ρυπασμένη, λόγω της απόρριψης μεγάλων ποσοτήτων αστικών και βιομηχανικών αποβλήτων στα σχετικά αβαθή τους ύδατα. Στον Κόλπο του Κερατσινίου από τα μέσα της δεκαετίας του '70 είχε ήδη παρατηρηθεί η ύπαρξη ενός πεδίου μαύρης ανοξικής ιλύος 9 km² λόγω των λυμάτων από την νήσο Ψυτάλλεια όπου υφίστανται πρωτοταγή και δευτεροταγή βιολογικό καθαρισμό τα απόβλητα της Αθήνας. Στη Δραπετσώνα, τα κατάλοιπα της βιομηχανίας λιπασμάτων αποτελούν μια ακόμη εν δυνάμει πηγή ρύπανσης, ενώ το λιμάνι του Πειραιά, ένα από τα σημαντικότερα της Μεσογείου, αποτελεί μια αξιοσημείωτη πηγή ρύπανσης με τη μεγάλη συχνότητα διελεύσεως πλοίων. Στην παράκτια ζώνη του Σαρωνικού, σε μικρότερο βαθμό συνεισφέρουν οι τουριστικές δραστηριότητες, που είναι ιδιαίτερα αναπτυγμένες τόσο στις ακτές της Αττικής όσο και στις ακτές της Πελοποννήσου, παλιά ναυάγια καθώς και η ρύπανση που προκαλείται από την κυκλοφορία των αυτοκινήτων στις παραλιακές λεωφόρους και στην εθνική οδό Αθηνών-Κορίνθου. Από την άλλη, η ρύπανση στον Κόλπο της Ελευσίνας είναι πολύ πιό έντονη λόγω της βιομηχανικής δραστηριότητας, της ύπαρξης εμπορικών πλοίων και τάνκερ, της ναυπηγοεπισκευαστικής δραστηριότητας και του παροπλισμού πλοίων, ενώ σε μικρότερο βαθμό επηρεάζει η ρύπανση από την έκπλυση των γεωργικών λιπασμάτων που χρησιμοποιούνται στις αγροτικές δραστηριότητες της περιοχής [Ευαγγελίου, 20091.

1.3.4 Κορινθιακός Κόλπος

Ο Κορινθιακός Κόλπος είναι μία από τις ζώνες παραμόρφωσης του ηπειρωτικού φλοιού του Αιγαίου. Είναι μια σχετικά πρόσφατη γεωλογική δομή – άρχισε να δημιουργείται πριν από 4-5 εκατομμύρια χρόνια – που χωρίζει την Πελοπόννησο από την ηπειρωτική Ελλάδα και κόβει σχεδόν κάθετα την ορεινή

οροσειρά της Ελλάδας. Έχει μήκος 115 km και μέγιστο πλάτος 30 km. Χωρίζεται από την ανοιχτή θάλασσα στα δυτικά από το στενό Ρίου–Αντίρριου και από το 1893 στα ανατολικά από τον Ισθμό της Κορίνθου. Πριν τη δημιουργία του Κορινθιακού, η Πελοπόννησος ήταν ενωμένη με την Κεντρική Ελλάδα και οι οροσειρές της Κεντρικής Ελλάδας ήταν συνεχόμενες με αυτές της Πελοποννήσου [Poulos et al., 1996].



Σχήμα 1.17. Βαθυμετρία (βάθος σε m) μαζί με τους κυριότερους ποταμούς (πανω) και σεισμοτεκτονικός χάρτης (κάτω) του Κορινθιακού Κόλπου (• = σεισμοί >5 βαθμούς Richter) [Poulos et al., 1996].

Πρόκειται για μία έντονα σεισμογενή περιοχή με ενεργά ρήγματα, μεγάλες κατακόρυφες και οριζόντιες παραμορφώσεις, χερσαίες και υποθαλάσσιες κατολισθήσεις, τσουνάμι κλπ. Από τις μέχρι τώρα μελέτες γνωρίζουμε ότι οι δύο ακτές του Κόλπου (της Πελοποννήσου και της Στερεάς Ελλάδας) απομακρύνονται η μία από την άλλη με ρυθμό 1-1.5 m στα 1000 χρόνια. Ταυτόχρονα, η Βόρεια Πελοπόννησος ανυψώνεται με ρυθμό 1-1.3 m στα 1000 χρόνια ενώ οι ακτές της

Στερεάς Ελλάδας βυθίζονται με τον ίδιο περίπου ρυθμό. Υπολογίστηκε με γεωδαιτικές μεθόδους ότι μεγάλος σεισμός του Αιγίου το 1995 προκάλεσε 12 mm βύθιση στο Ακρωτήριο Ψαρομύτα. Υπεύθυνα για αυτές τις κατακόρυφες και οριζόντιες μετατοπίσεις είναι τα ενεργά ρήγματα που έχουν χαρτογραφηθεί τόσο στην στεριά όσο και στον βυθό του Κόλπου και δημιουργούν τις απότομες πλαγιές [Perissoratis et al., 2000].

Η δράση των υποθαλάσσιων ρηγμάτων έχει σαν αποτέλεσμα την συνεχή βύθιση του βυθού του Κορινθιακού Κόλπου με ρυθμό 3.6 m στα 1000 χρόνια. Ταυτόχρονα όμως στον βυθό φτάνουν τα φερτά υλικά, άμμος και λάσπη, που μεταφέρονται από τα ποτάμια προς τον Κόλπο. Τα υλικά αυτά αποτίθενται στον βυθό του Κόλπου με ρυθμό 2.5 m στα χίλια χρόνια περίπου (0.25 cm/y). Έτσι τελικά ο βυθός του κόλπου βαθαίνει με ρυθμό 1-1.5 m στα χίλια χρόνια. Στον βυθό του Κορινθιακού Κόλπου έχουν αποτεθεί ιζήματα συνολικού πάχους 2.2 km. Αν υπολογισθεί και το βάθος των 870 m του βυθού, τότε η συνολική βύθιση της λεκάνης είναι περίπου 3 km στα τελευταία 1-1.5 εκατομμύρια χρόνια [Pirazzoli et al., 2004; Cundy and Stewart, 2004; Lykousis et al., 2007].

Οι απότομες υποθαλάσσιες πλαγιές του κόλπου ευνοούν την εκδήλωση υποθαλάσσιων κατολισθήσεων και αυτές με τη σειρά τους την δημιουργία τσουνάμι. Πολλές υποθαλάσσιες κατολισθήσεις έχουν χαρτογραφηθεί και πολλά τσουνάμι έχουν καταγραφεί από τους ιστορικούς χρόνους μέχρι πρόσφατα.

Στη διάρκεια της τελευταίας παγετώδους περιόδου η στάθμη της θάλασσας ήταν 120-125 m χαμηλότερα από την σημερινή στάθμη. Η αντίστοιχη στάθμη του νερού στον Κορινθιακό Κόλπο την ίδια εποχή ήταν 77-78 m χαμηλότερα από την σημερινή. Το βάθος του βυθού στο στενό Ρίου-Αντίρριου είναι 60 m. Επομένως ο Κορινθιακός την τελευταία παγετώδη περίοδο είχε μετατραπεί σε λίμνη αποκλεισμένη από την θάλασσα. Πυρηνοληψίες στο βυθό του Κόλπου αποκάλυψαν τα λιμναία ιζήματα κάτω από 13 m θαλάσσιων ιζημάτων. Ο Κόλπος ενώθηκε με το Ιόνιο Πέλαγος πριν από 12-13 χιλιάδες χρόνια, όταν η άνοδος της στάθμης της θάλασσας κάλυψε τον ισθμό Ρίου-Αντιρρίου και τα νερά εισχώρησαν στον Κορινθιακό [Westaway, 2002].

1.3.5 Αμβρακικός Κόλπος

Ο κόλπος του Αμβρακικού βρίσκεται στη δυτική Ελλάδα, μεταξύ των διαμερισμάτων της Ηπείρου και της Στερεάς Ελλάδας (γεωγραφικό μήκος 20°45'-21°10'Ε και γεωγραφικό πλάτος 38°52'-39°07'N). Οι μεγαλύτερες κοντινές πόλεις είναι η Πρέβεζα και η Άρτα, ενώ τρεις ακόμα κωμοπόλεις – η Νικόπολη δυτικά, η Βόνιτσα νότια και η Αμφιλοχία νοτιοανατολικά – βρίσκονται στις όχθες του. Ο κόλπος ανήκει στις 10 περιοχές της Ελλάδας που προστατεύονται με ειδική νομοθεσία για τη σπανιότητα και την ποικιλία του οικοσυστήματός τους, ενώ στον υγροβιότοπό του έχουν παρατηρηθεί περισσότερα από 280 είδη πουλιών. Είναι επίσης μεγάλος ψαρότοπος με αντίστοιχη οικονομική σημασία για τους αλιείς της Άρτας και της Πρέβεζας, ενώ φημίζεται ιδιαίτερα για συγκεκριμένα αλιεύματα όπως

η γαρίδα, κάτι που καθιστά συχνή την ανθρώπινη δραστηριότητα στους υδάτινους ορίζοντές του.

Πολλοί μικροί ποταμοί εκβάλλουν στον κόλπο, τόσο από τα βόρεια προερχόμενοι από την οροσειρά της Πίνδου όσο και από το νότο, με κυριότερους τον ποταμό Λούρο ο οποίος εκβάλλει στο βορειοδυτικό μέρος και τον ποταμό Άραχθο στο βορειοανατολικό μέρος του Αμβρακικού. Η λεκάνη απορροής του Αράχθου είναι 1894 km² και του Λούρου 785 km², με μέση ετήσια παροχή νερού 70 m³/s και 19 m³/s και αιωρούμενων σωματιδίων 7.3·10⁶ t/y και 0.8·10⁶ t, αντίστοιχα. Και τα δύο ποτάμια απορρέουν στα βόρεια του Αμβρακικού Κόλπου δημιουργώντας από κοινού ένα απλό δέλτα 350 km² [Poulos and Chronis, 1997]. Η τροφοδοσία ιζημάτων των μικρών ποταμών και των εποχιακών χειμάρρων που καταλήγουν στις δυτικές, νότιες και ανατολικές λεκάνες του Κόλπου είναι πολύ χαμηλή και δεν επηρεάζει σημαντικά την γεωμορφολογική εξέλιξη του Κόλπου [Μερτζάνης, 1985].



Σχήμα 1.18. Οι κυριότεροι ποταμοί και οι λεκάνες απορροής τους που αποστραγγίζουν στον Αμβρακικό Κόλπο (a) και απλοποιημένη γεωλογία της ευρύτερης περιοχής(b)[Kapsimalis et al., 2005].

Ο Αμβρακικός κόλπος είναι μια ρηχή (μέσο βάθος 5 m) και κλειστή θαλάσσια περιοχή, που επικοινωνεί με την ανοιχτή θάλασσα του Ιονίου μέσω ενός στενού (πλάτους 600 m) και ρηχού καναλιού (βάθους 8.5 m). Τα βαθύτερα τμήματα του κόλπου βρίσκονται πλησίον του κέντρου ενώ κοντά στη στεριά, αναμενόμενα, το βάθος είναι μικρότερο. Ο κόλπος μπορεί να χωριστεί μορφολογικά σε δύο μέρη: (α) το δυτικό τμήμα, που σχηματίζεται από έναν αριθμό από μικρές λεκάνες, με βάθος μικρότερο από 40 m και (β) το ανατολικό τμήμα, που χαρακτηρίζεται από μια βαθιά λεκάνη, με μέγιστο βάθος τα 65 m. Ο πυθμένας καλύπτεται κυρίως με μάλλον ομοιόμορφη λάσπη, εκτός από την αμμώδη μορφή στην παράκτια περιοχή της Πρέβεζας [Kapsimalis et al., 2005].

Η υδροδυναμική του Κόλπου αποτελείται απο ένα μάλλον ήρεμο κυματισμό και παλιρροϊκές διακυμάνσεις <30 cm [Poulos et al., 1993]. Παρά το γεγονός ότι η κυκλοφορία του νερού είναι χαμηλή, παρουσιάζει έντονη πολυπλοκότητα που εξαρτάται από την κατεύθυνση των κυρίαρχων ανέμων και τη μορφολογία της ακτογραμμής. Έτσι, στο ανατολικό τμήμα του κόλπου, τα επιφανειακά νερά κυκλοφορούν δεξιόστροφα, ενώ στο δυτικό τμήμα του κόλπου, το μοτίβο της ροής έχει μια αριστερόστροφη κατεύθυνση. Στο στενό Ακτίου, τα ισχυρά ρεύματα (έως 1 m/s) παρουσιάζουν εναλλασσόμενη κατεύθυνση, ακολουθώντας την παλιρροϊκή κίνηση [Voutsinou-Taliadouri and Balopoulos, 1991].



Σχήμα 1.19. Βαθυμετρία (βάθος σε m) του Αμβρακικού Κόλπου (σύμφωνα με υδρολογικά δεδομένα του Ελληνικού Πολεμικού Ναυτικού).

Ο Αμβρακικός Κόλπος έχει υποστεί σημαντικές μορφολογικές αλλαγές κατά τη διάρκεια της Άνω Τεταρτογενούς, ως αποτέλεσμα των διακυμάνσεων της στάθμης της θάλασσας και της νεοτεκτονικής δραστηριότητας. Έτσι, το πιθανότερο είναι ότι

κατά τη διάρκεια της τελευταίας παγετώδους μετάβασης (νωρίτερα από 1000 χρόνια πριν το 1950 (Before Present, BP) – χρονολόγηση με βάση της μέθοδο μέτρησης του ¹²C), θαλασσινό νερό από την ανοιχτή θάλασσα του Ιονίου να είχε ήδη εισέλθει στον Κόλπο. Στη συνέχεια, το επίπεδο της θάλασσας συνέχισε να αυξάνεται μέχρι περίπου 2000 χρόνια BP, ενώ κατά την τελευταία 2000 έτη, φαίνεται να κυμαίνονται σε ένα εύρος 1-2 m [Poulos et al., 2005].

1.3.6 Λίμνη Ulubat

Η βορειοδυτική Ανατολία, συμπεριλαμβανομένης και της λίμνης Ulubat, είναι μια ενεργός σεισμική περιοχή της Τουρκίας. Η θάλασσα του Μαρμαρά, το στενό των Δαρδανελίων, το στενό της Κωνσταντινούπολης (Βόσπορος) και το ρήγμα της Βόρειας Ανατολίας είναι τα κύρια γεωγραφικά και τεκτονικά στοιχεία της περιοχής.



Σχήμα 1.20. (A) Τοποθεσία της λίμνης Ulubat νότια της Θάλασσας του Μαρμαρά και (B) απεικόνιση των κυριότερων ποταμών της περιοχής στης λεκάνη απορροής Susurluk, μέρος της οποίας είναι και οι μεγαλύτερες λίμνες Ulubat και Manyas [Kazanci et al., 1998].

Η θάλασσα του Μαρμαρά, η οποία έχει βάθος 1271 m και επιφάνεια 75×210 km σήμερα, ήταν λίμνη κατά τη διάρκεια της πλειστοκαίνου εποχής (περιλαμβάνει τη χρονική περίοδο περίπου 2.588.000 με 11.700 χρόνια BP). Στην ολόκαινο εποχή (αυτή η εποχή άρχισε με το τέλος της πλειστοκαίνου εποχής, περίπου 10 ως 12 χιλιάδες χρόνια πριν, και συνεχίζεται μέχρι σήμερα), η στάθμη της Μεσογείου

ανέβαινε σταθερά μέχρι που έφτασε το ύψος του «ισθμού» των Δαρδανελίων (-75 m) και ο Μαρμαράς έγινε μια εσωτερική θάλασσα. Η στάθμη της θάλασσας συνέχισε να ανεβαίνει μέχρι που το νερό πέρασε πάνω από τον «ισθμό» του Βοσπόρου (-32 m) και ενώθηκε με τη Μαύρη Θάλασσα. Η ένωση της Μαύρης Θάλασσας με τη Μεσόγειο Θάλασσα έχει επηρεάσει έντονα την υδρολογία, την αποστράγγιση και τη μορφολογία της περιοχής καθώς έχει αυξηθεί δραστικά η στάθμη των τοπικών και περιφερειακών υδάτων. Σε συνδυασμό με τεκτονικές διεργασίες, η αύξηση της στάθμης των υδάτων προκάλεσε τη δημιουργία ποταμών και λιμνών, συμπεριλαμβανομένης και της λίμνης Ulubat. Η χρονική στιγμή μετά τους παγετώνες που έγινε αυτή η αμοιβαία ανταλλαγή μεταξύ της Μαύρης Θάλασσας και του Αιγαίου Πελάγους είναι αμφισβητήσιμη [Gorur et al., 2001]. Οι πιθανές χρονολογίες είναι το 9000 π.Χ. [Aksu et al., 1999], το 7150 π.Χ. [Ryan et al., 1997] ή το 4400 π.Χ. [Algan et al., 2001]. Κάθε μία από αυτές τις υποθέσεις βασίζεται σε αποτελέσματα από σεισμικά προφίλ και από τη Θάλασσα του Μαρμαρά και από τη Μαύρη Θάλασσα.

Η λίμνη Ulubat στο ανατολικό άκρο της λεκάνης Manyas-Karacabey έχει έκταση 138 km² και μέγιστο βάθος 2.50 m. Η μέση τιμή του βάθους των νερών της είναι 1-1.5 m. Η ετήσια μεταβολή στη στάθμη του νερού ελέγχεται από το 1990 [Kazanci et al., 1998]. Η επιφάνεια της λίμνης είναι μόλις 2 m πάνω από την επιφάνεια της θάλασσας, η απόστασή της όμως από τη θάλασσα του Μαρμαρά είναι 23 km. Είναι μια ανοιχτή ευτροφική λίμνη γλυκού νερού με μακρόστενο σχήμα (23 km μήκος και 12 km πλάτος). Η περιφέρειά της δεν είναι ομαλή λόγω των απότομων πλαγιών στα νοτιοανατολικά, παλαιών καρστικών χαρακτηριστικών στα βορειοανατολικά και την προέλαση του δέλτα του ποταμού στα νοτιοδυτικά. Τέσσερα νησάκια Μεσοζωικού ασβεστόλιθου διαγράφουν υπολεκάνες μέσα στη λίμνη οι οποίες μπορεί να επηρεάζουν την κυκλοφορία του νερού καθώς και του ιζήματος. Άλλα νησάκια αποτελούνται από ιζήματα που έχουν αποτεθεί μετά τη δημιουργία της λίμνης. Αυτά τα νησάκια μεγαλώνουν ή μικραίνουν ανάλογα με τις εποχιακές μεταβολές στη στάθμη του νερού.



Σχήμα 1.21. Βαθυμετρία (σε m) της λίμνης Ulubat [Kazanci et al., 1998].

Η κύρια πηγή νερού και ιζήματος της λίμνης Ulubat είναι ο ποταμός Mustafakemalpasa (MKP) o οποίος έχει λεκάνη απορροής έκτασης 10414 km². Το δέλτα του ποταμού εκβάλλει στις νοτιοδυτικές ακτές της λίμνης. Το δέλτα του ποταμού έχει μετακινηθεί προς τα νοτιοανατολικά πιθανότατα υπό την επίδραση τεκτονικών διεργασιών. Η μέση ετήσια παροχή ιζήματος του ποταμού ΜΚΡ είναι περίπου 1,258,143 t/y (για τα τελευταία 30 χρόνια). Η ποιότητα του νερού είναι χαμηλή λόγω της εκροής λυμάτων από εργοστάσια καθώς και φυτοφαρμάκων που αδειάζουν στην λίμνη από τις παρακείμενες γεωργικές εκτάσεις. Αυτό έχει σαν αποτέλεσμα την αύξηση των υδρόβιων φυτών, τόσο έντονη που η έξαρση των φυκιών έχει γίνει πλέον χαρακτηριστικό γνώρισμα της λίμνης. Νοτιοανατολικά, το pH του νερού κυμαίνεται από 5 έως 9 (κατά τη διάρκεια του χρόνου), πιθανότατα λόγω επιπλέον νερού από πηγές στον ασβεστόλιθο, ωστόσο μειώνεται στα 6.1-7.4 στις ακτές κοντά στο δέλτα. Σύγχρονα ιζήματα της λίμνης είναι κυρίως αργιλώδης λάσπη με μια μικρή ποσότητα από κόκκους στο μέγεθος της άμμου (2-9%). Αποτελούνται συνήθως από άστριο (feldspar), χαλαζία (quartz), ασβεστίτη (calcite), μαρμαρυγία (micas), σμηκτίτη (smectite), ιλλίτη (illite) και χλωρίτη (chlorite).

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 2

ΔΙΑΣΠΟΡΑ ΡΑΔΙΟΝΟΥΚΛΙΔΙΩΝ ΣΤΟ ΥΔΑΤΙΝΟ ΠΕΡΙΒΑΛΛΟΝ

2.1 Έκλυση και διασπορά ραδιονουκλιδίων

Τα ραδιονουκλίδια διασκορπίζονται στο περιβάλλον από μια πληθώρα πηγών, με συστηματικό ή τυχαίο τρόπο. Δεδομένου ότι το μεγαλύτερο μέρος της επιφάνειας του πλανήτη καλύπτεται από νερό, δεν προκαλεί έκπληξη το γεγονός ότι το μεγαλύτερο μέρος των εκλυόμενων ραδιονουκλιδίων καταλήγουν εκεί. Πλέον, στις μέρες μας, υπάρχει ένας αυξανόμενος αριθμός από γνωστές πηγές ανθρωπογενών ραδιονουκλιδίων στο υδάτινο περιβάλλον. Λόγω των διακυμάνσεων στις πηγές εισόδους και τη συνακόλουθη διασπορά, ανάμειξη και μεταφορά ραδιονουκλιδίων στους ωκεανούς, τις θάλασσες τις λίμνες και τα υπόλοιπα υδάτινα σώματα του κόσμου οι συγκεντρώσεις των ραδιονουκλιδίων διαφέρουν από τη μία περιοχή στην άλλη, σύμφωνα με τις κατά τόπους κυρίαρχες πηγές. Συνεπώς, η αξιολόγηση της ραδιενέργειας σε μια δεδομένη περιοχή απαιτεί τη γνώση των πηγών που συνεισφέρουν στις συγκεντρώσεις των ραδιονουκλιδίων αλλά και την κατανόηση των διεργασιών εμπλουτισμού και απομάκρυνσής τους.

Η γνώση αυτή, της συμπεριφοράς των ραδιονουκλιδίων στο υδάτινο περιβάλλον, είναι ιδιαίτερα σημαντική. Η κατανόηση του τρόπου μεταφοράς και συσσώρευσης των ραδιονουκλιδίων αποτελεί τη βάση για την αξιολόγηση των δυσμενών, πραγματικών ή ενδεχόμενων, επιπτώσεων στο περιβάλλον και την ανθρώπινη υγεία. Στη συνέχεια, το σύνολο της γνώσης αυτής παρέχει το απαραίτητο υπόβαθρο για την ταχεία αξιολόγηση των επιπτώσεων μελλοντικών εναποθέσεων ραδιονουκλιδίων, ιδιαίτερα των μη προγραμματισμένων που περιλαμβάνουν ατυχήματα με διασπορά ραδιονουκλιδίων από πυρηνικές εγκαταστάσεις, χώρους διάθεσης πυρηνικών αποβλήτων, από μεταφορά πυρηνικών καυσίμων ή αποβλήτων, κ.ά. Τέλος, τα ραδιονουκλίδια ως ιχνηθέτες παρέχουν βασικές γνώσεις σε πληθώρα ωκεάνιων, γεωλογικών και φυσικοχημικών διεργασιών.

Στην συνέχεια, παρουσιάζονται αναλυτικά οι ανθρωπογενείς πηγές έκλυσης ραδιονουκλιδίων, οι τρόποι μεταφοράς στο υδάτινο περιβάλλον και οι διεργασίες που λαμβάνουν χώρα στο νερό και το ίζημα από τη στιγμή που τα ραδιονουκλίδια καταλήξουν εκεί.

2.1.1 Έκλυση ραδιενέργειας στο περιβάλλον

Το νερό αποτελεί το μεγαλύτερο μέρος της επιφάνειας της Γής. Συγκεκριμένα, το 70% αποτελεί το νερό των ωκεανών και μόνο το 5% είναι γλυκό, ενώ από το σύνολο του γλυκού νερού πάνω από το 30% είναι υπόγειο. Το νερό λόγω της

δύναμης της βαρύτητας, διαρρέει αργά από την επιφάνεια προς το υπέδαφος ή μέσω των υδροφόρων φορέων, τελικά απορρέει σε λίμνες, ποτάμια και παράκτιες θαλάσσιες περιοχές. Τελικός αποδέκτης, σε κάθε περίπτωση, είναι οι ωκεανοί και οι υδροφόροι ορίζοντες, ενώ μέσω του υδρολογικού κύκλου μέρος των ραδιονουκλιδίων μπορεί να αναδιανέμονται στα υδάτινα σώματα. Τελικά τα ραδιονουκλιδία εξαφανίζονται από το περιβάλλον λόγω της ραδιενεργού αποδιέγερσης, με ρυθμό που εξαρτάται από το ραδιενεργό χρόνος ημιζωής του εκάστοτε ραδιονουκλιδίου. Περιβαλλοντολογικά όμως, ο ρυθμός απομάκρυνσης ραδιενέργειας από ένα συγκεκριμένο τομέα του περιβάλλοντος εκφράζεται από τον αποκαλούμενο *οικολογικό χρόνο ημιζωής* (radioecological half-life) των ραδιονουκλιδίων. Αν ο ραδιενεργός χρόνος ημιζωής είναι μικρότερος από τον οικολογικό χρόνο ημιζωής τότε οι περιβαλλοντικές διεργασίες απομάκρυνσης των ραδιενεργών συστατικών είναι ασήμαντες, ενώ στην αντίθετη περίπτωση οι περιβαλλοντικές διεργασίες αποβολής υπερτερούν και γίνονται ιδιαίτερα σημαντικές και σε μεγάλο βαθμό διαχειρίσημες από τον άνθρωπο [Pröhl et al., 2006].

Τα ραδιονουκλίδια στο περιβάλλον, εκτός από τα πρωτογενή και αυτά κοσμογενούς προέλευσης, προέρχονται από πληθώρα ανθρώπινων δραστηριοτήτων. Η εμφάνιση τους στο περιβάλλον είναι αποτέλεσμα ως επί το πλείστον τυχαίων εκλύσεων ή απορρίψεων από όλα τα στάδια του κύκλου των πυρηνικών καυσίμων [FAO et al., 1996]. Αυτό περιλαμβάνει τα ορυχεία ουρανίου, εγκαταστάσεις κατασκευής καυσίμων, αντιδραστήρες, εργοστάσια επανεπεξεργασίας και χώρων εναπόθεσης αποβλήτων χαμηλής, μέσης και υψηλής ραδιενέργειας. Κάθε μία από αυτές τις δραστηριότητες περιλαμβάνει κυρίως προϊόντα σχάσης και ενεργοποίησης νετρονίων καθώς και ακτινίδες. Η εξόρυξη ουρανίου και η κατασκευή πυρηνικών καυσίμων περιλαμβάνουν επίσης ραδιονουκλίδια των ραδιενεργών σειρών του ουρανίου, του θορίου και του ακτινίου. Επιπλέον, ορισμένες βιομηγανίες, όπως παραγωγής και μεταποίησης ορυκτής άμμου, επεξεργασίας φωσφορικών μεταλλευμάτων, η καύση του άνθρακα και η παραγωγή πετρελαίου και φυσικού αερίου μπορούν να δημιουργήσουν φυσικά ραδιενεργά υλικά (NORM) ως απόβλητα. Άλλες πηγές είναι οι δοκιμές πυρηνικών όπλων και τα ατυγήματα ή ραδιονουκλίδια ιατρικής χρήσης [ΙΑΕΑ, 1996].

Οι κυριότερες, συστηματικές ή τυχαίες, πηγές ραδιονουκλιδίων ανθρωπογενούς δραστηριότητας που έχουν υπάρξει ή εξακολουθούν να επιβαρύνουν το υδάτινο περιβάλλον είναι [ΙΑΕΑ, 2005]:

α) οι πυρηνικές δοκιμές, που πραγματοποιήθηκαν στα πλαίσια δοκιμών πυρηνικών όπλων. Τα πυρηνικά όπλα που δοκιμάστηκαν από 1945-1951 ήταν τα όπλα σχάσης στο εύρος των 20-100 kt TNT και παρήγαγαν ραδιενεργό νέφος κυρίως κάτω από την τροπόσφαιρα με αποτέλεσμα να μην διασπαρθούν σε παγκόσμιο επίπεδο αλλά μόνο γύρω από το γεωγραφικό πλάτος της περιοχής δοκιμής. Ωστόσο, το 1952 οι Ηνωμένες Πολιτείες και το 1953 η πρώην Σοβιετική Ένωση δοκίμασαν για πρώτη φορά θερμοπυρηνικές βόμβες (εύρους τάξης Mt TNT) και το νέφος των εκρήξεων διασπάρθηκε σε όλο τον κόσμο. Στα επόμενα χρόνια και μέχρι τις αρχές
της δεκαετίας του 60 η κύρια είσοδος ραδιονουκλιδίων από δοκιμές πυρηνικών όπλων σημειώθηκαν στο νησί Novaya Zemlya στον Αρκτικό Ωκεανό (απόδοση σχάσης 80.89 Mt) και στο Bikini Atoll στον Ειρηνικό Ωκεανό (απόδοση σχάσης 42.2 Mt). Άλλες σημαντικές τοποθεσίες δοκιμών όπλων μικρότερης ισχύος ήταν τα Enewetak και Johnston Atolls στο Βόρειο Ειρηνικό (26 Mt), η Νήσος των Χριστουγέννων στον Ινδικό Ωκεανό (15.5 Mt), το Lop Nor στην Κίνα (12.2 Mt), τα Mururoa και Fangataufa Atolls στον Νότιο Ειρηνικό (6.1 Mt) και Semipalatinsk στο Καζακστάν (3.7 Mt). Στις μέρες μας εξακολουθούν να γίνονται υπόγειες πυρηνική έκρηξη δημιουργείται ένας μεγάλος αριθμός διαφορετικών ραδιενεργών ισοτόπων, είτε άμεσα, είτε κατά τη διάρκεια της διασπάσεως, με σημαντικότερα από αυτά, από την άποψη του μεγάλου χρόνου ημιζωής και την ποσότητα έκλυσης, κυρίως το ⁹⁰Sr και ¹³⁷Cs και δευτερευόντως το ^{239,240, 241}Pu, ³H και ¹⁴C.

β) η επανεπεξεργασία πυρηνικών, από εγκαταστάσεις που βρίσκονται σε ακτές θαλασσών ή λιμνών. Η επανεπεξεργασία πραγματοποιείται για την ανάκτηση του U και του Ρυ από αναλωμένα καύσιμα για επαναχρησιμοποίησή τους σε αντιδραστήρες. Οι μεγαλύτερες εγκαταστάσεις επανεπεξεργασίας είναι στο Sellafield (και νωρίτερα στο Windscale) της Αγγλίας, στο Cap de La Hague της Γαλλίας και στο Tokai της Ιαπωνίας. Το Sellafield υπήρξε η κύρια πηγή ραδιενεργού μόλυνσης του θαλάσσιου περιβάλλοντος, καθώς στη δεκαετία του 1970 άρχισαν να αυξάνονται αισθητά τα εξουσιοδοτημένα όρια απόρριψης ραδιονουκλιδίων στη Θάλασσα της Ιρλανδίας. Αυτές οι απορρίψεις, πρώτα απ' όλα του ¹³⁷Cs, αλλά και άλλων ραδιονουκλιδίων του ⁹⁰Sr, ισοτόπων του Pu, του Am και του Tc, έχουν καταστεί πλέον μετρήσιμα στο μεγαλύτερο μέρος του Βορειοανατολικού Ατλαντικού και σε μεγάλο βαθμό στον Αρκτικό Ωκεανό. Ενδεικτικά, αναφέρεται ότι ενώ οι απορρίψεις ⁹⁰Sr στο Cap de la Hague ανήλθε στο 20% εκείνων που προέρχονται από το Sellafield, οι απορρίψεις ¹³⁷Cs ήταν λιγότερο από το 3% των αντίστοιχων στο Sellafield. Εκτός από τα 40 PBq ¹³⁷Cs και 6.5 PBq ⁹⁰Sr από τις δύο ευρωπαϊκές εγκαταστάσεις επανεπεξεργασίας έχουν απορριφθεί στους ωκεανούς 126 PBq 3 H, 1 PBq 99 Tc και 0.015 PBq 129 I, μέχρι τώρα. Αν και η επιβάρυνση σε 3 Η από επανεπεξεργασία είναι αμελητέα σε σύγκριση με εκείνη από τις παγκόσμιες πυρηνικές δοκιμές, το Sellafield και το La Hague είναι σημαντικές πηγές 99 Tc και ¹²⁹I, ραδιονουκλίδια που λόγω των μεγάλων χρόνων ημιζωής τους (2.13×10^7 και 1.57×10^6 y, αντίστοιχα) θα παραμείνουν στο θαλάσσιο περιβάλλον πολύ μετά από ότι όλα τα άλλα ραδιονουκλίδια που αναφέρθηκαν.

γ) το ατύχημα στο πυρηνικό εργοστάσιο παραγωγής ηλεκτρικής ενέργειας του Chernobyl της Ουκρανίας, που πραγματοποιήθηκε τον Απρίλιο του 1986. Πρόκειται για τη μεγαλύτερη συμβολή ραδιενέργειας στο θαλάσσιο περιβάλλον που έχει προκληθεί από τυχαίες εκλύσεις χερσαίων πυρηνικών εγκαταστάσεων. Τα πιο σημαντικά ραδιονουκλίδια που εκλύθηκαν στο περιβάλλων ήταν τα ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, ¹³¹I και ⁹⁰Sr. Περίπου τα δύο τρίτα των ~100 PBq ¹³⁷Cs που απελευθερώθηκαν από το ατύχημα εναποτέθηκαν εκτός της πρώην Σοβιετικής Ένωσης. Αν και το μεγαλύτερο μέρος από αυτή την ποσότητα επικάθισε πάνω από την ξηρά, ένα σημαντικό μέρος πήγε προς τη θάλασσα. Οι αποθέσεις του ¹³⁷Cs και του ¹³⁴Cs στα ύδατα της Βόρειας Ευρώπης, από την άμεση απόθεση και απορροή, εκτιμάται ότι ήταν 10 και 5 PBq αντίστοιχα, επηρεάζοντας κυρίως τη Βαλτική Θάλασσα και στη συνέχεια το BA Ατλαντικό Ωκεανό. Επίσης, έχει υπολογιστεί ότι η συνολική εισροή ¹³⁷Cs στη Μεσόγειο και τη Μαύρη Θάλασσα ήταν από 3-5 και 2.4 PBq, αντίστοιχα. Η εκροή από τη Μαύρη Θάλασσα είναι πλέον η κύρια πηγή ¹³⁷Cs στη Μεσόγειο Θάλασσα. Εκτιμάται ότι στη Βόρεια Θάλασσα και στον BA Ατλαντικό έχουν εκλυθεί συνολικά 1.2 και 6 PBq ¹³⁷Cs. Η συνολική εισροή στους ωκεανούς παγκοσμίως υπολογίζεται σε περίπου 16 PBq¹³⁷Cs από το Chernobyl, με σχεδόν όλο το ¹³⁷Cs να έχει καταλήξει στο B Ατλαντικό και τον Αρκτικό ωκεανό. Αντίθετα, η είσοδος ⁹⁰Sr προς τη θάλασσα ήταν αμελητέα, με τη σχετική συμβολή στον ωκεανό να είναι σημαντικά μικρότερη από εκείνη του πυρηνικών όπλων, καθώς το ατύχημα του Chernobyl εκδηλώθηκε στην τροπόσφαιρα μολύνοντας κατά βάση τις γειτονικές ευρωπαϊκές χώρες.

δ) άλλα πυρηνικά ατυγήματα, με τα περισσότερα από αυτά να αφορούν σε απελευθεύροςη ραδιονουκλιδίων στην ατμόσφαιρα και ένα μικρό ποσοστό συνδέεται με απευθείας έκλυση στο υδάτινο περιβάλλον. Ωστόσο, στην πρώτη περίπτωση υπάρχει έμμεση μόλυνση του υδάτινου περιβάλλοντος, είτε από την ατμοσφαιρική εναπόθεση ή μέσω της απορροής από την ξηρά. Τα δύο μεγάλα πυρηνικά ατυχήματα το 1957, στο Kyshtym και στο Windscale, δεν συνέβαλαν σημαντικά στη ρύπανση του θαλάσσιου περιβάλλοντος. Το 1968 ένα αεροσκάφος Β-52 των ΗΠΑ συνετρίβη κατά τη διάρκεια μιας προσγείωσης έκτακτης ανάγκης στον πάγο 11 km BΔ της Γροιλανδίας στην αεροπορική βάση Thule, με έκλυση στο θαλάσσιο περίπου 1 TBq ^{239,240}Pu, ενώ ένα παρόμοιο ατύχημα είχε συμβεί δύο χρόνια νωρίτερα στο Palomares στη ΝΑ Ισπανία. Επιπλέον, ένας αριθμός πυρηνικών υποβρυχίων, των ΗΠΑ και της Ρωσίας, έχουν χαθεί στους ωκεανούς. Η πιο πρόσφατη απώλεια ήταν το ρωσικό υποβρύχιο "Kursk" στη Θάλασσα του Μπάρεντς, τον Αύγουστο του 2000, ενώ παλαιότερα το Σοβιετικό υποβρύγιο "Komsomolets" βυθίστηκε σε βάθος 1700 m στο νησί Bear στην Ανατολική Νορβηγική Θάλασσα, με εκτιμούμενη έκλυση σε 2.8, 3 και 16 PBq 90 Sr, 137 Cs, και 239,240 Pu, αντίστοιγα. Τέλος, έχουν ύπαρξει και περιπτώσεις ραδιομόλυνσης και από πυραυλοκίνητους δορυφόρους, κατά την ανάφλεξή τους στην ανώτερη ατμόσφαιρα. Αυτό συνέβη το 1964, όταν ένας δορυφόρος των ΗΠΑ, με γεννήτρια πυρηνικής ενέργειας SNAP-9A που περιείχε 0.6 PBq 238 Pu, ξαναμπήκε στην ατμόσφαιρα και εξερράγη στο νότιο ημισφαίριο. Μετά το ατύχημα, δείγματα θαλασσινού νερού από το νότιο ημισφαίριο παρουσιάζουν μεγαλύτερη αναλογία 238 Pu/ 239,240 Pu σε σύγκριση με το νερό των ωκεανών στο βόρειο ημισφαίριο.

ε) η πόντιση πυρηνικών αποβλήτων, που πραγματοποιήθηκε από τις δυτικές χώρες σε εθνικό επίπεδο, από τα τέλη του 1940 μέχρι τα μέσα της δεκαετίας του 1960, κυρίως από τις ΗΠΑ στον Ατλαντικό και τον Ειρηνικό Ωκεανό και από το Ηνωμένο Βασίλειο στον ΒΑ Ατλαντικό. Το 1967, ο Ευρωπαϊκός Οργανισμός Πυρηνικής Ενέργειας πραγματοποίησε μια διεθνή επιχείρηση, όπου περίπου 0.3 PBq στερεών πυρηνικών αποβλήτων κατατέθηκε σε βάθος 5 km στον Ανατολικό Ατλαντικό Ωκεανό. Παρόμοιες διεθνείς επιχειρήσεις συνεχίστηκαν μέχρι το 1982 στο Ν Ατλαντικό, όπου απορρίφτηκαν περίπου 0.7 PBq ενεργότητα-α, 42 PBq ενεργότητα-β και 15 PBq ³H, με μικρές εκροές Pu από τα απόβλητα να έχουν μετρηθεί σύμφωνα με το Συντονισμένο Πρόγραμμα Ερευνών και Περιβαλλοντικής Επιτήρησης Σχετικά με τη Θαλάσσια Διάθεση Ραδιενεργών Αποβλήτων (Coordinated Research and Environmental Surveillance Programme Related to Sea Disposal of Radioactive Waste, CRESP). Πρόσθετες πληροφορίες έγιναν γνωστές στα τέλη του 1990 σχετικά με εργασίες απόρριψης αποβλήτων που διενήργησε η Σουηδία το 1959 και το 1961 στη Βαλτική Θάλασσα, το Ηνωμένο Βασίλειο στα παράκτια ύδατά της μεταξύ 1948-1976 και η πρώην Σοβιετική Ένωση στη Θάλασσα της Ιαπωνίας το 1993. Η πρώην Σοβιετική Ένωση απέρριψε ραδιενεργά απόβλητα για πάνω από τρεις δεκαετίες και στις Θάλασσες του Kara και του Μπάρεντς, με συνολικά εκτιμούμενη ποσότητα αποβλήτων της τάξης του 90 PBq. Συστηματικές μετρήσεις έχουν δείξει ότι οι εκλύσεις από τα σημεία εναπόθεσης είναι μικρές, με περίπου 300 φορές μικρότερη ενεργό δόση στον παγκόσμιο πληθυσμό από τα ραδιενεργά απόβλητα στον ΒΑ Ατλαντικό.

ζ) υποθετικές και πιθανές πηγές, κυρίως λόγω των πυρηνικών εγκαταστάσεων της πρώην Σοβιετικής Ένωσης. Συγκεκριμένα, κατά τη διάρκεια του 1949-1951, μέσης και χαμηλής ενεργότητας υγρά ραδιενεργά απόβλητα από τη σοβιετική πυρηνική εγκατάσταση Mayak στα Νότια Ουράλια, εκλύθηκαν στον ποταμό Techa. Συνολικά απορρίφτηκαν 100 PBg ραδιενεργών, με 11.6% ⁹⁰Sr και 12.2% ¹³⁷Cs αντίστοιγα. Το μεγαλύτερο μέρος των ραδιονουκλιδίων διατηρήθηκε στον καταρράκτη των δεξαμενών, στον ανώτερο τμήμα του ποταμού Techa που αποτελεί μέρος του συστήματος ποταμών Ob, ενώ εκτιμάται ότι τελικά 1PBq του κινητικότερου ⁹⁰Sr κατέληξε μέσω του Ob στον Αρκτικό Ωκεανό μέχρι τα τέλη του 1950. Από το 1951, η λίμνη Karachay στο Mayak είχε χρησιμοποιηθεί για διάθεση ραδιενεργών αποβλήτων, με συνολική εναπόθεση 3.6 EBq¹³⁷Cs και 0.74 EBq⁹⁰Sr. Επιπλέον, τα μεταλλεία Krasnoyarsk και το εργοστάσιο χημικών Complex είναι μια άλλη υποθετική πηγή για ραδιενεργό μόλυνση του Αρκτικού Ωκεανού, ενώ σε αυτό το πλαίσιο και άλλες πυρηνικές εγκαταστάσεις στη πρώην Σοβιετική Ένωση (και αλλού) θα πρέπει επίσης να ληφθή υπόψη. Π.χ. στο Murmansk και το Vladivostok, τα ραδιενεργά απόβλητα αποθηκεύονται σε στρατιωτικές ναυτικές βάσεις και σε απομακρυσμένες περιοχές, ενώ κατά μήκος της ακτογραμμής της Σιβηρίας οι φάροι ηλεκτροδοτούνται με γεννήτριες ⁹⁰Sr. Κάθε γεννήτρια περιέγει με τη σειρά της δεκάδες PBq ⁹⁰Sr και σε περίπτωση ατυχήματος είναι μια πιθανή πηγή ρύπανσης του περιβάλλοντος. Παράδειγμα αποτελεί η απώλεια μιας γεννήτριας ⁹⁰Sr στη θάλασσα του Okhotsk, χωρίς όμως να έχει προς το παρόν αναφερθεί μόλυνση.

η) η χρήση ραδιονουκλιδίων, στην ιατρική, την βιομηχανία και την έρευνα. Τα πιο ευρέως χρησιμοποιούμενα ραδιονουκλίδια είναι συνήθως βραχύβια, όπως π.χ. το ^{99m}Tc και ¹³¹I και ως εκ τούτου δεν έχουν σημαντική συνεισφορά ως πηγές ραδιομόλυνσης του υδάτινου περιβάλλοντος. Έτσι, αν και η παγκόσμια χρήση του ¹³¹I στις πυρηνικές θεραπείες υπολογίζεται περίπου στα 0.6 PBq, η ενεργότητα αυτή δεν οδηγεί σε μετρήσιμες εναποθέσεις σε παγκόσμιο επίπεδο. Πιο μακρόβια ραδιονουκλίδια, όπως το ³H και το ¹⁴C, χρησιμοποιούνται στην έρευνα με πολύ χαμηλές εκλύσεις στο περιβάλλον και ασήμαντες σε σύγκριση με τις εναποθέσεις από

τις πυρηνικές δοκιμές. Τα τελευταία χρόνια υπάρχει επίσης μια αυξημένη αναγνώριση της σημασίας των μη πυρηνικών πηγών φυσικών ραδιονουκλιδίων, ιδίως των ²²⁶Ra, ²²⁸Ra, ²²²Rn, ²¹⁰Pb και ²¹⁰Po, που παράγονται, για παράδειγμα, σε μονάδες επεξεργασίας φωσφορικών, τις υπεράκτιες εγκαταστάσεις πετρελαίου και φυσικού αερίου και την βιομηχανία κεραμικών.

ι) άλλες δευτερογενείς πηγές, ως αποτέλεσμα φυσικών διεργασιών όπως η απορροή ραδιονουκλιδίων από την επιφάνεια του εδάφους και η επαναιώρηση του ιζήματος. Τα ραδιονουκλίδια που εναποτίθενται στο γήινο περιβάλλον μπορούν να μεταφέρονται στα υπόγεια ύδατα, τις λίμνες και τα ποτάμια, και αργότερα στη θάλασσα. Για παράδειγμα, υπολογίζεται ότι στα 377 PBq 90 Sr και 603 PBq 137 Cs που εναποτέθηκαν στη θάλασσα από το ατύχημα του Chernobyl είχαν προστεθεί, μέγρι το 2000, 9 PBq 90Sr και 3 PBq ¹³⁷Cs λόγω απορροής (λαμβάνοντας υπόψη και την ραδιενεργό αποδιέγερση). Με άλλα λόγια, η απορροή από το έδαφος μπορεί να έχει αυξήσει την συνολική εναπόθεση στις θάλασσες παγκοσμίως κατά 6% για ⁹⁰Sr και κατά 1-2% για το ¹³⁷Cs, ποσότητα ασήμαντη λαμβάνοντας υπόψη τις αβεβαιότητες των υπολογισμών. Επιπλέον, τα ραδιονουκλίδια που μεταφέρονται μέσω των απορροών συγνά συνδέονται με αιωρούμενα σωματίδια και έτσι καθιζάνουν αντί να μεταφέρονται σε ζωντανούς οργανισμούς, επηρεάζοντας ακόμα λιγότερο τις τελικές πιθανές δόσεις στον άνθρωπο. Όσον αφορά την επαναιώρηση τους ιζήματος, από τις αργές της δεκαετίας του 1990, έχει αναγνωριστεί ότι τα ιζήματα από ιδιαίτερα επιβαρυμένους βυθούς αποτελούν σημαντικές δευτερογενείς πηγές ραδιονουκλιδίων. Για παράδειγμα, από το 1980, ο βυθός της Θάλασσας της Ιρλανδίας είναι πιο σημαντική πηγή ¹³⁷Cs και Pu στην υδάτινη στήλη απ' ότι οι άμεσες απορρίψεις από το εργοστάσιο επανεπεξεργασίας πυρηνικών στο Sellafield. Το ίδιο φαινόμενο παρατηρείται και στη Βαλτική Θάλασσα ως αποτέλεσμα της απόθεσης που ακολούθησε το ατύχημα του Chernobyl και στο Δέλτα του Rhône στη Μεσόγειο Θάλασσα, που ήταν ο αποδέκτης των ραδιενεργών αποβλήτων από τη μονάδα επανεπεξεργασίας πυρηνικών καυσίμων στο Marcoule.

Όπως έγινε φανερό και από τα προηγούμενα, κύριος τρόπος μεταφοράς και διασποράς των ραδιονουκλιδίων στο περιβάλλον είναι η ραδιενεργός επιφανειακή εναπόθεση (fallout), που είναι το αποτέλεσμα μιας πυρηνικής έκρηξης. Ο τόπος και ο χρόνος κατά τον οποίο τα ραδιονουκλίδια θα φθάσουν στην επιφάνεια της γης εξαρτάται σε μεγάλο βαθμό από το ύψος στο οποίο πραγματοποιήθηκε η πυρηνική έκρηξη, με όσο μεγαλύτερο ύψος τόσο μεγαλύτερη ανύψωση των ραδιενεργών παραγώγων στα ανώτερα και ανώτατα στρώματα της ατμόσφαιρας. Με την πάροδο του χρόνου τα ραδιονουκλίδια συσσωματώνονται σε μικροσκοπικά σωματίδια και καταπέφτουν με πολύ αργό ρυθμό, ενώ ένα σημαντικό μέρος τους παραμένει στην ατμόσφαιρα για μήνες ή και χρόνια. Στο διάστημα αυτό, τα ατμοσφαιρικά ρεύματα μπορούν να μετακινούν το ραδιενεργό νέφος σε ολόκληρο το ημισφαίριο έως και την στρατόσφαιρα, με τη συνεπακόλουθη κατακρήμνισή σε παγκόσμιο επίπεδο (global fallout). Όταν η πυρηνική έκρηξη πραγματοποιείται σε χαμηλό ύψος ή στην επιφάνεια του εδάφους, τεράστιες ποσότητες υλικών από το έδαφος αναρροφούνται

ραδιονουκλίδια να είναι αρκετά μεγαλύτερα και να πέφτουν με πολύ γρήγορο ρυθμό στο έδαφος. Η ατμοσφαιρική μεταφορά σε αυτή την περίπτωση είναι πολύ μικρή και το μεγαλύτερο ποσοστό των ραδιονουκλιδίων εναποτίθενται τοπικά, σε έκταση που εξαρτάται από τις μετεωρολογικές συνθήκες, (κατεύθυνση και ταχύτητα ανέμων, ύπαρξη και ένταση κατακρημνίσεων).

Πέρα από τη μεταφορά των ραδιονουκλιδίων μέσω της επιφανειακής εναπόθεσης, σημαντική είναι και η διακίνησή τους μέσω των απορροών επιφανειακών (ποτάμια, χείμαρροι, κτλ.) και υπόγειων υδάτων (υπόγειες υδρορροές και πηγές, διάχυση νερού στο υπέδαφος). Τα ραδιονουκλίδια μεταφέρονται μέσω των τρεχούμενων υδάτων και των ατμοσφαιρικών κατακρημνίσεων (βροχή ή χιονόπτωση) παρασυρόμενα από το έδαφος, στο οποίο κατέληξαν μετά τη ραδιενεργό επιφανειακή εναπόθεση. Στα υπόγεια ύδατα αυτό πραγματοποιείται με την αργή διαδικασία της διάχυσης του νερού στους πόρους του εδάφους έως ότου καταλήξουν σε κάποιο υπόγειο υδροφορέα, ενώ στα επιφανειακά πραγματοποιείται μέσω αποστράγγισης των λεκανών απορροής με εμπλουτισμό του νερού με ραδιονουκλίδια.

Η έκπλυση (wash-off) ραδιονουκλιδίων από τις λεκάνες απορροής είναι μια δευτερογενής οδός εμπλουτισμού των υδάτινων οικοσυστημάτων [Menzel, 1960]. Αυτός ο τρόπος έκλυσης είναι ιδιαίτερα σημαντικός, καθώς είναι χρονοβόρα διεργασία που συγκεντρώνει ροές υδάτων από ευρείες γωρικά, δυνητικά επιβαρυμένες, περιοχές, που εξακολουθούν να επηρεάζονται από ατμοσφαιρικές κατακρημνίσεις. Τα ραδιονουκλίδια έκπλυσης μεταφέρονται από τη ροή νερού πάνω στο επιφανειακό έδαφος (run-off). Στην πραγματικότητα μπορούν να διακριθούν δύο τρόποι εισόδου τους στο υδάτινο οικοσύστημα [Garcia-Sanchez, 2009], μέσω: (α) υγρής έκπλυσης, όταν ραδιονουκλιδία μεταφέρονται σε διαλυτή φάση με το νερό και (β) στερεής έκπλυσης, όταν ραδιονουκλιδία μεταφέρονται υπό μορφή σωματιδίων με αιωρούμενες ύλες. Η έκπλυση ως φαινόμενο είναι ιδιαίτερα έντονη κατά τη διάρκεια και μέσα σε λίγες εβδομάδες μετά από οποιαδήποτε απευθείας απόθεση (βραχυπρόθεσμη έκπλυση), ενώ είναι σημαντικά χαμηλότερη σε μεγαλύτερα μεταγενέστερα χρονικά διαστήματα (μακροπρόθεσμη έκπλυση), που όμως μπορεί να εξακολουθεί να είναι ενεργή για γρόνια ή και δεκαετίες μετά την απόθεση.

Η βραχυπρόθεσμη υγρή έκπλυση προέρχεται είτε από άμεση εναπόθεση στην επιφάνεια του νερού χωρίς καμία επαφή με το έδαφος, είτε από ημιτελή ρόφηση από την επιφάνεια του εδάφους κατά τη διάρκεια υγρής απόθεσης (ισχυρή βροχόπτωση), όπου η περίσσεια ραδιονουκλιδίων εξάγεται γρήγορα με την απορροή των νερών. Η διάρκειά της, μέχρι και μερικές εβδομάδες, οφείλεται στο χρόνο διέλευσης του νερού από τις λεκάνες απορροής και το παρατεταμένο χρόνο εναπόθεσης ραδιονουκλιδίων από την έκπλυση της χλωρίδας. Η μακροπρόθεσμη υγρή έκπλυση οφείλεται στην αραίωση του ύδατος του εδάφους από το επιπλέον νερό κατακρημνίσεων και την εκρόφησή του από ένα λεπτό στρώμα του εδάφους. Η εκρόφηση πραγματοποιείται συνήθως σε κατάσταση υδρολογικής ισορροπίας, όπως π.χ. για ¹³⁷Cs και ⁹⁰Sr [Bulgakov et al., 1991] - εκτός εάν η απορροή του ⁹⁰Sr είναι πολύ έντονη (ποτάμια ή χείμαροι) - , ενώ η περιεκτικότητα, γενικά, των ραδιονουκλιδίων στην υγρή έκπλυση

ελαττώνεται με το χρόνο, λόγω π.χ. της μεταφοράς για ⁹⁰Sr [Pisarev et al., 1996] και της αποδιέγερσης για το ¹³⁷Cs [Konoplev et al., 1996].

Όσον αφορά τη στερεά έκπλυση, η βραχυπρόθεσμη πραγματοποιείται κατά τη διάρκεια της περιόδου απόθεσης ή όταν η έκπλυση των φυτών είναι σημαντική, με άμεση μεταφορά από το νερό της βροχής των αιωρούμενων σωματιδίων μέσω προσρόφησής τους, ενώ η μακροπρόθεσμη προκαλείται μετά από απόσπαση και μεταφορά των σωματιδίων του εδάφους από τη συνδυασμένη δράση βροχόπτωσης και απορροής.

Σημαντικοί παράγοντες που επηρεάζουν την διαδικασία έκπλυσης, σε κάθε περίπτωση, είναι:

 - το ραδιονουκλίδιο καθεαυτό, καθώς οι περισσότερες από τις διαδικασίες είναι χημικά εξαρτημένες

το είδος της επιβάρυνσης, γιατί για ένα δεδομένο ραδιονουκλίδιο, η φύση της
 επιβάρυνσης (πυρηνικό ατύχημα, έκρηξη, εκροή κτλ.) μπορεί να επηρεάσει, ιδίως για
 την υγρή έκπλυση, τη δυνατότητά του να παρασύρεται από το νερό.

 - η διαδρομή, αν η εξεταζόμενη ροή αναφέρεται στην υγρή, στερεά ή συνολική έκπλυση

 - η χώρο-χρονική κλίμακα που εξετάζεται το φαινόμενο, δηλαδή εάν η ροή εμπεριέχει τα ραδιονουκλίδια που παρασύρονται σε κλίμακα επιφανείας ανά βροχόπτωση ή σε επίπεδο λεκάνης απορροής ανά εποχή.

- η ροή μεταφοράς, δεδομένου ότι η έκπλυση πηγάζει από την κίνηση του νερού στην επιφάνεια του εδάφους. Το κλίμα (άνυδρο, υγρό, με/χωρίς χιονοκάλυψη) και οι ιδιότητες του εδάφους (βαθμός διάβρωσης, βλάστηση) είναι καθοριστικοί παράγοντες της έντασης της ροής, ενώ η ποσότητα των επιφανειακών υδάτων επηρεάζει την ταχύτητα της ροής και γενικότερα την αραίωση μεταξύ απόθεσης και συγκέντρωσης στο νερό.

η φύση του εδάφους στις λεκάνες απορροής, όπως π.χ. στην περίπτωση του
 ¹³⁷Cs που παρατηρούνται υψηλότερα ποσοστά έκπλυσης σε οργανικά εδάφη
 [Konoplev et al., 1992].

2.1.2 Διασπορά ραδιονουκλιδίων στο νερό

Από την στιγμή που τα εκλυόμενα ραδιονουκλίδια θα οδηγηθούν στα υδάτινα οικοσυστήματα οι κυριότερες διεργασίες που ακολούθως λαμβάνουν χώρα είναι η διασπορά και η μεταφορά τους στο υδάτινο μέσο, καθώς και η μεταφορά από και προς τα ιζήματα του βυθού μέσω της καθίζησης και της επαναιώρησης των αιωρούμενων ραδιενεργών σωματιδίων. Οι μηχανισμοί αυτοί είναι το αποτέλεσμα

φαινομένων υδραυλικής, γεωχημικής, ιζηματολογικής, οικολογικής και ανθρωπογενούς φύσης.

Οι υδραυλικές διεργασίες είναι κυρίως υπεύθυνες για τη μεταφορά των τοξικών ουσιών από το νερό, ενώ οι γεωχημικές διεργασίες επηρεάζουν την αλληλεπίδραση των διαλυτών ραδιονουκλιδίων με τα αιωρούμενα σωματίδια και τα ιζήματα του βυθού. Η καθίζηση και η επαναιώρηση ελέγχουν την αμφίδρομη μετανάστευση των ραδιονουκλιδίων από τη στήλη του νερού προς τα ιζήματα βαθύτερων στρωμάτων και αντιστρόφως. Οι κύριες φυσικές διαδικασίες που ελέγχουν τη μετανάστευση των ραδιονουκλιδίων στα υδάτινα σώματα συνοψίζονται στα ακόλουθα φαινόμενα [Monte et al., 2003; 2004; 2005]:

 α) διάχυση (diffusion) και διασπορά (dispersion) που προκαλείται από την ανισοκατανομή των συγκεντρώσεων στον υδάτινο όγκο και την τυρβώδη κίνηση του νερού.

β) μεταφορά (transport) που προκαλείται από τα ρεύματα του νερού.

γ) ανταλλαγή μεταξύ διαλυτής (dissolved) και σωματιδιακής (particulate) φάσης των ραδιονουκλιδίων.

δ) καθίζηση (sedimentation) και επανακινητοποίηση (re-mobilisation) των ραδιονουκλιδίων μετά την αλληλεπίδραση με αιωρούμενα σωματίδια και ιζήματα του βυθού.

Οι δύο πρώτες διεργασίες είναι ανεξάρτητες από τα χαρακτηριστικά των ραδιονουκλιδίων, ενώ οι διεργασίες (γ) και (δ), εξαρτώνται από το εκάστοτε ραδιονουκλίδιο καθώς συνδέονται άμεσα με τις φυσικές και χημικές του ιδιότητες.

Οι παραπάνω διαδικασίες είναι κοινές σε όλα τα είδη υδάτινων σωμάτων (ποτάμια, λίμνες, θάλασσες κτλ.). Παρ' όλα αυτά, η ισχύς των παραπάνω φαινομένων μπορεί να διαφέρει δραματικά, ενώ και άλλα, επιπλέον, φαινόμενα μπορούν να παρουσιάζονται, ανάλογα με το είδος του νερού (αλατότητα), την ευρύτερη χημική σύσταση, το μέγεθος και τη μορφολογία του υδροφορέα, την υδρολογία και τη δυναμική κυκλοφορία κ.ά. Για το λόγω αυτό, είναι χρήσιμο να εξεταστούν οι μηχανισμοί μεταφοράς ραδιονουκλιδίων και ανά υδάτινο σώμα.

Συγκεκριμένα, στην περίπτωση ραδιονουκλιδίων που αποβάλλονται σε επιφανειακά ύδατα, όπως οι λίμνες, τα ποτάμια, οι εκβολές ποταμών και τα παράκτια ύδατα, οι βασικές φυσικές και χημικές διεργασίες που επηρεάζουν τη μεταφορά τους από το σημείο προέλευσης συνοπτικά περιλαμβάνουν τις εξής διαδικασίες [Onishi et al., 1980, Jirka et al., 1983]:

α) ροής, όπως κατακόρυφης μεταφοράς (advection) λόγω ρευμάτων και διαδικασίες ανάμειξης λόγω της τυρβώδους διασποράς (turbulent dispersion),

β) ιζηματογένεσης, όπως είναι η προσρόφηση-απόθεση (adsorption-desorption) σε αιωρούμενα ιζήματα, καθώς και κατακόρυφης μεταφοράς-εναπόθεσης (precipitation) και επαναιώρηση (resuspension) του ιζήματος, το οποίο απορροφά ραδιονουκλίδια.

γ) απώλειας, συμπεριλαμβανομένης της ραδιενεργού αποδιέγερσης (decay) και δευτερεύοντες μηχανισμούς που μειώνουν τις συγκεντρώσεις στο νερό, όπως η πτητικότητα (volatilization) π.χ. του ραδονίου.

Οι διαδικασίες αυτές είναι εν γένει τρισδιάστατα φαινόμενα παροδικής φύσης, ωστόσο πολλές από αυτές μπορούν να θεωρηθούν ότι βρίσκονται σε μια σταθερή κατάσταση ισορροπίας δεδομένης της επίτευξης ταχείας ομοιογένειας στο γλυκό/υφάλμυρο νερό και του μικρού βάθους του υδροφορέα.

Αναφορικά με τα υπόγεια ύδατα, το νερό κατά την παραμονή και κίνησή του διαμέσω των υδροφορέων στο υπέδαφος, εμπλουτίζεται σε ραδιονουκλίδια προερχόμενα από τα πετρώματα που περιβάλλουν τους υδροφόρους ορίζοντες. Κατά την υπόγεια διαδρομή του νερού, ραδιονουκλίδια εισέρχονται μετά από [Porcelli, 2008]:



Σχήμα 2.1. Παράγοντες που επηρεάζουν τη συγκέντρωση ραδιοϊσοτόπων των φυσικών ραδιενεργών σειρών στο υπόγειο νερό[Porcelli, 2008].

α) διάβρωση (weathering) των επιφανειών του υδροφόρου αγωγού, λόγω της ροής του νερού ή προσρόφηση (adsorption) των ραδιονουκλιδίων από τις επιφάνειες, μέσω της χημικής διαλυτοποίησης των στοιχείων τους

β) ανάκρουση (recoil) θυγατρικών πυρήνων μετά από διάσπαση μητρικού πυρήνα ο οποίος μπορεί να βρίσκεται έως και σε μικρή απόσταση από την επιφάνεια του υδροφόρου αγωγού ή μεταστοιχείωση (production) εντός του νερού διαλυτών ραδιονουκλιδίων παράγοντας θυγατρικά ραδιονουκλίδια. γ) απομάκρυνση ραδιονουκλιδίων, όπως και στην περίπτωση των επιφανειακών υδάτων, ως αποτέλεσμα της ραδιενεργού μεταστοιχείωσης, της καθίζησης ή της προσρόφησης από στοιχεία των τοιχωμάτων του υδροφορέα.

Οι παραπάνω διαδικασίες εισόδου/εξόδου των ραδιονουκλιδίων από τα υπόγεια νερά καθορίζονται από τη ραδιοχημική συμπεριφορά, αλλά και το χρόνο ημιζωής τους. Με αυτό τον τρόπο μπορούμε να έχουμε εντελώς διαφορετικές συγκεντρώσεις ραδιοϊσοτόπων, στο εξερχόμενο από ένα υδροφόρο ορίζοντα υπόγειο νερό, ακόμα και αν η αρχική τους αναλογία στα περιβάλλοντα πετρώματα είναι ίδια.

Στην περίπτωση της διασποράς των ραδιονουκλιδίων στην ανοιχτή θάλασσα οι μηχανισμοί είναι εν πολλοίς οι ίδιοι που αναφέρθηκαν παραπάνω, με διαφορετική βαρύτητα όμως λόγω επιπλέον διεργασιών. Στο θαλάσσιο περιβάλλον λαμβάνουν χώρα πολύπλοκες γεωβιοχημικές αντιδράσεις, όπως η διάλυση, η υδρόλυση, η συμπλοκοποίηση με οργανικά και ανόργανα ιόντα, αντιδράσεις οξειδοαναγωγής, σχηματισμού κολλοειδών, προσρόφησης και εκρόφησης σε επιφάνειες ορυκτών, συγκαταβύθισης κ.ά. Ο βαθμός συνεισφοράς τους καθορίζεται από τις χημικές διεργασίες κατά τη διάλυση των ραδιονουκλιδίων, η οποία με τη σειρά της εξαρτάται από τα φυσικοχημικά χαρακτηριστικά του θαλασσινού νερού όπως η ιοντική ισχύς, η οξειδοαναγωγική κατάσταση (Eh), η οξύτητα (pH) και η παρουσία σύμπλοκων οργανικών ή ανόργανων ενώσεων. Επιπρόσθετα, τα κολλοειδή και αιωρούμενα σωματίδια που βρίσκονται σε αφθονία στο θαλασσινό νερό εμπλέκονται σε διαδικασίες προσρόφησης, συγκαταβύθισης ή αντιδράσεις ιοντοανταλλαγής με τα ραδιονουκλίδια στερεής, σωματιδιακής, μορφής [Ευαγγελίου, 2009].

Ιδιαίτερη σημασία για το θαλάσσιο περιβάλλον έχει η μορφή με την οποία έχουν εισέλθει τα ραδιονουκλίδια στο νερό, το αν δηλαδή βρίσκονται σε διαλυτή ή σωματιδιακή μορφή. Ο διαχωρισμός αυτός συνδέεται με τον τρόπο και την ταχύτητα οριζόντιας και κατακόρυφης (στην υδάτινη στήλη) μεταφοράς τους και έτσι έχει επικρατήσει εναλλακτικά η ορολογία των διατηρητικών (conservative) ραδιονουκλιδίων, που αναφέρεται στα διαλυτά που είναι ευκίνητα και παραμένουν στο υδάτινο σώμα για πολύ μεγάλο χρονικό διάστημα, και των μη διατηρητικών (non conservative), που είναι τα προσροφημένα ραδιονουκλίδια σε αιωρούμενα σωματίδια και απομακρύνονται πιο γρήγορα από το υδάτινο σώμα λόγω καταβύθισης. Με βάση τον διαχωρισμό αυτό οι βασικές διεργασίες που λαμβάνουν χώρα στο νερό είναι:

a) η υδροδυναμική μεταφορά, που οφείλεται στα υδάτινα οριζόντια και κατακόρυφα ρεύματα μετακινώντας όγκους υδάτων, συμπαρασύροντας και τα ραδιονουκλίδια. Η μετακίνηση των ραδιονουκλιδίων εξαρτάται σε μεγάλο βαθμό από τον τρόπο και την περιοχή εισόδου τους στη θάλασσα. Τα διατηρητικά ραδιονουκλίδια όταν εισάγονται στην επιφάνεια κατανέμονται ομοιόμορφα σε σχετικά μεγάλες γεωγραφικές περιοχές, ενώ κατόπιν πραγματοποιείται αραίωση των επιφανειακών συγκεντρώσεων με διεργασίες κάθετης ανάμειξης. Η βύθιση αυτή των επιφανειακών υδάτων σε μεγαλύτερα βάθη μπορεί να οδηγήσει και σε οριζόντια διασπορά λόγω δημιουργίας ρευμάτων. Στην περίπτωση σημειακής εισόδου στο θαλάσσιο περιβάλλον, η αρχική διαλυτοποίηση εξαρτάται από τη διαφορά στην

πυκνότητα των υδάτων εκροής και του θαλάσσιου νερού. Σημαντικοί παράγοντες είναι και το βάθος στο οποίο πραγματοποιείται η απόρριψη, τα παλιρροιακά και στροβιλώδη ρεύματα της θάλασσας και η ύπαρξη ανεμογενών κυμάτων. Τα σωματιδιοδραστικά και μη διατηρητικά ραδιονουκλίδια που προσροφούνται σε σωματίδια καταβυθίζονται επιπλέον και λόγω βαρύτητας.

β) η διάχυση, που επηρεάζει σε μεγαλύτερο βαθμό τα διατηρητικά ραδιονουκλίδια και στηρίζεται στις διεργασίες ανάμειξης και στρωμάτωσης των ραδιονουκλιδίων στην υδάτινη στήλη. Τα ραδιονουκλίδια υφίστανται κάθετη και οριζόντια μοριακή διάχυση και ανάμειξη λόγω της τυχαίας διασποράς των μορίων στο υγρό, με αποτέλεσμα να κινούνται από περιοχές υψηλής συγκέντρωσης σε περιοχές χαμηλής συγκέντρωσης, ως αποτέλεσμα της τυχαίας κίνησης. Παράλληλα, πραγματοποιείται κάθετη και οριζόντια τυρβώδης ή στρωτή διάχυση, μια κλιμακωτή διεργασία που προκαλείται από απότομη εναλλαγή στρωτής και τυρβώδους ροής. Το μεγαλύτερο ποσοστό των περισσότερων ραδιονουκλιδίων βρίσκονται σε διαλυτή μορφή – με εξαίρεση το ³Η που είναι πλήρως διαλυτό – και συμμετέχουν στην αλατότητα της θάλασσας.

γ) η κατακόρυφη διαστρωμάτωση, που ελέγχεται από την κατακόρυφή μετακίνηση των ραδιονουκλιδίων στην υδάτινη στήλη. Οι συγκεντρώσεις των διατηρητικών ραδιονουκλιδίων μειώνονται με την αύξηση του βάθους, ενώ μετά τα 2000 m βρίσκονται σε ιχνοποσότητες. Στα επιφανειακά ύδατα οι συγκεντρώσεις των διατηρητικών ραδιονουκλιδίων (π.χ. 137 Cs και 90 Sr) μειώνονται με το χρόνο λόγω της ραδιενεργού αποδιέγερσης και της φυσικής ανάμειξης, η οποία συνοδεύεται από προοδευτική αύξηση των συγκεντρώσεων στις κατώτερες ζώνες. Έτσι, για παράδειγμα, ο αποτελεσματικός χρόνος ημιζωής του τεχνητού ¹³⁷Cs είναι 14 χρόνια, ενώ ο μέσος χρόνος παραμονής του στους ωκεανούς είναι 26 χρόνια με το 90-95% να παραμένει διαλυτό σε μεγαλύτερα βάθη. Τα μη διατηρητικά ραδιονουκλίδια απομακρύνονται από τα επιφανειακά ύδατα και με σταδιακή ιζηματογένεση μέσω της σύνδεσής τους με αιωρούμενα σωματίδια, οδηγώντας σε πολύ μικρότερους χρόνους παραμονής από αυτούς που αναφέρονται στα διατηρητικά ραδιονουκλίδια. Στο ανοικτό πέλαγος που χαρακτηρίζεται από χαμηλής περιεκτικότητας σωματιδιακή φάση η αναλογία των μη διατηρητικών στοιχείων είναι πολύ μικρή (π.χ. 5 % για το Pu και 10 % για το Am), ενώ το μέγιστο της συγκέντρωσης στη κατακόρυφη κατανομή εμφανίζεται στο υποεπιφανειακό στρώμα.

δ) η μεταφορά στο ίζημα, που συνδέεται με την μεταφορά των αιωρούμενων σωματιδίων και στηρίζεται στους μηχανισμούς ιζηματογένεσης. Μη διατηρητικά ραδιονουκλίδια προσροφημένα σε πολύ λεπτόκοκκα στερεά ή σε κολλοειδή συστατικά μεταφέρονται από τη ροή των ρευμάτων, όπως και τα διαλυμένα ραδιονουκλίδια, ενώ παράλληλα λαμβάνουν χώρα πρόσθετες διεργασίες μεταφοράς, όπως επαναιώρηση, συσσωμάτωση ή αποσυσσωμάτωση και κροκίδωση. Αντίθετα, τα ραδιονουκλίδια που είναι συνδεδεμένα με χονδρόκοκκα σωματίδια απορρίπτονται από την υδάτινη στήλη, εξαιτίας της ιζηματογένεσης. Τα ιζήματα μπορούν να καταβυθιστούν μόνο όταν η ταχύτητα ροής δεν ξεπερνά ένα συγκεκριμένο κατώφλι, που πάνω από αυτό μεταφέρονται αιωρούμενα μέσω έντονης τυρβώδους ροής. Όταν φθίνει η υδραυλική ροή η περίσσεια των στερεών καθιζάνει κι αποθηκεύεται στον πυθμένα, οδηγώντας και σε συσσώρευση των συνδεδεμένων ραδιονουκλιδίων. Τέλος, στη διεπαφή ιζήματος-νερού είναι δυνατό να πραγματοποιηθεί μοριακή διάχυση των διαλυτών ραδιονουκλιδίων, αν η συγκέντρωση παραμένει σταθερή στην ενδιάμεση στοιβάδα.

2.1.3 Διασπορά ραδιονουκλιδίων στο ίζημα

Το ίζημα αποτελείται από αιωρούμενα σωματίδια που έχουν κατατεθεί ως ένα στρώμα στερεών σωματιδίων σε ένα πυκνό εναιώρημα στο κατώτερο μέρος της υδάτινης στήλης. Προέρχεται από φερτή ύλη και σωματίδια που παράγονται στο σώμα του νερού με φυσικές, χημικές και βιολογικές διαδικασίες. Αν και ο ρόλος των ιζημάτων στα υδάτινα οικοσυστήματα θεωρείται ως η τελική απόληξη για τα στοιχεία του συστήματος, ταυτόχρονα αποτελούν και δραστικά στοιχεία για φυσικές, χημικές και βιολογικές διαδικασίες. Αυτές οι διαδικασίες μάλιστα πραγματοποιούνται σε πολύ υψηλότερα ποσοστά από ότι σε ολόκληρη την ογκομετρική στήλη του νερού, λόγω της μεγαλύτερης πυκνότητας των σωματιδίων και των επιφανειών τους και περιλαμβάνουν [Kamp-Nilsen, 2008]:

α) φυσικές διεργασίες, που περιλαμβάνουν φαινόμενα όπως η καθίζηση (settling), η επιφανειακή διάβρωση (erosion), η διάχυση (diffusion) μέσα στην στήλη του ιζήματος και στην διεπιφάνεια ιζήματος-νερού, και την βιο-ανάδευση (bioturbation) από βενθικούς οργανισμούς.

β) χημικές διεργασίες, που περιλαμβάνουν διάφορες μορφές ισορροπίας των διεργασιών ρόφησης (sorption) σε μεγαλομόρια και κολλοειδή, κατακρήμνισης (precipitation) ιζήματος και διαλυτοποίησης (dilution) σωματιδίων.

γ) βιολογικές διαδικασίες, όπως η φωτοσύνθεση (photosynthesis), η ανοργανοποίηση (mineralization) και η αναπνοή (respiration) της υποβρύχιας χλωρίδας και η κατανάλωση ύλης (grazing) από τη υποβρύχια πανίδα κατά μήκος των ισχυρών βαθμίδων φωτός, οξυγόνου και θρεπτικών στοιχείων.

Τα ραδιονουκλίδια εισέρχονται στα ιζήματα των παράκτιων περιοχών με διάφορους τρόπους και μορφές όπως καθίζηση, αλληλεπίδραση μεταξύ σωματιδίων ιζήματος-ραδιονουκλιδίων, ιοντοανταλλαγή, σε κολλοειδή μορφή, σε συσσωματώματα κρυστάλλων κ.ά. Η διασπορά και κατανομή των ραδιονουκλιδίων στη στήλη του ιζήματος εξαρτάται επίσης από μια σειρά οικολογικές διεργασίες και επηρεάζονται από την αλατότητα, τη γλωριότητα και τη οξύτητα του νερού και σχετίζεται άμεσα με την πορεία μεταφοράς και εναπόθεσης των σωματιδίων, που συγκροτούν τα ιζήματα, στον πυθμένα. Αξίζει επίσης να σημειωθεί, ότι η ιζηματογένεση στην αιγιαλίτιδα ζώνη είναι πιο περίπλοκη σε σχέση με την αντίστοιχη στην πελαγική ζώνη, λόγω της ανομοιογένειας των υδάτων, που οφείλεται στην ανάμειξή τους από τα κύματα, τις βροχοπτώσεις και την απορροή γλυκών νερών. Αποτέλεσμα αυτών των διαδικασιών είναι η ελάττωση της αλατότητας και η

διακύμανση των εισερχόμενων από την ξηρά ραδιονουκλιδίων. Παράλληλα, παρουσιάζουν μια φάση δυναμικής ανταλλαγής με την υδάτινη φάση, που αντιπροσωπεύει ποσοστό του λεπτόκοκκου κλάσματος του ιζήματος.

Η ταχύτητα καταβύθισης και εναπόθεσης των ραδιονουκλιδίων εξαρτάται από τη διαλυτότητά τους στο νερό ή τον βαθμό προσρόφησης τους στα αιωρούμενα σωματίδια. Τα ισχυρά ευδιάλυτα ραδιονουκλίδια (π.χ.¹³⁷Cs και ⁹⁰Sr) εναποτίθενται στον πυθμένα με πολύ αργό ρυθμό σε σχέση με αυτά που παραμένουν σε σωματιδιακή μορφή (π.χ¹⁰⁶Ru και¹⁴⁴Ce). Τα ραδιονουκλίδια, που τελικά δεσμεύονται στα ιζήματα του πυθμένα, χάνονται εντελώς από το σύστημα, λόγω διαδοχικών αποδιεγέρσεων. Ωστόσο, τα ραδιονουκλίδια του ιζήματος των ανώτερων στρωμάτων μπορούν να επαναιωρηθούν στην υδάτινη στήλη μέσω:

α) της χημικής οξειδοαναγωγικής αλλαγής της σύστασης του ιζήματος, όπως π.χ. η επανακινητοποίηση του ¹³⁷Cs σε αναερόβια ιζήματα.

β) των ανοδικών ρευμάτων στο νερό της ενδιάμεσης στοιβάδας νερούιζήματος, που δημιουργούνται από την βαθμιαία σταθεροποίηση και περαιτέρω καθίζηση ιζημάτων

γ) της φυσικής ανάμειξης, λόγω έντονου κυματισμού, κυρίως σε ρηχά νερά, των επιφανειακών ρευμάτων, κλιματολογικών αιτιών, αλιευτικών ενεργειών και από βενθικούς ή άλλους οργανισμούς.

Σε κάθε περίπτωση, η εναλλαγή των υδάτων επιτρέπει την επιστροφή στερεών σωματιδίων στην υδάτινη στήλη και στα προσροφημένα σε σωματίδια ραδιονουκλίδια να απελευθερωθούν στην υδάτινη στήλη, όπου και επαναδιαλύονται.

2.2 Μοντέλα ραδιοχρονολόγησης ιζήματος

Για παραπάνω από πέντε δεκαετίες, τα ραδιονουκλίδια χρησιμοποιούνται ως ιχνηθέτες για τη μελέτη περιβαλλοντικών συστημάτων. Ενώ αρχικά τα τεχνητά ραδιονουκλίδια ήταν αυτά που χρησιμοποιήθηκαν στην έρευνα, στις μέρες μας πλέον χρησιμοποιούνται και τα φυσικά ραδιονουκλίδια αλλά και τα σταθερά ισότοπα. Τα ραδιονουκλίδια είναι ευρέως διασκορπισμένα στο φυσικό περιβάλλον και η κατά τόπους μεταβολή της αφθονίας τους μπορεί να χρησιμοποιηθεί για τον προσδιορισμό των οδών μεταφοράς μάζας και της χρονολόγησης (dating) περιβαλλοντικών διαδικασιών στο νερό, το έδαφος και την ατμόσφαιρα. Έτσι, το ¹⁴CO₂ μπορεί να χρησιμοποιηθεί για την μελέτη της κυκλοφορίας του αέρα και του κύκλου του άνθρακα στην ατμόσφαιρα και τα ²²²Rn, ²¹⁰Pb και ⁷Be για άλλες ατμοσφαιρικές διεργασίες. Το ΗΤΟ χρησημοποιείται ως ιχνηθέτης της ατμοσφαιρικής υγρασίας (H₂O), ενώ τα ³H, ³⁶Cl και ¹⁴C για την χρονολόγηση επιφανειακών και υπόγειων υδάτων. Τα σταθερά ισότοπα Η, Li, B, C, N, O, S και Cl χρησιμοποιούνται για υδρολογικές μελέτες, τα ραδιονουκλίδια 223,224,226,228 Ra για τον προσδιορισμό της προέλευσης και της ανάμειξης των υπόγειων και επιφανειακών υδάτων και τεχνητά ραδιονουκλίδια όπως τα ⁵⁹Fe, ⁴⁶Sc, ¹¹⁰Ag, ¹⁹⁸Au, ¹³⁴Cs, ⁵¹Cr, $\kappa\lambda\pi$. σε μελέτες

διάβρωσης εδάφους. Τέλος τα ραδιονουκλίδια επιφανειακής εναπόθεσης (fallout radionuclides, FRN) ¹³⁷Cs, ²¹⁰Pb και ⁷B έχουν χρησιμοποιηθεί στην πλειοψηφία των μελετών διάβρωσης-καθίζησης και ιζηματογένεσης και άλλα ραδιονουκλίδια όπως τα ²⁴⁰Pu, ¹⁴C, ³²Si, ²⁶Al και ³⁶Cl στην εκτίμηση της διάβρωσης του εδάφους και της απόθεσης ύλης σε συγκεκριμένα περιβάλλοντα [Froehlich, 2009].

Στην περίπτωση των γεωλογικών επιστημών, η μετάβαση από την ποιοτική περιγραφή της σειράς των γεγονότων σε μια ποσοτική βάση, συμβαίνει μόνο όταν υπάρχει κάποιος τρόπος για να αντιστοιχηθούν δεδομένα ιζήματος ή νερού με συγκεκριμένες χρονολογίες. Η ραδιενεργός διάσπαση σε αυτή την περίπτωση αποτελεί μια φυσική διαδικασία χρονολόγησης καθώς τα ραδιονουκλίδια είναι αναπόσπαστο μέρος των στοιχείων του πλανήτη. Αν και εν γένει υπάρχουν και άλλοι τρόποι χρονολόγησης μέσω σταθερών στοιχείων ή έμμεσων παρατηρήσεων, η πραγματοποιεί ποσοτική ραδιοχρονολόγηση αντιστοίχιση καταγραφών με χρονολογίες. Το γεγονός ότι οι χρόνοι ημιζωής τους κυμαίνονται από λίγα δευτερόλεπτα έως εκατοντάδες εκατομμύρια χρόνια, δίνει την δυνατότητα να προσδιοριστεί ένα τεράστιο εύρος της πραγματικής ηλικίας των ιζημάτων με τη χρήση των κατάλληλων ραδιονουκλιδίων. Επιπλέον, η ραδιοχρονολόγηση αποτελεί τον μοναδικό τρόπο προσδιορισμού σύγχρονων διαδικασιών ιζηματογένεσης, που έχουν ιδιαίτερη βαρύτητα καθώς υπόκεινται σε μια σειρά ανθρωπογενών επιδράσεων, συμπεριλαμβανομένης της μόλυνσης από βιολογικές, χημικές και ραδιενεργές πηγές.

Σήμερα υπάρχει ένας μεγάλος αριθμός ραδιονουκλιδίων που χρησιμοποιούνται για την χρονολόγηση των ιζημάτων και του νερού και μπορούν να χωριστούν σε τέσσερις βασικές κατηγορίες [Dickin, 1997]: (α) σε αυτά που έχουν εξαφανιστεί εντελώς λόγω της μη αναπλήρωσής τους (π.χ. σειρά ποσειδωνίου), (β) σε αυτά που αναπληρώνονται από τη διάσπαση των φυσικών μητρικών ραδιονουκλιδίων στα ιζήματα ή στα ύδατα της γης ή με τους μητρικούς πυρήνες να έχουν αναδυθεί από βαθύτερα υλικά κατά τη διάρκεια του γεωλογικού χρόνου ή με ειδικές εκδηλώσεις, όπως ηφαίστεια μεγάλου βάθους, (γ) σε εκείνα που αναπληρώνονται στην ατμόσφαιρα, στα ύδατα και στο έδαφος από την κοσμική ακτινοβολία και (δ) σε εκείνα που είναι τεχνητά τόσο εργαστηριακά όσο και ευρύτερα διαδεδομένη από επιφανειακή εναπόθεση (πυρηνικες δοκιμές, ατυχήματα και διαρροές). Σε όλες τις περιπτώσεις, η χρονολόγηση βασίζεται στο ότι κάθε ασταθές ραδιονουκλίδιο παράγεται από την διάσπαση ενός μητρικού με συγκεκριμένο χρόνο ημιζωής. Με τη μέτρηση της ενεργότητας του μητρικού και του θυγατρικού ραδιονουκλιδίου, μπορεί κανείς να προσδιορίσει την ποσότητα που υπήρχε στο ίζημα κατά τη στιγμή της απόθεσής του. Πρακτικά, αν κάποιος υποεκτιμήσει την ηλικία του ιζήματος, τότε η ενεργότητα του θυγατρικού θα είναι μικρότερη από αυτή που παρατηρήθηκε πειραματικά, ενώ αν κάποιος υπερεκτιμήσει την ηλικία του ιζήματος, η ενεργότητα του θυγατρικού θα είναι μεγαλύτερη από την παρατηρούμενη. Ως εκ τούτου, μπορεί να προσδιοριστούν τα χρονολογικά όρια της ηλικίας του ιζηματογενούς σχηματισμού. Συνδυασμός ραδιονουκλιδίων υπό αυτή την έννοια μπορεί να προσδιορίσει με μεγαλύτερη ακρίβεια την χρονολογία των ιζημάτων και κατά επέκταση τον ρυθμό ιζηματογένεσης. Για τα σύγχρονα ιζήματα ηλικίας έως περίπου 100 έτη ή και

λιγότερο, τα δύο κυρίαρχα ραδιονουκλίδια που έχουν χρησιμοποιηθεί σε σειρά μελετών είναι ο ²¹⁰Pb και το ¹³⁷Cs, λόγω των κατάλληλων χρόνων ημιζωής τους, περίπου 22 και 30 ετών αντίστοιχα, και των υψηλών συγκεντρώσεων σε ιζήματα ανά τον κόσμο.

Στην συνέχεια παρουσιάζονται τα κυρίαρχα στην βιβλιογραφία μοντέλα ραδιοχρονολόγησης με βάση την κατακόρυφη διασπορά του ²¹⁰Pb και του ¹³⁷Cs σε πυρήνες ιζήματος.

2.2.1 Ραδιοχρονολόγιση με ²¹⁰Pb

To ²¹⁰Pb είναι ένα φυσικό ραδιονουκλίδιο με χρόνο ημιζωής $T_{1/2}$ = 22.23 ± 0.12 y που ανήκει στη ραδιενεργό σειρά του ²³⁸U. Το γεγονός ότι υπάρχει παντού στο φυσικό περιβάλλον το καθιστά ιδανικό περιβαλλοντικό ιχνηθέτη ωκεάνιας βιογεωχημείας [Nozaki et al., 1991; Wei and Murray, 1994], ατμοσφαιρικών εναποθέσεων και μόλυνσης [Kaste et al., 2003; Sanchez-Cabeza et al., 2007], διεργασιών ιζηματογένεσης [Robbins and Edgington, 1975; DeMaster et al., 1991] και ραδιοχρολόγησης ιζημάτων [Koide et al., 1972; Sanchez-Cabeza et al., 1999]. Η ραδιοχρονολόγηση με ²¹⁰Pb βασίζεται σε μετρήσεις των συγκεντρώσεών του σε πυρήνες ιζήματος ή εδάφους.

Στην στήλη του ιζήματος ή του εδάφους η συνολική συγκέντρωση ραδιενέργειας ²¹⁰Pb έχει δύο συνιστώσες, οι οποίες χαρακτηρίζονται ως υποστηριζόμενος (supported) 210 Pb_{sup} και μη-υποστηριζόμενος (unsupported) ή επιπλέον (excess) ²¹⁰Pb_{ex}, έτσι ώστε ²¹⁰Pb = ²¹⁰Pb_{sup} + ²¹⁰Pb_{ex}. O ²¹⁰Pb_{sup} παράγεται με επιτόπια αποδιέγερση του μητρικού ραδιονουκλιδίου ²²⁶Ra ως μέρος της ραδιενεργού σειράς που προϋπάργει σε σωματίδια του εδάφους ή του ιζήματος, ενώ ο ²¹⁰Pbex προέρχεται από τη ραδιενεργό διάσπαση του πτητικού ²²²Rn στον αέρα, όπου συνδέεται με αερολύματα και εναποτίθεται στην επιφάνεια του εδάφους ή στο ανώτερο στρώμα του ιζήματος μέσω ξηρής ή υγρής εναπόθεσης [Turekian et al., 1977]. Το ατμοσφαιρικό ραδόνιο με τη σειρά του προέρχεται από τη διάσπαση του ²²⁶Ra στο έδαφος, από όπου και διαφεύγει μέσω διάχυσης στην ατμόσφαιρα. Στα υδάτινα οικοσυστήματα το συνολικό ²¹⁰Pbex του ιζήματος στον πυθμένα μπορεί να προέρχεται και από αποθέσεις ²¹⁰Pb στο έδαφος, που μπορούν να μεταφερθούν στους υδροφορείς μέσω έκπλυσης του εδάφους, ή από τον κοινώς επονομαζόμενο επιτόπιο (in situ) ²¹⁰Pb_{in-situ}, που έχει παραχθεί και στη στήλη του νερού από τη διάσπαση του διαλυμένου σε αυτό 226 Ra. Ο 210 Pb_{in-situ} στη στήλη του νερού προσκολλάται σε αιωρούμενα σωματίδια και αποτίθεται στα ιζήματα του βυθού [Appleby and Oldfield, 1992].

Η εναπόθεση ²¹⁰Pb στην επιφάνεια του εδάφους είναι μια σταθερή φυσική διαδικασία, λόγω της συνεχούς έκλυσης ²²²Rn στη ατμόσφαιρα. Η χωρική διακύμανση του ρυθμού εναπόθεσης του ατμοσφαιρικού ²¹⁰Pb κυμαίνεται σε 30-370 Bq/m² y⁻¹. Από τη στιγμή που βρεθεί στο έδαφος ή στο ίζημα ο ²¹⁰Pb προσροφάται, όπως και το ¹³⁷Cs, γρήγορα και ισχυρά. Σε συστήματα που έχουν παραμείνει κλειστά για επαρκές χρονικό διάστημα (>150 y), ο συγκεντρώσεις του ²¹⁰Pb_{ex} είναι

μεγαλύτερες στην επιφάνεια και μειώνονται με το βάθος. Στις περισσότερες περιπτώσεις, ο ²¹⁰Pb στα ιζήματα μεγάλου βάθους βρίσκεται σε ισορροπία με το μητρικό ραδιονουκλίδιο ²²⁶Ra (T_{1/2}=1600 y), με εξαίρεση τις περιπτώσεις που υπάρχουν μεγάλες και απότομες μεταβολές στις κατακόρυφες συγκεντρώσεις του ²²⁶Ra λόγω της κατακόρυφης διάχυσής του [Brenner et al., 1994].



Σχήμα 2.2. Αναπαράσταση φυσικών διεργασιών εναπόθεσης ²¹⁰Pb σε υδάτινα ιζήματα.

Η μέτρηση του 210 Pb_{ex} σε πυρήνες ιζήματος έχει χρησιμοποιηθεί ευρέως για την μελέτη τις αναδιανομής του εδάφους και την εκτίμηση του ρυθμού διάβρωσηςκαθίζησης για το χρονικό διάστημα των τελευταίων 100-150 χρόνων με χρονική διακριτότητα 5-10 έτη. Ο προσδιορισμός του ²¹⁰Pbex επιτυγχάνεται από το γεγονός ότι σε κάθε ιζηματικό επίπεδο ο ²¹⁰P_{sup} είναι σε ραδιενεργό ισορροπία με τα προγονικά του $^{226} Ra$ και, ως εκ τούτου, ο $^{210} Pb_{ex}$ προκύπτει από την διαφορά στην ενεργότητα του συνολικού ²¹⁰Pb και του μητρικού ²²⁶Ra. Από αναλυτική άποψη, η συνολική συγκέντρωση ²¹⁰Pb στα ιζήματα προσδιορίζεται συνήθως είτε με απευθείας μέτρηση των δειγμάτων με φασματοσκοπία-γ της εκπεμπόμενης ακτίνας-γ στα 46.5 keV [Schelske et al., 1994] είτε με χημική επεξεργασία και φασματομετρία-α, μέσω του θυγατρικού του ραδιονουκλιδίου ²¹⁰Po όταν έχει επιτευχθεί μεταξύ τους ραδιενεργός ισορροπία με ανιχνευτές στερεάς κατάστασης [Sanchez-Cabeza et al., 1998] ή υγρούς σπινθηριστές [Vajda et al., 1997] είτε σπανιότερα με καταμέτρηση των εκπεμπόμενων σωματιδίων-β [Godoy et al., 1998]. Κάθε τεχνική έχει τα δικά της πλεονεκτήματα και μειονεκτήματα, με αντίστοιχη επίδραση στην ακρίβεια της ραδιοχρονολόγησης (Πίνακας 2.1).

To ²²⁶Ra που δίνει και την ποσότητα του ²¹⁰Pb_{ex} καθορίζεται συνήθως από τη φασματοσκοπία-γ, κυρίως μέσω της γραμμής 351.9 keV του ²¹⁴Pb με τον οποίο βρίσκεται σε ισορροπία, αλλά μπορεί επίσης να προσδιορισθεί, για παράδειγμα, και με μετρήσεις με υγρό σπινθηριστή [Sanchez-Cabeza et al., 2010]. Ο ²¹⁰Pb_{ex}, η βασική ποσότητα που χρησιμοποιείται για τη χρονολόγηση, υπολογίζεται ως η διαφορά μεταξύ του συνολικού και του ²¹⁰Pb_{sup} ή από την σταθερή ελάχιστη τιμή που αποκτά η ενεργότητα στα μεγαλύτερα βάθη – όπου πλέον όλος ο ²¹⁰Pb_{ex} έχει αποδιεγερθεί

Πλεονεκτήματα	Φασματοσκοπία-α - χαμηλό υπόβαθρο, υψηλή ευαισθησία - κατάλληλο για μικρές ποσότητες δείγματος (έως 0.2 g ξηρό ίζημα)	Φασματοσκοπία-γ - μη καταστρεπτική μέθοδος
		- ταυτόχρονη μέτρηση πολλών ραδιονουκλιδίων σε ένα φάσμα
		- όχι χημική επεξεργασία δειγμάτων - εξάρτηση απόδοσης μόνο από φυσικές παραμέτρους
	- φθηνότεροι ανιχνευτές, μεγάλη διαθεσιμότητα	
Μειονεκτήματα	- χρονοβόρα διαδικασία διαχωρισμού	- η απόδοση διαφέρει ανάλογα με την ενέργεια της ακτίνας-γ
	- η χημική απόδοση πρέπει να προσδιορίζεται για κάθε εκχύλιση, πιθανή πηγή σφάλματος	- ενδοαπορρόφηση του δείγματος, απαραίτητες διορθώσεις
		- υψηλό υπόβαθρο
	- δεν υπολογίζει ²¹⁰ Pb _{ex} και ¹³⁷ Cs	
	- το ²¹⁰ Pb μετράται μέσω ²¹⁰ Po (περισσότερη αντιδραστική	
	οργανική ύλη), πιθανή	
	ανισορροπία στα ιζήματα, εμπλουτισμός σε πρόσφατα	
	επιφανειακά στρώματα	

Πίνακας 2.1. Πλεονεκτήματα και μειονεκτήματα μέτρησης ²¹⁰Pb με φασματοσκοπία-α και -γ.

πλήρως και όλος ο 210 Pb είναι υποστηριζόμενος – με την υπόθεση ότι το 226 Ra έχει σταθερή ενεργότητα σε όλο το προφίλ του πυρήνα.

Η μελέτη της αποδιέγερσης του ²¹⁰Pb_{ex} είναι η βάση της χρονολόγησης των πυρήνων ιζημάτων. Από την εκθετική εξίσωση του νόμου της ραδιενεργού αποδιέγερσης και βασιζόμενοι στις υποθέσεις ότι: (α) η καθίζηση και η επαναιώρηση του ιζήματος δεν διακόπτεται στο χρόνο, (β) δεν υπάρχει καμία κινητικότητα του ²¹⁰Pb_{ex} μετά την απόθεσής του, (γ) η ταχύτητα καθίζησης είναι σταθερή στο χρόνο και (δ) δεν υπάρχει καμία ανάμειξη μεταξύ των στρωμάτων του ιζήματος, προκύπτει η παρακάτω σχέση που συνδέει την ενεργότητα C με το βάθος z του ιζήματος :

$$C(t) = C_0 \exp(-\lambda \cdot t) \Longrightarrow C(z) = C_0 \exp(-\lambda \cdot z/v)$$
(2.1)

όπου C₀ είναι η επιφανειακή ενεργότητα ²¹⁰Pb_{ex} στο χρόνο t=0 (που αντιστοιχεί στην επιφάνεια του ιζήματος στη θέση z=0), ν είναι η ταχύτητα καθίζησης (που συνδέεται με το βάθος με τη σχέση v = z·t) και λ η σταθερά αποδιέγερσης. Αν η συσσώρευση του ιζήματος καθώς και η ροή του ²¹⁰Pb_{ex} στην επιφάνεια του ιζήματος είναι σταθερές, το προφίλ της συγκέντρωσης κατά μήκος του πυρήνα αναμένεται να είναι μια καθαρά εκθετική καμπύλη. Έτσι, με τις πειραματικές μετρήσεις των C(z) κατά μήκος του πυρήνα και βέλτιστη εκθετική προσαρμογή της σχέσης (2.1) στα δεδομένα μπορεί να προσδιοριστεί η ταχύτητα καθίζησης του ιζήματος.

Η απλή αυτή μέθοδος εφαρμόστηκε για πρώτη φορά για την χρονολόγηση πυρήνων πάγου [Goldberg, 1963] και έκτοτε έχει χρησιμοποιηθεί με επιτυχία σε διαφορετικά περιβάλλοντα και πολλές περιοχές μελέτης. Παρ' όλα αυτά, ικανοποιεί μόνο ένα πολύ περιορισμένο κύκλο περιβαλλοντικών αποθέσεων που απατούνται στη φύση. Για το λόγω αυτό, ακολουθώντας βασικές αρχές αυτής της προσέγγισης έχουν ανεπτυχθεί μια σειρά από θεωρητικά μοντέλα που προσαρμόζονται στις διαφορετικές συνθήκες ιζηματογένεσης. Σε κάθε περίπτωση, τα μοντέλα ραδιοχρονολόγησης ²¹⁰Pbex βασίζονται στη μηχανιστική ερμηνεία της ιζηματογένεσης μη διαταραγμένων ιζημάτων και μπορούν να συναχθούν από μια και μόνο θεμελιώδη εξίσωση [Krishnaswamy et al., 1971], η οποία συσχετίζει τον χρονικά εξαρτημένο ρυθμό μεταβολής της ενεργότητας του 210 Pb_{ex} στο ιζήματα A_s(t) σε Bq ή Bq/kgr, τη ροή του στην επιφάνεια του ιζήματος F(t) σε $Bq/m^2 y^{-1}$ και το ρυθμό ιζηματογένεσης S(t), που μπορεί να εκφραστεί είτε ως ρυθμός συσσώρευσης ιζήματος (sediment accumulation rate) SAR, v, $\sigma\epsilon$ m/y ϵ ite $\omega \zeta \rho v \theta \mu \delta \zeta \sigma v \sigma \sigma \delta \rho \epsilon v \sigma \eta \zeta \mu \delta \zeta \alpha \zeta$ (mass accumulation rate) MAR, u, $\sigma \epsilon \text{ kgr/cm}^2 y^{-1}$, έτσι ώστε, κατά τη στιγμή της απόθεσης των ιζημάτων να ισχύει:

$$A_{s}(t) = \frac{F(t)}{S(t)}$$
(2.2)

Τα μοντέλα ραδιοχρονολόγησης με ²¹⁰Pb_{ex} εφαρμόζονται σε κλειστά συστήματα και βασίζονται σε μια θεμελιώδη υπόθεση για κάποια από τις ποσότητες της σχέσης (2.2). Παρόλο που αυτές οι συνθήκες δεν συναντώνται συχνά, τα μοντέλα αυτά έχουν δώσει καλά αποτελέσματα σε πολλές περιπτώσεις. Τα κυριότερα, που ονομάζονται σύμφωνα με τη βασική τους υπόθεση, είναι τα εξής [Sanchez-Cabeza, J.A. and Ruiz-Fernandez, 2012]:

α) το μοντέλο σταθερής ροής-σταθερής ιζηματογένεσης (Constant Flux-Constant Sedimentation) CFCS, που απαντάται στη βιβλιογραφία και ως CIC-CRS (Constant Initial Concentration - Constant Rate of Supply) ή CF-CRS (Constant Flux - Constant Rate of Supply) [Crosaz et al., 1964; Krishnaswamy et al., 1971; Koide et al., 1973; Robbins, 1978; Appleby and Oldfield, 1978]. Πρακτικά είναι ίδιο με αυτό της εξίσωσης (2.1), με τη διαφορά ότι η ενεργότητα C θεωρείται ότι εξαρτάται από τη συσωρευτική ξηρά μάζα του ιζήματος m, αντί του βάθους του ιζήματος z έτσι ώστε να ισχύει:

$$C(m) = C_0 \exp(-\lambda \cdot z/u) \Longrightarrow \ln C(m) = \ln C_0 - \frac{\lambda}{u}m$$
(2.3)

όπου το u εκφράζει την μέσο ρυθμό προσθήκης ιζήματος στη μονάδα του χρόνου (MAR), και υπολογίζεται από την γραμμική προσαρμογή της λογαριθμικής σχέσης των πειραματικών συγκεντρώσεων με τη συσωρευτική μάζα των δειγμάτων.

Με τον τρόπο αυτό, εξαλείφεται η ανάγκη για διόρθωση της μεταβολής του πορώδους των δειγμάτων ιζήματος που προκαλείται από τη συμπίεση από τα υπερκείμενα στρώματα ή από συμπιεστικές διαταραχές κατά τη δειγματοληψία πυρήνων ιζήματος. Οι διαφορές στο πορώδες φ(z) του ιζήματος (κλασματική περιεκτικότητα ύδατος κατ 'όγκο) και, αντίστοιχα, το ποσοστό της μάζας με το βάθος σε ένα πυρήνα ιζήματος, ως αποτέλεσμα της συμπίεσης, μπορεί να οδηγήσει σε διακυμάνσεις στην ταχύτητα καθίζησης u (SAR) ακόμη και όταν ρυθμός προσθήκης μάζας u (MAR) είναι σταθερός. Έτσι, όταν ο MAR είναι σταθερός, η σχέση μεταξύ του v(0) στην επιφάνεια του ιζήματος και σε οποιαδήποτε άλλο βάθος v(z) είναι:

$$v(z) = v(0) \left[\frac{1 - \phi(0)}{1 - \phi(z)} \right]$$
 (2.4)

β) το μοντέλο σταθερού ρυθμού παροχής (Constant Rate of Supply) CRS ή αλλιώς CF (Constant Flux) [Goldberg, 1963; Crosaz et al., 1964; Krishnaswamy et al., 1971; Robbins, 1978; Smith and Walton, 1980; Appleby and Oldfield, 1983], με βασική υπόθεση ότι η ροή του ²¹⁰Pb_{ex} στην επιφάνεια του ιζήματος είναι σταθερή. Το ολοκλήρωμα του κάθετου προφίλ της ενεργότητας ²¹⁰Pb_{ex} σε βάθος z (ή, εναλλακτικά, σε σωρευτική ξηράς μάζας m) θα ισούται με την (σταθερή) ροή ολοκληρωμένη στο αντίστοιχο χρονικό διάστημα. Ολοκληρώνοντας ως προς το βάθος z η βασική εξίσωση (2.1) παίρνει την μορφή:

$$\mathbf{A}(z) = \int_{z}^{\infty} \mathbf{C}(z) dz = \mathbf{A}_{0} \exp(-\lambda \cdot \mathbf{t}) \Longrightarrow \mathbf{t}(z) = \frac{1}{\lambda} \ln \left[\mathbf{A}_{0} / \mathbf{A}(z) \right]$$
(2.5)

όπου A(z) είναι η αθροιστική ενεργότητα του 210 Pb_{ex} στο ίζημα κάτω από το βάθους z, A₀ είναι η συνολική ενεργότητα στην στήλη του ιζήματος και t(z) η ηλικία του ιζήματος σε βάθος z. Η ταχύτητα καθίζησης v (ή εναλλακτικά, η ταχύτητα συσσώρευσης ιζήματος u) σε κάθε χρονική στιγμή ή ισοδύναμα βάθος είναι:

$$v(z) = \lambda \frac{A(z)}{C(z)}$$
(2.6)

Εδώ, αξίζει να σημειωθεί ότι σε διαφορετικά στρώματα ιζήματος οι αρχικές συγκεντρώσεις καθώς και οι ρυθμοί συσσώρευσης μάζας μπορεί να είναι διαφορετικοί, αλλά θα πρέπει να είναι αντιστρόφως ανάλογοι. Πράγματι, σε πολλές περιοχές μια αύξηση στην παροχή ιζήματος (π.χ. λόγω πλημμύρων) δεν είναι απαραίτητο ότι θα συνοδεύεται και από μεγαλύτερη ροή του ²¹⁰Pb_{ex} στην επιφάνεια του ιζήματος, και επομένως η συγκέντρωση του ²¹⁰Pb_{ex} είναι χαμηλότερη [Robbins, 1978]. Παρ' όλο που αυτή είναι μια συνηθισμένη περίπτωση, αυτό μπορεί να μην συμβεί όταν υπάρχει μια μεταβλητή πηγή ²¹⁰Pb_{ex}.

Γενίκευση του μοντέλου CF, αποτελεί το μοντέλο περιοδικής ροής (Periodic Flux) PF [Sanchez-Cabeza et al., 2000] που θεωρεί ότι η ροή του ιζήματος στην επιφάνεια μεταβάλλεται περιοδικά με το χρόνο, ακολουθώντας, για παράδειγμα, έναν ετήσιο κύκλο. Σε αυτή την περίπτωση, παρ' όλο που οι εξισώσεις χρονολόγησης είναι οι ίδιες, η ταχύτητα καθίζησης μπορεί να υπολογιστεί από τη σχέση:

$$\mathbf{v}(z) = \frac{\mathbf{A}(z)}{\Delta t \cdot \mathbf{C}(z)} \left(1 - e^{-\lambda t}\right)$$
(2.7)

Η μέθοδος αυτή ενδεχομένως να δώσει λίγο διαφορετικές τιμές όταν ο ρυθμός ιζηματογένεσης παρουσιάζει μεγάλες μεταβολές σε μεγάλες περιόδους.

γ) το μοντέλο σταθερής αρχικής συγκέντρωσης (Constant Initial Concentration) CIC ή CA (Constant Activity) ή CSA (Constant Specific Activity) [Goldberg, 1963; Crozaz et al., 1964; Pennington et al., 1976; Robbins, 1978; Appleby and Oldfield, 1978; Dominik et al., 1981], με βασική παραδοχή ότι όλα τα ιζήματα τη στιγμή της εναπόθεσής τους έχουν μια σταθερή, αρχικά, ενεργότητα ²¹⁰Pb_{ex}. Το μοντέλο αυτό εφαρμόζεται όταν η ενεργότητα του επιφανειακού ιζήματος είναι σταθερή στο χρόνο και ο ρυθμός καθίζησης μεταβαλλόμενος με τον χρόνο. Έτσι, η ενεργότητα C(z) του ²¹⁰Pb_{ex} σε οποιοδήποτε βάθος z συνδέεται με τη ενεργότητα του επιφανειακού ιζήματος C₀ με τη σχέση:

$$C(z) = C_0 \exp(-\lambda t) \Longrightarrow t(z) = \frac{1}{\lambda} \ln \left[C_0 / C(z) \right]$$
(2.8)

Έτσι, θεωρώντας γραμμική σχέση της ταχύτητας καθίζησης (ή ρυθμού συσσώρευσης μάζας) με το χρόνο προκύπτει:

$$\mathbf{v}(\mathbf{z}) = \lambda \frac{\mathbf{z}}{\ln \left[C_0 / C(\mathbf{z}) \right]}$$
(2.9)

Η υπόθεση του μοντέλου CA υπαινίσσεται πως η ροή στην επιφάνεια του ιζήματος και η συσσώρευση μάζας είναι ανάλογα. Αυτή η υπόθεση είναι πολύ περιοριστική και στις περισσότερες περιπτώσεις λανθασμένη. Επιπλέον, η υπόθεση ενός κλειστού συστήματος προϋποθέτει ότι τα χαμηλότερα στρώματα ιζήματος πρέπει να είναι παλαιότερα άρα το προφίλ της συγκέντρωσης του ²¹⁰Pb_{ex} πρέπει να μειώνεται μονότονα, κάτι που συνήθως δεν συμβαίνει καθώς οι περισσότεροι πυρήνες δεν είναι αδιατάρακτοι.

δ) μοντέλα θεωρίας σημάτων (signal theory) εναλλακτικά γνωστά και ως επαγωγικής προσέγγισης, που στηρίζονται στην ιδέα ότι η ανάκτηση κάποιας αρχικής πληροφορίες από τα ιζήματα μπορεί να επιτευχθεί με τη σύγκριση των πειραματικών προφίλ ενεργότητας ²¹⁰Pb_{ex} με ένα πρότυπο προφίλ βασισμένο σε ρεαλιστικές τιμές των σχετικών παραμέτρων. Τα επαγωγικά μοντέλα επιτρέπουν τον υπολογισμό της επίδρασης κάθε σειράς χρονικά μεταβαλλόμενων γεγονότων εισόδου στην ιστορία της ιζηματογένεσης. Έτσι έχουν λιγότερο περιοριστικές υποθέσεις και για το λόγω αυτό έχουν χρησιμοποιηθεί για την επέκταση των παραδοσιακών μοντέλων ραδιοχρονολόγησης.

Το πρώτο επαγωγικό μοντέλο διεργασιών ιζηματογένεσης βασίστηκε στην προσέγγιση της θεωρίας σημάτων [Liu et al., 1995], ενώ παράλληλα αναπτύχθηκαν και επαγωγικά μοντέλα για την ποσοτική πρόβλεψη της ανάμειξης των ιζημάτων [Goreau, 1977; Guinasso and Schink, 1975]. Νεότερο μοντέλο είναι αυτό της ζώνης ημιτελούς ανάμειζης (Incomplete Mixing Zone) IMZ [Abril et al., 1992; Abril, 2005] και της επέκτασής του που συμπεριλαμβάνει και φαινόμενα ατμοσφαιρικής ροής [Abril and Garcia-Leon, 1994], ενώ το επαγωγικό μοντέλο, γνωστό ως ισοτοπική τομογραφία ιζημάτων (Sediment Isotope Tomography) SIT, αναπτύχθηκε για την ανάλυση προφίλ ²¹⁰Pb που προκύπτουν όταν και ο ρυθμός της συσσώρευσης ιζημάτων και οι ροές ²¹⁰Pb μεταβάλλονται με το χρόνο [Carroll και Lerche, 2003]. Βασική υπόθεση όλων των επαγωγικών μοντέλων είναι ότι όλες οι βασικές ποσότητες της σχέσης (2.2) θεωρούνται μεταβλητές [Abril and Gharbi, 2012], γεγονός που τις κάνει ιδιαίτερα ευέλικτες αλλά και επιρρεπή σε μη ρεαλιστικές εκτιμήσεις, σε σχέση με τα εννοιολογικά μοντέλα (α) έως (γ) που παρουσιάστηκαν προηγουμένως.

Μοντέλο	Ενεργότητα ²¹⁰ Pb _{ex} Α (Bq ή Bq/kgr)	Ρυθμός ιζηματογένεσης SAR (cm/y)/MAR (gr/m² y⁻¹)	Poή ²¹⁰ Pb _{ex} F (Bq/m ² y)
CFCS (Constant Flux-Constant Sedimentation) ή CIC-CRS (Constant Initial Concentration - Constant Rate of Supply) ή CF-CRS (Constant Flux - Constant Rate of Supply)	σταθερά	σταθερά	σταθερά
CRS (Constant Rate of Supply) ή CF (Constant Flux) PF (Periodic Flux)	μεταβλητή	μεταβλητή	σταθερά
CIC (Constant Initial Concentration) ή CA (Constant Activity) ή CSA (Constant Specific Activity)	σταθερά	μεταβλητή	μεταβλητή
SIT (Sediment Isotope Tomography) IMZ (Incomplete Mixing Zone)	μεταβλητή	μεταβλητή	μεταβλητή

Πίνακας 2.2. Βασικές υποθέσεις μοντέλων ραδιοχρονολόγησης με $^{210}Pb_{ex}$.

Αν και όλα τα παραπάνω μοντέλα έχουν εφαρμοστεί σε πολλές περιπτώσεις με επιτυχία, η πολυπλοκότητα των περισσοτέρων πραγματικών καταστάσεων (ιδιαίτερα στο θαλάσσιο περιβάλλον) οδηγεί σε περιορισμούς εφαρμογής τους [Kirchner, 2011]. Έτσι είναι προτιμητέο να γίνεται, όπου δυνατόν, συνδυασμός τεχνικών αλλά και άλλων ιχνηθετών, ειδικά όταν η σχέση της ενεργότητας συναρτήσει του βάθους αποκλίνει σημαντικά από την εκθετική [von Gunten et al., 2009]. Δείκτες που έχουν χρησιμοποιηθεί για την επικύρωση των μοντέλων χρονολόγησης είναι:

- τεχνητά ραδιονουκλίδια επιφανειακής εναπόθεσης όπως το 137 Cs, το 239,240 Pu, και το 241 Am που εκλύθηκαν στην ατμόσφαιρα σε συγκεκριμένες χρονικές στιγμές, ενώ σπανιότερα έχουν χρησιμοποιηθεί και τα 14 C, 129 I και 207 Bi.

εκρήξεις ηφαιστείων, που είναι συνήθως καλά χρονικά προσδιορισμένες,
 μπορεί να αφήσουν στρώματα στάχτης που αντιστοιχούν σε μικρές χρονικές
 περιόδους.

 - ακραία φαινόμενα, όπως πλημμύρες, σεισμοί ή τσουνάμι, μπορεί να αφήσουν ευδιάκριτες ιζηματικές αποθέσεις οι οποίες μπορούν να ταυτοποιήσουν απότομες αλλαγές στον ρυθμό ιζηματογένεσης.

 - αλλαγές στον τύπο των σωματιδίων που συσσωρεύονται λόγω αλλαγής στην χρήση γης, ή άλλες σημαντικές γεωμορφολογικές αλλαγές, π.χ. πυρκαγιές.

απότομες αλλαγές σε γνωστές πηγές ρύπανσης, όπως το άνοιγμα ή το κλείσιμο μιας μεγάλης βιομηχανίας, που αποτυπώνονται σε αλλαγή της ποσότητας των ισοτόπων του Pb ή άλλων ιχνοστοιχείων.

- μεταβολή στην ποσότητα και το είδος των κόκκων γύρης που μπορεί να σχετίζεται με αλλαγές στη χρήση του εδάφους στις περιοχές της λεκάνης απορροής

2.2.2 Ραδιοχρονολόγηση με ¹³⁷Cs

Η εκτεταμένη διασπορά του ¹³⁷Cs στο περιβάλλον άρχισε με τις ατμοσφαιρικές δοκιμές των πυρηνικών όπλων υψηλής απόδοσης στη δεκαετία του 1950 και στις αρχές του 1960. Το παγκόσμιο νέφος ¹³⁷Cs έφτασε στο αποκορύφωμά του περίπου το 1963 στο βόρειο και το 1965 στο νότιο ημισφαίριο, ενώ οι ατμοσφαιρικές εκλύσεις από πυρηνικές δοκιμές μετά το 1963 είχαν συγκριτικά πολύ μικρή επίδραση στη μεταβολή της ατμοσφαιρικής συγκέντρωσης του ¹³⁷Cs. Το ατύχημα του Chernobyl τον Απρίλιο του 1986 είχε ως αποτέλεσμα μια πρόσθετη ατμοσφαιρική απόθεση ¹³⁷Cs σε ορισμένες περιοχές της Ευρώπης. Οι συγκεντρώσεις του ¹³⁷Cs στο έδαφος παρακολουθούνται από τις αρχές της δεκαετίας του 1950, δίνοντας έτσι την δυνατότητα αρχικά μιας εκτίμησης της συνολικής διασποράς του ¹³⁷Cs [Garcia Agudo, 1998] στην ατμόσφαιρα και αργότερα, με βάση τα πειραματικά δεδομένα, την ανάπτυξη μοντέλου προσδιορισμού της εναπόθεσης ¹³⁷Cs σε παγκόσμιο επίπεδο [Walling and He, 2000]. H ποσότητα 137 Cs που κατέπεσε στο βόρειο ημισφαίριο ήταν κατά πολύ μεγαλύτερη από ότι στο νότιο, καθώς περισσότερες πυρηνικές δοκιμές διεξήχθησαν στο βόρειο ημισφαίριο (Σχήμα 2.3). Τοπικές εκδηλώσεις, όπως το ατύχημα του Chernobyl, είχαν σοβαρές επιπτώσεις σε ορισμένες μόνο περιοχές, αλλά περιορισμένης σημασίας για την κατανομή και την ποσότητα του 137 Cs σε παγκόσμιο επίπεδο [ΙΑΕΑ, 1991].

Δεδομένης της καλής γνώσης του χρόνου και της ποσότητας του ¹³⁷Cs που εναποτέθηκε σε παγκόσμιο επίπεδο, το ¹³⁷Cs χρησιμοποιείται ως ραδιοϊχνηθέτης του ρυθμού καθίζησης-διάβρωσης στο έδαφος και ιζηματογένεσης. Επί του παρόντος, είναι μακράν ο πιο ευρέως χρησιμοποιούμενος ιχνηθέτης στην έρευνα

ραδιοχρονολόγησης, κυρίως λόγω της ταχείας και ισχυρής προσρόφησής του από τα λεπτόκκοκα σωματίδια του εδάφους – ιδίως από αργιλικά ορυκτά και χουμικά υλικά [Tamura, 1964; Bachhuber et al., 1982], το μεσοπρόθεσμο χρόνο ημιζωής του (T_{1/2}=30.2 y), την ευκολία της μέτρησης με φασματοσκοπία-γ (στα 662 keV) και το σαφώς καθορισμένο πρότυπο εισόδου του στο περιβάλλον (πυρηνικές δομικές και ατύχημα Chernobyl).



Σχήμα 2.3. Πυκνότητα εναπόθεσης ¹³⁷Cs στο βόρειο και νότιο ημισφαίριο όπως υπολογίστηκε για την ποσότητα προϊόντων σχάσης με ατμοσφαιρικό μοντέλο [UNSCEAR, 2000].

Ο προσδιορισμός οποιουδήποτε ρυθμού γεωλογικής μεταβολής απαιτεί τη δειγματοληψία πυρήνων ιζήματος ή εδάφους και μέτρηση της ενεργότητας του ¹³⁷Cs συναρτήσει του βάθους του πυρήνα. Μετρήσεις ¹³⁷Cs έχουν χρησιμοποιηθεί για την εκτίμηση πρόσφατων (δηλ. μετά το 1950) ρυθμών ιζηματογένεσης σε θαλάσσιες περιοχές, λίμνες, δεξαμενές υδάτων, ποτάμια, εκβολές ποταμών και παραποτάμιες περιοχές [π.χ. Kirchner, 1998; Radakovitch et al., 1999; Walling and He, 1999; Sanchez-Cabeza, 1999; Cundy. and Iain, 2004; Semizhon et al., 2010]. Οι βασικές παραδοχές και απαιτήσεις της τεχνικής του ¹³⁷Cs διαφέρουν ανάλογα με τον τόπο και τη γεωλογική παράμετρο (καθίζηση, διάβρωση, μετακίνηση εδάφους, ιζηματογένεση) που εξετάζεται, ενώ σε οποιαδήποτε από αυτές τις εφαρμογές υπάρχουν, επίσης, περιορισμοί και αβεβαιότητες που πρέπει να ληφθούν υπόψη [Ritchie and McHenry, 1990; Walling, 1998; Zapata, 2002].

Το ¹³⁷Cs όπως και τα υπόλοιπα ιχνοστοιχεία που καταλήγουν στο θαλάσσιο περιβάλλον συγκρατούνται από τα ιζήματα λόγω της δέσμευσής τους στα αιωρούμενα σωματίδια, της καθίζησής τους σε κολλοειδή μορφή, την άμεση δέσμευσή τους από απορρόφηση, της απόθεσης οργανικών αποβλήτων που τα έχουν συγκρατήσει και άλλες διαδικασίες, που έχουν ήδη αναφερθεί (Κεφάλαιο 1.2), ενώ η συγκέντρωσή του στο ίζημα εξαρτάται από την απόσταση των δειγμάτων από την ακτή, το βάθος της υδάτινης στήλης, το κοκκομετρικό μέγεθος, τη μαγνητική επιδεκτικότητα, τη σύσταση, το οργανικό υλικό, το pH, το δυναμικό οξειδοαναγωγής και τη χημική συμπεριφορά του στοιχείου Cs. Ειδικότερα έχει διαπιστωθεί ότι η συγκέντρωση του ¹³⁷Cs αυξάνεται με τη μείωση του κοκκομετρικού μεγέθους και ιδιαίτερα σε λεπτόκοκκα ιζημάτων <2μm και υλικά με μεγαλύτερη πυκνότητα. Παρ' όλα αυτά η δέσμευσή του από τα ιζήματα επηρεάζεται και από την ύπαρξη άλλων συστατικών όπως ανθρακικού ασβεστίου, που παρουσιάζει μικρή έλξη για το ¹³⁷Cs. Επιπλέον, κάποια αργιλικά ορυκτά δείχνουν μεγάλη απορροφητικότητα στο Cs, πρωτίστως σε αυτά με μεγάλη περιεκτικότητα σε ιλλίτη, στον οποίο δεσμεύεται μη αντιστρεπτά. Το ¹³⁷Cs κατακρατείται επίσης έντονα από οργανικά υλικά [Heldal et al. 2002].

Το πρότυπο εισόδου του ¹³⁷Cs αλλά και άλλων τεχνητών ραδιονουκλιδίων (⁹⁰Sr, ^{139,249}Pu, κ.ά) στο περιβάλλον αντανακλάται στα προφύλ των θαλάσσιων ιζημάτων. Σε πυρήνες ιζήματος, μπορούν να γίνουν εμφανείς τρείς χαρακτηριστικές κορυφές μεγίστων της συγκέντρωσης που αντιστοιχούν: (α) στο 1954, η πρώτη εμφάνιση στο ίζημα αμέσως μετά τις πρώτες εκρήξεις θερμοπυρηνικών όπλων, (β) στο 1963, η κορυφή που αντιστοιχεί στις μέγιστες συγκεντρώσεις στον αέρα που προκύπτει από το πυρηνικό νέφος σε παγκόσμιο επίπεδο, και (γ) στο 1986, η πιο πρόσφατη κορυφή που αντιστοιχεί σε μόλυνση από το ατύχημα στο Chernobyl [Cundy and Croudace, 1995]. $\Sigma \nu \nu \eta \theta \omega \zeta$, $\eta \sigma \nu \gamma \kappa \epsilon \nu \tau \rho \omega \sigma \eta^{137}$ Cs $\sigma \tau \alpha \alpha \nu \omega \tau \epsilon \rho \alpha \sigma \tau \rho \omega \mu \alpha \tau \alpha$ του προφίλ (π.χ. 5 cm) αντανακλά την επίδραση των διεργασιών βιοανάδευσης σε συνδυασμό με την πιθανή εισρροή νέου ¹³⁷Cs από απορροές έκπλυσης του ηπειρωτικού εδάφους ή σύγχρονων τοπικών εκλύσεων (πυρηνικών αντιδραστήρων ή εργοστασίων επαναχρησιμοποίησης ραδιενεργών καυσίμων), ενώ σε άλλες περιπτώσεις, οι συγκεντρώσεις ¹³⁷Cs είναι ελαφρώς μειωμένες προς την επιφάνεια λόγω της εισαγωγής οργανικής ύλης, μετά την παύση της ραδιενεργού επιφανειακής εναπόθεσης των πυρηνικών δοκιμών και του Chernobyl [Walling and He, 1997]. Πιθανή συνεισφορά στο επιφανειακό στρώμα του ιζήματος από το πυρηνικό ατύγημα στη Fukushima δεν σημεριλήφθηκαν στην ανάλυση της παρούσας εργασίας, καθώς όλες οι μετρήσεις πραγματοποιήθηκαν πριν από το ατύχημα.

Η εμφάνιση των κορυφών του ¹³⁷Cs σε κάθε πυρήνα επιτρέπει την εκτίμηση του μέσου ρυθμού συσσώρευσης ιζήματος στον πυθμένα, υποθέτοντας γραμμική εξάρτηση μεταξύ των κορυφών κατά μήκος του βάθους. Οι μέσοι ρυθμοί ιζηματογένεσης (v_i) μετά το 1954, μετά το 1963 και μετά το 1986 υπολογίζονται, αντιστοίχως [Ruiz-Fernandez et al., 2009]:

$$v_{i} = \frac{z_{i}}{t_{0} - t_{i}}$$
(2.10)

όπου t₀ είναι το έτος συλλογής του πυρήνα ίζημα, t_i και z_i τα βάθη και η χρονολογία των κορυφών του ¹³⁷Cs λόγω της πρώτης εμφάνισης (t₁=1954), των πυρηνικών δοκιμών (t₂=1963) και του ατυχήματος του Chernobyl (t₃=1963), αντίστοιχα, ενώ ο μέσος ρυθμός καθίζησης του πυρήνα δίνεται ως ο μέσος όρος των επιμέρους ρυθμών:

$$\overline{v} = \frac{\sum_{i}^{n} v_{i}}{n}$$
(2.11)

Πρέπει να σημειωθεί ότι, σε ορισμένες μόνο περιπτώσεις είναι δυνατό να ανιχνευθεί η κορυφή που αντιστοιχεί στην πρώτη εμφάνιση του 137 Cs το 1954, με περιορισμένη όμως αξιοπιστία, γεγονός που οφείλεται στη χαμηλή στατιστική και τη διεύρυνση, λόγω διασποράς του 137 Cs στο ίζημα, της κορυφής.

Πέρα από την παραπάνω απλουστευτική τεχνική, πιο αναλυτικές μέθοδοι έχουν αναπτυχθεί τα τελευταία χρόνια βασισμένες στην προσαρμογή στα πειραματικά δεδομένα των εξισώσεων διασποράς-διάχυσης του ¹³⁷Cs στο ίζημα [Linkar et al., 2001; Bossew and Kirchner, 2004; Libero et. al, 2005; Φίλης-Τσιράκης, 2009]. Σε κάθε περίπτωση, όλες οι τεχνικές ραδιοχρονολόγησης ιζημάτων με ¹³⁷Cs παρουσιάζουν πλεονεκτήματα και μειονεκτήματα [IAEA, 1998; Zapata, 2002;]. Στα βασικά πλεονεκτήματα περιλαμβάνονται:

- οι εκτιμήσεις βασίζονται σε σύγχρονες δειγματοληψίες και παρέχουν μια αναδρομική αξιολόγηση των μεσοπρόθεσμων (έως 60 έτη) ρυθμών ιζηματογένεσης.

- τα δεδομένα μπορούν να ληφθούν με βάση μια μόνο ερευνητική αποστολή.

- στα αποτελέσματα της εκτίμησης των ρυθμών καθίζησης ενσωματώνεται, μεσοπρόθεσμα, ο μέσος όρος των δεδομένων και επηρεάζονται λιγότερο από τα ακραία καιρικά φαινόμενα.

ο εκτιμήσεις αναφέρονται σε επιμέρους σημεία του πυθμένα της θάλασσας.
 Πληροφορίες σχετικά με τις τιμές και τα χωρικά πρότυπα μπορούν κατόπιν να συναρμολογηθούν.

- οι δειγματοληψίες δεν απαιτούν σημαντική διατάραξη της περιοχής μελέτης.

- το προφίλ των συγκεντρώσεων του ¹³⁷Cs αντανακλά την αναδιανομή του ιζήματος που είναι η ολοκλήρωση όλων των διαδικασιών στο σημείο μελέτης ως αποτέλεσμα της κίνησης των σωματιδίων του πυθμένα κάτω από καθορισμένες φυσικές και ανθρωπογενείς διεργασίες.

- δεν υπάρχουν σημαντικά εμπόδια στη μελέτη εκτεταμένων περιοχών, εκτός από τον αριθμό των δειγμάτων που πρόκειται να αναλυθούν.

- εφαρμογή στην ταυτοποίηση πηγών αιωρούμενων ιζημάτων και την εκτίμηση στις κοίτες ποταμών του ρυθμού προσαύξησης της έκπλυσης των λεκανών απορροής.

Ακολούθως στους περιορισμούς της τεχνικής περιλαμβάνονται:

 - η επιτυχής εφαρμογή της τεχνικής απαιτεί διεπιστημονική ομάδα, οπότε είναι δύσκολο να ανταποκριθούν αναπτυσσόμενες χώρες με περιορισμένο επιστημονικό προσωπικό.

 είναι απαραίτητα εξειδικευμένα εργαστήρια για την προετοιμασία των δείγματος και δαπανηρός εξοπλισμός φασματοσκοπίας-γ. υψηλές απαιτήσεις για τη διασφάλιση της ποιότητας και τον έλεγχο των μετρήσεων φασματοσκοπίας-γ δειγμάτων χαμηλής ενεργότητας.

- είναι μια έμμεση προσέγγιση, η οποία εξαρτάται από τη σχέση μεταξύ της συσσώρευσης ιζήματος και της παρατηρούμενης συσσώρευσης 137 Cs.

- υπάρχουν αβεβαιότητες που σχετίζονται με την επιλογή του κατάλληλου μοντέλου για τον υπολογισμό του ρυθμού ιζηματογένεσης από τις μετρήσεις 137 Cs.

2.3 Μοντέλα διασποράς ραδιονουκλιδίων

Τα μαθηματικά μοντέλα είναι γενικά εργαλεία που συνθέτουν τις παρατηρήσεις και τα πειραματικά δεδομένα, επιτρέπουν προβλέψεις της συμπεριφοράς και συνεισφέρουν στις διαδικασίες λήψης αποφάσεων στον τομέα της εφαρμογής τους. Ως εκ τούτου, είναι απλουστεύσεις μιας σύνθετης πραγματικότητας περιέχοντας εγγενώς ανακρίβειες, με πολλές πηγές αβεβαιότητας. Μαθηματικά μοντέλα έχουν αναπτυχθεί για να προσεγγίσουν ή να αναπαράγουν συστήματα και διαδικασίες που είναι διαφορετικής φύσης (φυσική, περιβαλλοντική, κοινωνική, οικονομική κ.ά.) και διαφορετικής πολυπλοκότητας. Πολλές από αυτές τις διαδικασίες είναι τόσο περίπλοκες, δυσπρόσιτες τεχνικά και πρακτικά, ώστε η πειραματική προσέγγισή τους να είναι πολύ χρονοβόρα, ακριβή ή απλά αδύνατη. Ως αποτέλεσμα, τα μοντέλα είναι απαραίτητο ερευνητικό εργαλείο για να προσομοιωθούν και να μελετηθούν αυτές οι διαδικασίες.

Κατά την ανάπτυξη των μαθηματικών μοντέλων, πραγματοποιείται μια απλουστευτική και συνεπώς, ελλειπής περιγραφή των φυσικών και βιολογικών συστημάτων. Τα μοντέλα ενσωματώνουν παράγοντες και παραμέτρους που χαρακτηρίζουν τις διαδικασίες που ερευνώνται και πρακτικά αποτελούνται από σειρά αλληλοσυνδεόμενων (διαφορικών συνήθως) εξισώσεων. Έτσι, η αποτελεσματικότητα των μοντέλων εξαρτάται από την επιλογή των χαρακτηριστικών και των διαδικασιών που πρέπει να παραμετροποιηθούν, την μορφοποίηση των απαραίτητων εξισώσεων και την σύνθεσή τους, μερικές φορές αντικρουόμενων, στοιχείων του συστήματος. Αυτό ουσιαστικά σημαίνει ότι δεν υπάρχει μονοσήμαντος τρόπος μοντελοποίησης ενός συστήματος, καθώς αρκετά διαφορετικά μοντέλα μπορούν να δώσουν εξίσου αποδεκτές εκτιμήσεις. Για τον ίδιο λόγω, φαινομενικά μικρές αλλαγές μπορούν να παράγουν μεγάλες διαφοροποιήσεις στα αποτελέσματα. Τα εγγενή αυτά γαρακτηριστικά της μοντελοποίησης θέτουν και τα όρια στην εμπιστοσύνη αλλά και στην χρήση των μοντέλων. Σε κάθε περίπτωση, κατά την σχεδίαση θα πρέπει να συνεκτιμούνται οι εγγενείς αβεβαιότητες που συνδέονται με τις φυσικές διαδικασίες, την μεταβλητότητά τους και οι ανακρίβειες των πειραματικών μετρήσεων ώστε να ενσωματώνονται με ξεκάθαρο τρόπο στα μοντέλα.

Σε αυτή τη λογική, μαθηματικά μοντέλα έχουν αναπτυχθεί και για τη ραδιενέργεια στο περιβάλλον, προσομοιώνοντας τη συμπεριφορά των ραδιονουκλιδίων μέσα σε, κατά κανόνα πολύπλοκα, περιβαλλοντικά συστήματα. Περιλαμβάνουν την ποιοτική και την ποσοτική περιγραφή των φυσικοχημικών διαδικασιών και χρησιμοποιούνται για να ελέγξουν υποθέσεις που αφορούν την περιβαλλοντική συμπεριφορά των ραδιονουκλιδίων και να αξιολογήσουν με ποσοτικό και αντικειμενικό τρόπο τις εκτιμούμενες επιπτώσεις που επιφέρουν ανθρωπογενείς (πραγματικές ή υποθετικές) ενέργειες. Μπορούν επίσης να συνεισφέρουν στις ραδιολογικές-ραδιοοικολογικές αξιολογήσεις παρέχοντας προβλέψεις των συγκεντρώσεων ραδιονουκλιδίων στην τροφική αλυσίδα και εκτιμήσεις της δόσης και της βιολογικής βλάβης στους οργανισμούς, ενώ μπορούν να χρησιμοποιηθούν και ως εργαλεία για την αξιολόγησή της αποτελεσματικότητας μέτρων που εφαρμόζονται για τη μείωση των επιπτώσεων από τυχαίες ή προγραμματισμένες εκλύσεις ραδιονουκλιδίων.

Σε όλα τα ραδιολογικά μοντέλα, τα δεδομένα που χρησιμοποιούνται για την περιγραφή της διασποράς των ραδιονουκλιδίων στο περιβάλλον παίζουν θεμελιώδη ρόλο. Στην ιδανική περίπτωση, τα δεδομένα αυτά πρέπει να λαμβάνονται από πειραματικές μετρήσεις στο εκάστοτε περιβάλλον που μοντελοποιείται. Ωστόσο, αυτό είναι συχνά ανέφικτο ή υπερβολικά δαπανηρό, και ως εκ τούτου υπάρχει μεγάλη εξάρτηση από βιβλιογραφικά δεδομένα ή εκτιμήσεις. Παρ' όλα αυτά, τέτοια σύνολα δεδομένων, κατόπιν αξιολόγησης, συνήθως επαρκούν για την μελέτη τυχαίων εκλύσεων και της επίπτωσης εκλύσεων στο μακρινό μέλλον. Σε κάθε περίπτωση, τα πειραματικά δεδομένα έχουν διπλή αξία καθώς η αξιοπιστία των προβλέψεων εξαρτάται από την ποιότητα τους αλλά και ελέγχεται ως προς αυτά. Βέβαια ο έλεγχος με πειραματικά δεδομένα, αν είναι εφικτός, σε πολλές περιπτώσεις είναι πολύ περιορισμένος ή ανεπαρκής.

Ένας επιπλέον τρόπος αξιολόγησης είναι η σύγκριση με προβλέψεις και άλλων μοντέλων. Στο πλαίσιο αυτό, στη διάρκεια των τελευταίων δεκαετιών πραγματοποιήθηκε μεγάλη προσπάθεια για την ανάπτυξη και επικύρωση περιβαλλοντικών προτύπων, αλλά και την ταξινόμηση των διαφόρων προσεγγίσεων 1984]. Συγκεκριμένα, η εκτίμηση [Jørgensen, 1983: των προβλέψεων ραδιοοικολογικών μοντέλων ήταν και εξακολουθεί να είναι ένας σημαντικός στόχος πολλών διεθνών προγραμμάτων [BIOMOVS, 1990; BIOMOVS II, 1996; Scott et al., 1998; Peterson and Kirchner, 1998; Davis et al., 1999; VAMP, 2000; IAEA, 2000; BIOMASS, 2003; EMRAS, 2012; MODARIA, 2014]. Τέτοια προγράμματα έχουν επωφεληθεί σε σημαντικό βαθμό από την πληθώρα των πειραματικών δεδομένων που συγκεντρώθηκαν μετά την τυχαία εισαγωγή ανθρωπογενών ραδιονουκλιδίων στο περιβάλλον σε μεγάλη κλίμακα (π.χ. από το ατύχημα του Chernobyl) με τη δοκιμή μοντέλων για την εκτίμηση των επιπέδων ενεργότητας ραδιονουκλιδίων σε διαφορετικά κομμάτια του οικοσυστήματος και την ανθρώπινη τροφική αλυσίδα. Η έκταση και η διάρκεια αυτής της προσπάθειας καταδεικνύει την αξία και το αυξανόμενο ενδιαφέρον αυτής της προσέγγισης από την επιστημονική κοινότητα.

Στη συνέχεια, εξετάζεται η εφαρμογή τέτοιων ραδιολογικών μοντέλων στο υδάτινο περιβάλλων με αναφορά στις υλοποιήσεις που έχουν γίνει μέχρι τώρα, ενώ περιγράφεται αναλυτικά και ο κώδικας μοντελοποίησης MOIRA PLUS, που και χρησιμοποιήθηκε στην παρούσα εργασία.

2.3.1 Πρότυπα διασποράς στο υδάτινο περιβάλλον

Τα μαθηματικά μοντέλα χρησιμοποιούνται ολοένα και περισσότερο για την διαχείριση και μελέτη του υδάτινου περιβάλλοντος με σκοπό την παροχή εκτιμήσεων, ως εργαλείο αξιολόγησης, ή απλά ως βοήθεια για την εκτίμηση της περιβαλλοντικής κατάστασης των συγκεκριμένων περιοχών μελέτης. Συχνά, τα μοντέλα είναι τα μόνα μέσα για να προβλέψουν τις συνέπειες της τυχαίας απελευθεύροςης ραδιονουκλιδίων όπως μεγάλης κλίμακας εκλύσεις, π.χ. στους ωκεανούς, και την υποστήριξη λήψης αποφάσεων σχετικά με διορθωτικά μέτρα. Σενάρια διασποράς μπορεί επίσης να βοηθήσουν στην παρακολούθηση περιοχών που πλήττονται συστηματικά από μονάδες επανεπεξεργασίας ή άλλες πυρηνικές εγκαταστάσεις. Αλλά δεν είναι μόνο περιβαλλοντική διαχείριση ή, πιο συγκεκριμένα, η ραδιοοικολογία που επωφελείται από αριθμητικές μελέτες διασποράς. Ωκεανογραφικά και υδρολογικά μοντέλα μπορούν να επωφεληθούν έμμεσα, καθώς η ανθρωπογενής ραδιενέργεια μπορεί να αποτελέσει πολύτιμο ιχνηθέτη που επιτρέπει την λεπτομερή επικύρωση της προσομοιωμένης κυκλοφορία και τα σενάρια διασποράς.

Τα αριθμητικά μοντέλα αποτελούνται από μαθηματικές εξισώσεις που επιλύονται σε διακριτά χρονικά βήματα σε ένα κανονικό ή ακανόνιστο πλέγμα που καλύπτει τον τομέα του μοντέλου, που είναι η περιοχή ενδιαφέροντος. Έτσι πρωταρχικό βήμα για την κατασκευή ενός υδρολογικού ή οποιουδήποτε περιβαλλοντικού μοντέλου είναι η επιλογή της ακριβούς περιοχής μελέτης, ο ορισμός του πλέγματος του μοντέλου και ο προσδιορισμός του μεγέθους του πλέγματος. Η χωρική έκταση λοιπόν, είναι η πιο προφανής διαφορά μεταξύ των διαφόρων υδροδυναμικών μοντέλων διασποράς της ραδιενέργειας και μπορούν να χωριστούν σε τρεις ομάδες με βάση την επιφανειακή τους κάλυψη [Harms et al., 2003]:

 εφαρμογές τοπικής κλίμακας που ασχολούνται με λίμνες, ποτάμια, εκβολές ποταμών, φιόρδ, όρμους ή στενά, με τυπικό μέγεθος του τομέα μοντέλου 1-100 km, και τυπικό μέγεθος πλέγματος 0.01-5 km.

εφαρμογές περιφερειακής κλίμακας, που ασχολούνται με τους ηπειρωτικούς
 τομείς όπως σύμπλεγμα ποταμών ή ημίκλειστες θάλασσες, όπως η Βόρεια και η
 Μαύρη Θάλασσα, με τυπικό μέγεθος τομέα 100-1000 km και πλέγματος 5-50 km.

- παγκόσμιας κλίμακας ή κλίμακα λεκάνης απορροής, εφαρμογές που ασχολούνται με τις μεγάλες ωκεάνιες λεκάνες ή ολόκληρους ωκεανούς, όπως τον Αρκτικό και τον Ειρηνικό Ωκεανό ή παγκόσμια μοντέλα ωκεανού, με μέγεθος από 1.000 km έως παγκόσμια κλίμακα και τυπικό μέγεθος πλέγματος 10-500 km.

Η μελέτη της διασποράς ραδιενέργειας στα υδάτινα συστήματα περιλαμβάνει δύο τύπους υδροδυναμικών μοντέλων: (α) μοντέλα υδροδυναμικής κυκλοφορίας (hydrodynamic circulation) HD και (β) μοντέλα μεταφοράς (transport). Το μοντέλο HD υπολογίζει το πεδίο τρισδιάστατης ροής του νερού ενώ το μοντέλο μεταφοράς υπολογίζει τη διασπορά ενός ιχνηθέτη σύμφωνα με την ροή που έχει ήδη υπολογιστεί. Και τα δύο μοντέλα μπορούν να συνδεθούν με τέτοιο τρόπο ώστε είτε να λειτουργούν συγχρονισμένα σε κοινό χρονικό βήμα επανάληψης (on-line), είτε να υλοποιούνται ξεχωριστά, με τα μοντέλα των μεταφορών να εφαρμόζονται συχνά χρησιμοποιώντας χρονοσειρές του πεδίου ροής που έχει υπολογιστεί προηγουμένως από υδροδυναμικό μοντέλο (off-line).



Σχήμα 2.4. Παράδειγμα υλοποίησης μοντέλου περιφερειακής κλίμακας οριζόντιου πλέγματος ισαπέχωντων πεπερασμένων διαφορών (9.4 km), της Θάλασσας του Κάρα [Harms and Karcher, 1999].

Τα HD μοντέλα είναι ένα σύνολο από λεπτομερείς εξισώσεις της δυναμικής κίνησης του νερού, της αλληλεπίδρασης με την ατμόσφαιρα και της ροής των ιζημάτων, καθώς και της θερμοκρασίας και αλατότητας. Αυτό το σύστημα εξισώσεων για τις συνιστώσες της ταχύτητας, του δυναμικού της θερμοκρασίας, της αλατότητας και της πυκνότητας του νερού που είναι και οι μεταβλητές, αποτελούν ένα μαθηματικά κλειστό πρόβλημα και επομένως σαφώς καθορισμένες, και επιλύεται με εξισώσεις τύπου Navier-Stokes και ιξώδους [Haidvogel and Beckmann, 1999]. Η επίλυσή τους με ψηφιακό υπολογιστικό τρόπο απαιτεί παραμετροποίηση στο χώρο και το χρόνο. Οι παραμετροποίηση στο χρόνο, στην οριζόντια και την κάθετη κατεύθυνση μπορούν ουσιαστικά να διεξαχθούν ανεξάρτητα. Αυτό δίνει ένα μεγάλο αριθμό βαθμών ελευθερίας για την παραμετροποίηση των φυσικών εξισώσεων, γεγονός που εξηγεί και τον μεγάλο αριθμό των υφιστάμενων αριθμητικών μοντέλων υδρολογικής κυκλοφορίας. Γα παράδειγμα, τρία τυπικά μοντέλα ωκεάνιας κυκλοφορίας που διαφέρουν, κυρίως, ως προς την κατακόρυφη διακριτοποίησή τους είναι το Modular Ocean Model από το Geophysical Fluid Mechanics Laboratory του Princeton [MOM, 2014], το Princeton Ocean Model που υλοποιήθηκε στα πλαίσια του Program in Atmospheric and Ocean Sciences από της αρχές του 1970 [POM, 2014] και το Miami Isopycnal Ocean Model που αναπτύχθηκε κατά την τελευταία 15ετία από το Rosenstiel School of Marine and Atmospheric Science της Florida [MICOM, 2014]. Η στρατηγική διακριτοποίησης δεν είναι μόνο ένα τεχνικό ζήτημα, δεδομένου ότι η βέλτιστη διακριτοποίηση εξαρτάται σε μεγάλο βαθμό από τις φυσικές διαδικασίες και την υπό έρευνα κλίμακα. Ω_{ζ} εκ τούτου, η βασική τάση είναι να κατασκευάζονται αριθμητικά μοντέλα τόσο γενικά όσο αυτό είναι τεχνικά εφικτό. Στα HD μοντέλα, η αριθμητική διακριτοποίηση πραγματοποιείται συνήθως με τη μορφή πεπερασμένων διαφορών (δομημένα δίκτυα) ή πεπερασμένων στοιχείων (μη δομημένα πλέγματα).



Σχήμα 2.5. Παράδειγμα πλέγματος αδόμητων πεπερασμένων στοιχείων μοντέλου τοπικής κλίμακας για τη λιμνοθάλασσα της Βενετίας, στην Ιταλία. (Στα κανάλια το πλέγμα είναι πολύ μεγαλύτερης διακριτοποίησης απ'ότι στις ευρύτερες αβαθείς περιοχές) [Umgiesser et al., 2004]

Τα μαθηματικά μοντέλα μεταφοράς, όπως και τα HD μοντέλα, λειτουργούν με βήματα χρονικής εξέλιξης, σε ένα καθορισμένο δίκτυο μιας προεπιλεγμένης περιοχής μελέτης. Μέσα σε κάθε υποπεριοχή και για κάθε χρονικό βήμα, επιλύεται μια εξίσωση μεταφοράς που υπολογίζει την οριζόντια μεταφορά και τη διάχυση του ιχνηθέτη. Ο όρος της μεταφοράς καθορίζεται από την κυκλοφορία των υδάτων και η συγκέντρωση του ιχνηθέτη στο νερό είναι χρονοεξαρτημένη διαφορικής μορφής. Και εδώ, πραγματοποιείται διακριτοποίηση της εξίσωσης για την επίλυσή της. Υπάρχουν δύο βασικές προσεγγίσεις διακριτοποίησης: (α) η Eulerian προσέγγιση που υπολογίζει μέσω της εξίσωσης μεταφοράς-διάχυσης την ανταλλαγή συγκεντρώσεων των ραδιονουκλιδίων μεταξύ γειτονικών τομέων του πλέγματος στο χρόνο και στο χώρο και (β) η Lagrangian προσέγγιση που εφαρμόζει μέθοδο παρακολούθησης ενός στοιχειώδους σωματιδίου (ραδιονουκλιδίου) στην πορεία του στο χώρο και το χρόνο. Η Eulerian προσέγγιση, που είναι και η πιο κοινή στην μοντελοποίηση της διασποράς, βασίζεται στη παραδοχή ότι τα ραδιονουκλίδια παρασύρονται σε διαλυτή μορφή στη στήλη του νερού. Η προσέγγιση απαιτεί την διακριτοποίηση της εξίσωσης μεταφοράς-διάχησης στο χώρο και το χρόνο, όπως και στην περίπτωση των HD μοντέλων. Αυτή η συντηρητική προσέγγιση του όρου της μεταφοράς μπορεί να οδηγήσει σε προβλήματα που αφορούν τη διατήρηση της μάζας, της αριθμητικής (τεχνητής) διάχυσης, υπερεκτιμήσεις ή ευρύτερη σταθερότητα των λύσεων [Griffies et al., 2000]. Η αριθμητική επίλυση της μεταφοράς, σε συνδυασμό με το υπολογισμένο πεδίο ροής, καθορίζει την ποιότητα της εκτιμούμενης διασποράς.

Lagrangian μέθοδο, η εξίσωση μεταφοράς για ένα μοντέλο Στη παρακολούθησης σωματιδίων είναι η ίδια με πριν, ωστόσο η συγκέντρωση των ραδιονουκλιδίων αντιπροσωπεύεται από ένα στατιστικά σημαντικό αριθμό στοιχειωδών σωματιδίων και η μεταφορά επιτυγχάνεται με τη μετακίνηση κάθε σωματιδίου από μια αρχική θέση σε μια νέα [Maier -Reimer and Sündermann, 1982]. Όταν δεν λαμβάνεται υπόψη η διάχυση, ένα σωματίδιο διαδίδεται κατά μήκος μιας τροχιάς η οποία καθορίζεται από την ταχύτητα και το χρονικό βήμα. Η τρισδιάστατη διάχυση παραμετροποιείται συνήθως από μια Monte Carlo μέθοδο που εισάγει μια ορισμένη, εντός ενός εύρους, τυχαία κίνηση των σωματιδίων μακριά από την αρχική τροχιά. Πλεονέκτημα αυτής της μεθόδου είναι η απουσία αριθμητικής διάχυσης του ιχνηθέτη. Εάν η διάχυση δεν συμπεριλαμβάνεται με κάποιο τρόπο στους υπολογισμούς και το πεδίο ροής είναι στάσιμο, όλα τα σωματίδια με τις ίδιες αρχικές συνθήκες στο χώρο και στο χρόνο θα ακολουθήσει την ίδια πορεία που καθορίζεται μόνο από την οριζόντια μεταφορά. Έτσι, η διάχυση είναι εντελώς φυσική και μπορεί να ελεγχθεί ποσοτικά.

Η επιλογή κάποιας από τις δύο μεθόδους σχετίζεται επίσης και με την υπολογιστική ταχύτητα. Χρησιμοποιώντας την Eulerian προσέγγιση, η εξίσωση μεταφοράς-διάχυσης υπολογίζεται σε κάθε υποπεριοχή, άρα εξαρτάται από τον αριθμό των σημείων του πλέγματος. Μοντέλα που βασίζονται στην Lagrangian προσέγγιση υπολογίζουν τη μεταφορά του κάθε σωματιδίου στο σύνολο της περιοχής μελέτης, αποκλείοντας περιοχές όπου δεν εμφανίζεται ο ιχνηθέτης, με αποτέλεσμα ο υπολογιστικός χρόνος να εξαρτάται μόνο από τον αριθμό των σωματιδίων που προσομοιώνονται.

Εναλλακτικά από τον συνδυασμό υδροδυναμικών μοντέλων σε συνδυασμό με μοντέλα μεταφοράς, μια κοινή προσέγγιση σε ραδιολογικά πρότυπα προσομοίωσης είναι η εφαρμογή των επονομαζόμενων μοντέλων κουτιών (box models). Πρόκειται για μοντέλα παραμετροποίησης δύο ή τριών διαστάσεων με πολύ πιο μεγάλο οριζόντιο πλέγμα υποπεριοχών σε σχέση με αυτά που τυπικά χρησιμοποιούνται στα υδροδυναμικά μοντέλα. Το μέγεθος και το σχήμα των υποπεριοχών δεν είναι κατ' ανάγκη τακτικό και πεπερασμένων διαφορών όπως στα HD μοντέλα. Αντ' αυτού, οι θέσεις επιλέγονται σύμφωνα με γεωγραφικά ή υδρογραφικά χαρακτηριστικά (π.χ. χαρακτηριστικά ροής, ιδιότητες νερού), με πολιτικούς ή οικονομικούς περιορισμούς (π.χ. εδάφη κρατών, περιοχές αλιείας). Η δομή των μοντέλων κουτιών είναι απλή με την έννοια ότι αποκλείουν την υδροδυναμική ανάλυση του συστήματος. Το νερό θεωρείται ότι αναμειγνύεται ακαριαία σε κάθε υποπεριοχή του μοντέλου το οποίο σημαίνει ότι πρέπει να ικανοποιείται η βασική υπόθεση ότι κάθε διαμέρισμα είναι καλά αναμεμειγμένο και ομοιογενές. Τα περισσότερα μοντέλα κουτιών είναι παρόμοια με τα Eulerian μοντέλα μεταφοράς και βασίζονται στην εξίσωση μεταφοράς-διάχυσης, η οποία είναι ενσωματωμένη στο χρονικό βήμα υπολογισμού κάθε ομογενοποιημένης υποπεριοχής, ενώ το πεδίο ροής δίδεται εκ των προτέρων και μπορεί να συναχθεί από παρατηρήσεις, εκτιμήσεις υδατικού ισοζυγίου ή προσομοιώσεις άλλων HD μοντέλων [Scott, 1993]. Αν και παρόμοια στη βασική διαμόρφωση, η φιλοσοφία και η ικανότητα των μοντέλων κουτιών είναι γενικά πολύ διαφορετική σε σχέση με αυτή των υδροδυναμικών μοντέλων.

Τα HD μοντέλα είναι σε θέση να υπολογίζουν τρισδιάστατα πεδία ροής με βάση τη ρεαλιστική τοπογραφία της περιοχής και των εξισώσεων των δυνάμεων που ασκούνται στο σύστημα, όπως η αιολική ή η διαφορά πυκνότητας, ενώ η δυναμική συμπεριφορά των ρευστών έχει ενσωματωθεί μέσω των εξισώσεων ορμής που αντικατοπτρίζουν κατά βάση το νόμο του Νεύτωνα. Αποτελέσματα των υδροδυναμικών μοντέλων είναι η υψηλή χωρική ανάλυση, που κυμαίνεται από χιλιόμετρα έως λιγότερο από μέτρα, και υψηλή χρονική ανάλυση, με χρονικά βήματα μεταβολής λιγότερο από μία ώρα έως δεκαετίες. Σε αντίθεση με αυτό, στόχος των μοντέλων κουτιών είναι να μιμηθεί το όλο σύστημα, αντί να προσομοιώσει όλες τις σχετικές διαδικασίες. Οι αριθμητικοί υπολογισμοί των υδροδυναμικών μοντέλων προκαλεί μεγάλους χρόνους υπολογισμού και περιορίζει τη διάρκεια της προσομοίωσης, ενώ τα μοντέλα κουτιών είναι πολύ πιο γρήγορα λόγω των μεγαλύτερων χρονικών βημάτων και με μικρότερο υπολογιστικό χρόνο, καθώς βασίζονται συνήθως σε ένα στατικό πεδίο ροής για όλη τη χρονική περίοδο που προσομοιώνουν. Ωστόσο, στην περίπτωση της θαλάσσιας μοντελοποίησης με την μέθοδο αυτή η στιγμιαία και ομοιογενή ανάμειξη σε καθεμιά από τις μεγάλες υποπεριοχές, είναι πιο κρίσιμη και ενδεχομένως μη ρεαλιστική υπόθεση. Μια λύση σε αυτό, είναι να συμπεριληφθεί χρονοεξαρτημένος όρος για τη διασπορά σε κάθε κουτί, όπως εφαρμόζεται π.γ. στο μοντέλο θαλασσίων κουτιών NRPA-RISO [Nielsen et al, 1995; Iosjpe, 2006]. Κοινό πρόβλημα και στους δύο τύπους μοντέλων αποτελεί ο υπολογισμός της διασποράς του ιγνηθέτη στην παραμετροποίηση της ανάμειξης, ενώ υπάρχει μεγάλη αβεβαιότητα και στους συντελεστές διάχυσης, το οποίο είναι ιδιαίτερα περιοριστικό, δεδομένου ότι οι τιμές αυτές έχουν ισχυρή επιρροή στους τελικούς υπολογισμούς. Τα μοντέλα κουτιών τέλος, επιτρέπουν την ενσωμάτωση ακόμα και βιολογικών συστατικών, διαδικασίες της τροφικής αλυσίδας και ειδικές αλληλεπιδράσεις ή μεταφορά της ραδιενέργειας, όπως την πρόσληψη τροφής, την εισπνοή, κλπ. Σε αυτό το πλαίσιο, τα ραδιολογικά μοντέλα κουτιών έχουν μεγαλύτερες δυνατότητες από ό,τι τα HD μοντέλα και αξιοποιούνται κυρίως σε μελέτες ραδιοπροστασίας και αξιολόγησης κινδύνου.



Σχήμα 2.6. Παράδειγμα μοντέλου κουτιών παγκόσμιας κλίμακας, με της επιμέρους ροές βασισμένες σε υπολογισμούς HD μοντέλου,για τον Βόρειο Ατλαντικό και Αρκτικό Ωκεανό [Iospje et al., 1997].

Στο σημείο αυτό αξίζει να επισημανθεί ότι στις εξισώσεις μεταφοράς που περιλαμβάνονται στα παραπάνω μοντέλα, εν γένει, δεν συμπεριλαμβάνονται μη διατηρητικά χαρακτηριστικά των ραδιονουκλιδίων. Τέτοιες διαδικασίες που οδηγούν σε μη διατηρητική (σωματιδιακή) διασπορά εμφανίζονται κυρίως σε αβαθείς περιοχές, όπου η παλιρροϊκή τριβή και η αιολική ανάδευση παρέχουν τυρβώδη ανάμειξη ικανή να διαβρώσει τα ιζήματα ή να κρατήσει αιωρούμενα τα αδιάλυτα σωματίδια. Αυτός είναι και ο λόγος που είναι απαραίτητο να συμπεριληφθούν με κάποιο τρόπο σε εφαρμογές μικρής κλίμακας κυρίως. Πρακτικά, κάτι τέτοιο υλοποιείται με βάση την κατηγοριοποίηση της σωματιδιακής και διαλυτής μορφής των ραδιονουκλιδίων στο νερό σύμφωνα με τον συντελεστή κατανομής K_d (σε L/kg):

$$\mathbf{K}_{\mathrm{d}} = \mathbf{C}_{\mathrm{s}} / \mathbf{C}_{\mathrm{w}} \tag{2.12}$$

που ορίζεται ως ο λόγος της συγκέντρωσης των ραδιονουκλιδίων στο αιωρούμενο ίζημα C_s και στο νερό C_w σε κατάσταση ισορροπίας [Duursma and Carroll, 1996]. Η προσέγγιση αυτή δεν λαμβάνει ρητά υπόψη της τους μηχανισμούς ρόφησης αλλά υποθέτει ότι τα ραδιονουκλίδια είναι σε ισορροπία μεταξύ των δύο φάσεων (διαλυτής-στερεάς) και ότι η ανταλλαγή μεταξύ αυτών των φάσεων είναι αναστρέψιμη. Ωστόσο, ο χρόνος που έχει παρέλθει από την ενσωμάτωση του ραδιονουκλιδίου στο ίζημα επηρεάζει την τιμή του K_d , δεδομένου ότι ένα κλάσμα

των ενσωματωμένων ραδιονουκλιδίων μπορεί να παραμένει σε στερεά φάση. Τιμές του K_d για συγκεκριμένα ραδιονουκλίδια λαμβάνονται είτε από μετρήσεις πεδίου είτε από εργαστηριακές μελέτες. Ραδιονουκλίδια που βρίσκονται στο έδαφος για μεγάλα χρονικά διαστήματα (π.χ. από το ατύχημα του Chernobyl), μπορεί να παρουσιάζουν υψηλότερες τιμές K_d από εκείνες που καθορίζονται αντίστοιχα σε βραχυπρόθεσμα εργαστηριακά πειράματα, ενώ για τέτοια καλά μελετημένα ραδιονουκλίδια (π.χ. ¹³⁷Cs και ⁹⁰Sr) μπορεί να αξιολογηθούν και επιπλέον παράγοντες όπως οι ιδιότητες του εδάφους που συνδέονται με τον βαθμό ρόφησης, για παράδειγμα η υφή και η οργανική ύλη του εδάφους [IAEA, 2010].

Στα μοντέλα κουτιών η παραπάνω συλλογιστική εφαρμόζεται εύκολα με την εισαγωγή κατάλληλων συντελεστών μετανάστευσης από τη μία φάση στην άλλη και μεταξύ ιζήματος και νερού. Έτσι, οι ροές (σε Bq/s) μεταξύ επιμέρους διαμερισμάτων και επίπεδων της ίδιας υποπεριοχής μπορούν να υπολογιστούν ως το γινόμενο της συνολικής ενεργότητας των ραδιονουκλιδίων (σε Bq) στο κάθε διαμέρισμα με τις τιμές (σε s⁻¹) των επιμέρους συντελεστών μετανάστευσης K_{ij}, όπως φαίνεται στο σχήμα που ακολουθεί (Σχήμα 2.7).



Σχήμα 2.7. Δομή της ροής ανάμειζης και των στοιχείων του περιβάλλοντος που εμπλέκονται στις διαδικασίες της μεταφοράς ραδιονουκλιδίων από και προς το ίζημα [ΙΑΕΑ, 2009].

Αξίζει δε να σημειωθεί, ότι με ανάλογο τρόπο σε πολλά μοντέλα κουτιών συμπεριλαμβάνονται και οι μηχανισμοί βιοσυσσώρευσης ραδιονουκλιδίων από τους οργανισμούς. Υποθέτοντας ότι οι υδρόβιοι οργανισμοί είναι σε ισορροπία με τα μέσα αναφοράς στο γύρω περιβάλλον τους, όπως το νερό ή το ίζημα, ανάλογα με την οδό πρόσληψης ραδιονουκλιδίων που εξετάζεται, μπορεί να οριστεί το ποσοστό συγκέντρωσης CF ή CF_{s-b} στους υδάτινους οργανισμούς (σε L/kg):

$$CF = C_b / C_w \, \acute{\eta} \, CF_{s-b} = C_b / C_s$$
 (2.13)

όπου C_b η συγκέντρωση των ραδιονουκλιδίων σε ζώντες οργανισμούς από όλες τις οδούς έκθεσης (συμπεριλαμβανομένου του νερού, του ιζήματος και της κατάποσης/διατροφικής αλυσίδας) ανά μονάδα ιστού με βάση το νωπό τους βάρος και C_w, C_s η συγκέντρωση ραδιονουκλιδίων στο νερό και το ίζημα, αντίστοιχα. Η IAEA, εδώ και πολλά χρόνια, μέσω της εκτενούς μελέτης των βασικών αρχών των ραδιολογικών μοντέλων [IAEA, 1982; 2001], έχει συγκεντρώσει σύνολα δεδομένων των παραμέτρων μεταφοράς, τόσο για το έδαφος και το γλυκό νερό [IAEA, 1994, 2010], όσο και για το θαλάσσιο περιβάλλον [IAEA, 2004].

Όπως αναφέρθηκε, η εφαρμογή των παραπάνω συντελεστών μεταφοράς βασίζεται στην υπόθεση της ύπαρξης ισορροπίας μεταξύ διαλυτής και στερεάς φάσης. Στα μοντέλα κουτιών η απαίτηση αυτή ικανοποιείται λόγω του μεγάλου βήματος χρόνου, γεγονός που όμως δεν ισχύει στα HD μοντέλα. Εξαίρεση αποτελούν τα HD μοντέλα που χρησιμοποιούν σταθερό πρότυπο διασποράς, όπου μπορεί να υποτεθεί κάποιου είδους ισορροπία. Ακόμα κι αν αυτή η προσέγγιση είναι μάλλον απλή, μπορεί να είναι μια καλή πρώτη προσέγγιση για ραδιονουκλίδια ιδίως όταν δεν υπάρχουν διαθέσιμα γεωχημικά ή ιζηματολογικά δεδομένα. Ένας άλλος τρόπος για την προσομοίωση διαδικασιών μη σταθερής ισορροπίας, είναι να εφαρμόζονται οι συντελεστές μεταφοράς ταυτόχρονα με την προσομοίωση της διαλυτής αλλά και της σωματιδιακής φάσης, που όμως κάνει ακόμα πιο περίπλοκη την επίλυση των Τέτοιου είδους υλοποιήσεις, λόγω του μεγάλου εξισώσεων μεταφοράς. υπολογιστικού φόρτου, περιορίζονται σε μοντέλα τοπικής ή περιφερειακής κλίμακας με μέτρια χωρική διακριτοποίηση [Periánez et al, 1996; 1996b; Margvelashvily et al, 1997; 1998], ενώ νεότερα μοντέλα έχουν πραγματοποιηθεί σε τριδιάστατο πλέγμα [Periánez,1999], με εφαρμογή υπολογιστικών μεθόδων Monte Carlo [Periánez and Elliott, 2001] ή και σε μεγαλύτερης κλίμακας εφαρμογές [Dethleff et al., 2000].

Συμπερασματικά, πρέπει να αναφερθεί ότι σε όλες τις μαθηματικές εξισώσεις που επιλύονται κατά την εφαρμογή αριθμητικών μοντέλων σε οποιαδήποτε από τις παραπάνω κατηγορίας και σε κάθε περίπτωση εμφανίζονται δύο ομάδες παραμέτρων: (α) κύριες παράμετροι που σχετίζονται με τις θεμελιώδεις διεργασίες που συμβαίνουν κατά το υπό εξέταση σύστημα και (β) δευτερεύοντες παράμετροι που προκύπτουν μέσω λογικών προσεγγιστικών εξισώσεων που εφαρμόζονται στις κύριες παραμέτρους. Τα ραδιολογικά και γενικότερα τα περιβαλλοντικά μοντέλα βασίζονται σε ημι-εμπειρικές εξισώσεις που σχετίζουν τις τιμές των παραμέτρων του μοντέλου με ορισμένες περιβαλλοντικές ποσότητες. Δεδομένου ότι η αβεβαιότητα των παραμέτρων του μοντέλου αντικατοπτρίζεται στα αποτελέσματα του μοντέλου, είναι επιθυμητό οι μετρήσιμες περιβαλλοντικές ποσότητες να ταυτίζονται με τις τιμές των παραμέτρων. Δυστυχώς, αυτό κατά κανόνα δεν είναι εφικτό, όπως έχει γίνει φανερό και από διεθνή προγράμματα αξιολόγησης (π.χ. το πρόγραμμα BIOMOVS) με βάση την διασπορά ανθρωπογενών ραδιονουκλιδίων στο περιβάλλον με τις εκτιμούμενες τιμές να αποκλίνουν μέχρι και τάξεις μεγέθους από τις πειραματικές τιμές. Παράλληλα έχει παρατηρηθεί ότι η συλλογική συμπεριφορά διαφόρων διαδικασιών μπορεί να οδηγήσει σε μικρότερη αβεβαιότητα, προβάλλοντας την αναγκαιότητα της χρήσης όσο το δυνατόν λιγότερων παραμέτρων [Monte, 1996]. Σε κάθε περίπτωση είναι προφανές ότι τα αποτελέσματα των μοντέλων προσομοίωσης πρέπει να ελέγχονται ως προς την αβεβαιότητα.

Η αβεβαιότητα αυτή καλύπτει πολλές παραμέτρους, όπως αβεβαιότητες σχετικά με ποσότητες των μοντέλων, σχετικά με τη μορφή τους και την πληρότητά τους, αλλά και σχετικά με τις φυσικές διακυμάνσεις και ανακρίβειες των δεδομένων [Oreskes et al., 1994]. Πρακτικά η προγνωστική δυνατότητα των μοντέλων ελέγγεται και συνοδεύεται από την ανάλυση της ευαισθησίας και της αβεβαιότητας των κυριότερων παραμέτρων. Η ανάλυση ευαισθησίας (sensitivity analysis) είναι μια διαδικασία κατά την οποία αξιολογούνται τα αποτελέσματα της μεταβολής ενός ή περισσοτέρων παραγόντων εισόδου ή παραμέτρων του μοντέλου σχετικά με το τελικό αποτέλεσμα. Βοηθά στην μελέτη των αλληλεπιδράσεων μεταξύ των διαφόρων διαδικασιών που έχουν μοντελοποιηθεί και συνεπώς στην κατανόηση των ιδιοτήτων του μοντέλου, π.χ. την αλλαγή της τελικής εκτίμησης ως προς την χρονική μεταβολή μιας παραμέτρου. Για μοντέλα που περιλαμβάνουν πλήθος παραμέτρων, η ανάλυση ευαισθησίας μπορεί να περιλαμβάνει διαταραχή όλων των παραμέτρων ταυτόχρονα, αλλά κατά τέτοιο τρόπο ώστε οι κύριες επιδράσεις των μεμονωμένων παραμέτρων και των αλληλεπιδράσεών τους να μπορούν να εκτιμηθούν. Η ανάλυση αβεβαιότητας (uncertainty analysis) είναι η διαδικασία κατά την οποία οι σχετικές αβεβαιότητες όλων των συστατικών διαδίδονται μέσω του μοντέλου δίνοντας μια ποσοτικοποιημένη συνολική αβεβαιότητα των τελικών εκτιμήσεων. Με την ανάλυση αυτή είναι δυνατό να εκτιμηθεί κατά πόσο η κάθε παράμετρος εισάγει αβεβαιότητα στο μοντέλο.

Συνολικά, για να αυξηθεί η εμπιστοσύνη στη λειτουργία του μοντέλου και τις προβλέψεις του, καθώς και για την κατανόηση του πώς τα αποτελέσματά του ανταποκρίνονται σε αλλαγές στα δεδομένα εισόδου, είναι θεμελιώδους σημασίας να πραγματοποιείται η συνδυαστική ανάλυση της ευαισθησίας και της αβεβαιότητας του μοντέλου. Η ανάλυση τόσο της ευαισθησίας όσο και της αβεβαιότητας απαιτούν εκτεταμένη περαιτέρω δειγματοληψία από κατανομές που καθορίζουν τις ιδιότητες των δεδομένων εισόδου και προσομοίωση της απόκρισης του μοντέλου. Έτσι, συμπερασματικά, η ανάλυση ευαισθησίας καθορίζει τους βασικούς παράγοντες της αβεβαιότητας, ενώ η ανάλυση αβεβαιότητας ποσοτικοποιεί τη συνολική αβεβαιότητα, ώστε από κοινού να συμβάλουν στην εκτίμηση της αξιοπιστίας του μοντέλου. [Scott et al., 1997; Saltelli et al., 2000].

2.3.2 Το λογισμικό MOIRA-PLUS

Πολλές ολοκληρωμένες πλατφόρμες μοντελοποίησης έχουν χρησιμοποιηθεί τα τελευταία χρόνια για τη μελέτη της διασποράς ραδιονουκλιδίων στο υδάτινο περιβάλλον με τις σημαντικότερες να έχουν αξιολογηθεί και με βάση την σύγκριση μεταξύ των προβλέψεών τους [Monte et al., 2003; 2006; 2008; 2009; Hofman et al., 2011; Tracy et al., 2013]. Μία από αυτές με ευρεία χρήση είναι και το MOIRA-PLUS, που ανήκει στην κατηγορία των μοντέλων διακρητοποίησης υποπεριοχών (box model). Το ολοκληρωμένο υπολογιστικό σύστημα υποστήριξης αποφάσεων

MOIRA-PLUS (MOdel-based computerized system for Management support to Identify optimal remedial strategies for Restoring radionuclide contaminated Aquatic Ecosystems and drainage areas) [Hofman, D., 2004], είναι ειδικά σχεδιασμένο για την υποστήριξη της έρευνας και διαχείρισης για την αξιολόγηση της καταλληλότητας στρατηγικών για τη διαχείριση υδάτινων οικοσυστημάτων που έχουν μολυνθεί από ραδιονουκλίδια [MOIRA, 2014]. Πρόκειται για μοντέλο που βασίζεται σε σύστημα υποστήριζης αποφάσεων (Decision Support System) DSS για την υποστήριξη της διαχείρισης με τον προσδιορισμό του βέλτιστου τρόπου διορθωτικών στρατηγικών για την αποκατάσταση των επιβαρυμένων από ραδιονουκλίδια υδάτινων οικοσυστημάτων και περιοχών απορροής [Monte et al., 2009b]. Το μοντέλο μπορεί να εφαρμοστεί είτε ως σύνολο χρησιμοποιώντας το πρόγραμμα διεπαφής του μοντέλου ή ανεξάρτητα εφαρμόζοντας την αλληλουχία των κατάλληλων υπο-μοντέλων.

Το MOIRA-PLUS DSS βασίζεται στα εξής βασικά δομικά στοιχεία:

α) Επικυρωμένα μοντέλα για την αξιολόγηση της συμπεριφοράς των ραδιονουκλιδίων στο νερό και τους ζωντανούς οργανισμούς, καθώς και της επίδρασης των αντιμέτρων για τα επίπεδα ραδιομόλυνσης.

β) Μοντέλα για την εκτίμηση της δόσης ακτινοβολίας στους ανθρώπους και τους βιολογικούς οργανισμούς (ψάρια) με τις επιμέρους εκθέσεις, την επίδραση των αντιμέτρων και το συνδεόμενο οικονομικό αντίκτυπο.

γ) Μοντέλο ανάλυσης πολλαπλών χαρακτηριστικών (Multi-Attribute Analysis) MAA για να αξιολογήσει την αποτελεσματικότητα των διαφόρων στρατηγικών αντιμέτρων μέσω της λογιστικοποίησης των κοινωνικών, οικολογικών και οικονομικών μειονεκτημάτων και κόστους σε σχέση με τα οφέλη τους [Ríos-Insua et al., 2006].

δ) Σύστημα λογισμικού που αποτελείται από: (1) το λογισμικό υλοποίησης των μαθηματικών μοντέλων, (2) ένα γεωγραφικό σύστημα πληροφοριών (Geographic Information System) GIS και τις σχετικές βάσεις δεδομένων για την επιλογή του υδάτινου συστήματος ενδιαφέροντος και, εφόσον είναι αναγκαίο, των προεπιλεγμένων περιβαλλοντικών δεδομένων που απαιτούνται για την εκτέλεση των μοντέλων, (3) μια γραφική διεπαφή χρήστη (Graphical User Interface) GUI (4) ένα λειτουργικό σύστημα (MOIRA OS) που συνδέει όλα τα παραπάνω τμήματα και βασίζεται στο μοντέλο επικοινωνίας εφαρμογών (Model System Integration) LIANA MSI και τη δομική γλώσσα (Model Intergration Language) MIL LIANA ανεπτυγμένη σε Visual Microsoft C++ [Hofman, 1998; 2000].

Οι ευέλικτες δομές των περιβαλλοντικών μοντέλων που εφαρμόζονται στο MOIPA-PLUS DSS δίνουν τη δυνατότητα για την εφαρμογή αυτών των μοντέλων και σε διάφορα άλλα είδη ρύπων, όπως τα βαρέα μέταλλα. Το DSS μπορεί να εφαρμοστεί σε πολύπλοκα συστήματα νερού που περιλαμβάνει λίμνες, συστήματα λιμνών δεξαμενές νερού, ποτάμια, εκβολές ποταμών, ακόμα και. σε θαλάσσια περιβάλλοντα. Πρόκειται για ένα μοντέλο παραμετροποίησης κουτιών με ομοιογενή
χαρακτηριστικά στη βάση ποσοτικών εκτιμήσεων και ύπαρξης ισορροπίας των συγκεντρώσεων των ραδιονουκλιδίων στα επιμέρους αβιοτικά κομμάτια του υδάτινου συστήματος (επιφανειακά ύδατα, βαθιά νερά, επιφανειακά ιζήματα, ίζημα πυθμένα) που αντιπροσωπεύουν τη μεταφορά ραδιονουκλιδίων μεταξύ τους. Περιλαμβάνει φιλικά προς το χρήστη και, εκ προθέσεως, χαμηλής πολυπλοκότητας μοντέλα πρόβλεψης, τα οποία προσομοιώνουν [Monte et al, 2000]:

 - τη χρονική μεταβολή των υδρολογικών, μορφολογικών και περιβαλλοντικών ποσοτήτων και των παραμέτρων μετακίνησης των ρύπων μέσω των υδάτινων οικοσυστημάτων.

- τη μετακίνηση των ρύπων από τις λεκάνες απορροής στο υδάτινο οικοσύστημα.

- τη μετακίνηση των ρύπων μέσω των αβιοτικών στοιχείων του υδάτινου οικοσυστήματος.

- τη μετακίνηση των ρύπων από τα αβιοτικά στοιχεία στα είδη ψαριών.

την επίδραση των επιλεγμένων μέτρων για τη μείωση των επιπέδων μόλυνσης
 στα υδάτινα σώματα και των δόσεων ακτινοβόλησης για τον άνθρωπο και τους
 ζωντανούς οργανισμούς.



Σχήμα 2.8. Σχηματικό διάγραμμα της δομής του λειτουργικού συστήματος MOIRA-PLUS DSS.

Τα μοντέλα υπολογισμών του MOIRA-PLUS DSS περιλαμβάνουν ένα μικρό αριθμό εύκολα προσβάσιμων περιβαλλοντικών παραμέτρων, που στις περισσότερες περιπτώσεις είναι συλλογικές παράμετροι (collective parameters) [Hakanson, 1995; Monte, 1998]. Οι τιμές των συλλογικών παραμέτρων συγκεντρώνουν πολλά φαινόμενα που συμβαίνουν στα πολύπλοκα οικοσύστημα και μπορούν να χωριστούν σε δύο γενικές κατηγορίες: (α) τις παραμέτρους για τις οποίες είναι διαθέσιμα πειραματικά δεδομένα της περιοχής μελέτης, όπως το μέσο βάθος, ο όγκος, η απορροή του νερού, το ποσό των αιωρούμενων σωματιδίων στο νερό κτλ. και (β) τις παραμέτρους για τις οποίες χρησιμοποιούνται γενικές προτεινόμενες τιμές που γρησιμοποιούνται λόγω της έλλειψης επιτόπιων στοιχείων, για παράδειγμα οι τιμές απώλειας εσωτερικής φόρτισης, όπως της καθίζησης και της επαναιώρησης ρύπων. Οι παράμετροι που ανήκουν στην πρώτη κατηγορία μπορούν να μετρηθούν σχετικά εύκολα και η πειραματική τους αβεβαιότητα δεν επηρεάζει σημαντικά τη συνολική αβεβαιότητα των προβλέψεων του μοντέλου των εκτιμούμενων βασικών μεταβλητών. Οι παράμετροι της δεύτερης κατηγορίας είναι συχνά δύσκολα προσβάσιμες σε ένα συγκεκριμένο σύστημα. Παραδείγματα αυτών των παραμέτρων είναι οι συντελεστές μεταφοράς από το ίζημα στο νερό, η ταχύτητα εναπόθεσης ενός ραδιονουκλιδίου από το νερό σε ιζήματα, ο ρυθμός μετάβασης από τη λεκάνη απορροής στο νερό κ.ά. και μπορούν να συμβάλουν σημαντικά στην αβεβαιότητα του μοντέλου. Η κύρια στρατηγική του μοντέλου MOIRA-PLUS βασίζεται στη χρήση των παραπάνω συλλογικών συγκεντρωτικών παραμέτρων και στην ταυτοποίηση των εμπειρικών σχέσεων μεταξύ των παραμέτρων αυτών και των κυριότερων περιβαλλοντικών συνθηκών του υδάτινου συστήματος.

Το συγκροτημένο σύνολο από κώδικες του MOIRA-PLUS που καλύπτουν τις βασικές διαδικασίες της διασποράς των ραδιονουκλιδίων στα βιοτικά και αβιοτικά συστατικά των υδάτινων συστημάτων με την επωνυμία MARTE (Models for Assessing Radionuclide Transport and countermeasure Effects in complex catchments), περιλαμβάνει τους επιμέρους κώδικες:

- HYDRO (μοντέλο υδρολογίας), που προσομοιώνει την χρονική συμπεριφορά των υδρολογικών και μορφολογικών παραμέτρων ενός σύνθετου σώματος νερού.

- CAT (μοντέλο απορροής), που προσομοιώνει τη μετακίνηση των ρύπων από τις λεκάνες απορροής στο υδάτινο σύστημα.

- MIGRA, που προσομοιώνει τη μετακίνηση των ρύπων μέσω των αβιοτικών στοιχείων (νερό και ίζημα) του υδάτινου συστήματος.

- BIOT, που προσομοιώνει τη μετακίνηση των ρύπων από τα αβιοτικά στοιχείων του υδάτινου συστήματος στα είδη των ψαριών.

- DOSE4B, που υπολογίζει τις δόσεις για τον ανθρώπινο πληθυσμό και στα ψάρια, για το $^{137}\rm{Cs}$ και το $^{90}\rm{Sr}.$

Επιμέρους υπο-μοντέλα χρησιμοποιούνται για να αξιολογήσουν ορισμένες σημαντικές περιβαλλοντικές διεργασίες που επηρεάζουν τη μετακίνηση των

ρυπαντών (θερμική στρωμάτωση του νερού, δυναμική των χημικών ουσιών και θρεπτικών συστατικών στο νερό, δυναμική της βιομάζας, κλπ.). Οι διαδικασίες της καθίζησης, της ραδιενεργού διάσπασης, της μετανάστευσης ραδιονουκλιδίων από το ίζημα (διάχυση/απορρόφηση) και από νερό στο το ίζημα στο νερό (επαναιώρηση/επαναμετακίνηση), της οριστικής απομάκρυνσης των ραδιονουκλιδίων στα παθητικά ιζήματα, της μετακίνησης ραδιονουκλιδίων από τις λεκάνες απορροής και της μεταφοράς ραδιονουκλιδίων δια μέσου της αλυσίδας των υποπεριοχών, συμπεριλαμβάνονται στους στοιχειώδεις υπολογισμούς της συγκέντρωσης των ραδιονουκλιδίων σε κάθε επιμέρους διαμέρισμα και σε κάθε βήμα υπολογισμών.





Η βασική ιδέα του μοντέλου έγκειται στην οριζόντια παραμετροποίηση του εξεταζόμενου υδάτινου σώματος σε έως 20 τομείς. Κάθε στοιχειώδες τμήμα αποτελείται από 5 στρώματα: (α) τη στήλη νερού, (β) ένα ανώτερο στρώμα ιζήματος, το στρώμα διεπαφής, που αλληλεπιδρά έντονα με το νερό, (γ) ένα ενδιάμεσο στρώμα ιζήματος, (δ) ένα στρώμα ιζήματος κάτω από το στρώμα διεπαφής, που αντιπροσωπεύει το ίζημα του πυθμένα και (ε) ένα στρώμα ιζήματος κάτω από το ίζημα του πυθμένα, που είναι και ο τελικός αποδέκτης των ραδιονουκλιδίων που διαφεύγουν από το σύστημα. Επιπλέον, δίνεται η δυνατότητα να συμπεριληφθούν και λεκάνες απορροής από το παράκτιο έδαφος δεξιά ή/και αριστερά των υδάτινων υποπεριοχών. Η απορρόφηση των ραδιονουκλιδίων από αιωρούμενα σωματίδια και από το στρώμα της διεπαφής του ιζήματος καθορίζεται σύμφωνα με το εύρος τιμών του συντελεστή K_d, με βάση την υπόθεση μιας αναστρέψιμης γρήγορης ισορροπίας μεταξύ της διαλυτής και προσρροφημένης φάσης των ραδιονουκλιδίων. Κάθε υποπεριοχή αντιμετωπίζεται στη συνέχεια ως μοναδικό στοιχείο στους μετέπειτα υπολογισμούς του μέσου όρου της ραδιενεργού συγκέντρωσης (Bq/m³), λαμβάνοντας υπόψη την μεταφορά των ραδιονουκλιδίων μεταξύ του νερού των υποπεριοχών, της στήλης του νερού με το ίζημα και της επιφάνεια του νερού με την ατμόσφαιρα.

Πρόσφατα, και στο πλαίσιο της παρούσας διατριβής, πραγματοποιήθηκαν κατάλληλες τροποποιήσεις των μοντέλων μεταφοράς έτσι ώστε να μπορεί να περιγράφει υδάτινα σώματα που χαρακτηρίζονται από αμφίδρομη ροή ύδατος μεταξύ των επιμέρους υποπεριοχών του υδάτινου συστήματος και από τα υδάτινα ρεύματα μεταφοράς, χαρακτηριστικό του θαλάσσιου περιβάλλοντος [Monte, 2011b]. Οι τροποποιήσεις αυτές επιτρέπουν ουσιαστικά την προσομοίωση της κίνησης των μαζών του νερού μέσα από όλες τις συνδεόμενες υποπεριοχές και περιλαμβάνοται

στην τελευταία έκδοση του MOIPA-PLUS (έκδοση 4.1.9). Η εξίσωση του ισοζυγίου του νερού σε κάθε τμήμα τελικά υπολογίζεται από τον τύπο:

$$B_{i} + \sum_{1; j \neq i}^{N} k_{ij} \varphi_{j} - \varphi_{i} = 0$$
(2.14)

όπου B_i η ισορροπία, στην υποπεριοχή *i*, μεταξύ της εξάτμισης, της καθίζησης και του νερού που απορρίπτεται από ποταμούς ή από άλλες εξωτερικές πηγές νερού, φ_j είναι η συνολική εκροή νερού από τον τομέα *j* και k_{ij} είναι το ποσοστό της συνολικής ροής από την υποπεριοχή *j* προς την *i* $\neq j$.



Σχήμα 2.10. Δομή του υπομοντέλου υπολογισμού της συμπεριφοράς των ραδιονουκλιδίων μεταξύ στήλης νερού και ιζήματος πυθμένα.

Σε κάθε επιμέρους περιοχή όλοι οι κυρίαρχοι μηχανισμοί συμπεριλαμβάνονται στην περιγραφή της συμπεριφοράς των ραδιονουκλιδίων στο σώμα του νερού και του ιζήματος, μέσω των εξισώσεων:

$$\frac{\partial C(x,t)}{\partial t} = \frac{1}{l(x)h_{eff}} \frac{\partial}{\partial x} \left[C_T(x,t)\Phi(x,t) \right] + \frac{R(x,t)}{l(x)h_{eff}} + \frac{K_{sw}D_{ep}(x,t)}{h_{eff}} - \frac{vC(x,t)}{h_{eff}} - \frac{v_sC(x,t)}{h_{eff}} - \frac{C_T(x,t)P(x,t)}{l(x)h_{eff}} - \lambda C(x,t) \right]$$
(2.15)

$$\frac{\partial D_{ep}(x,t)}{\partial t} = v_s C(x,t) - K_{sw} D_{ep}(x,t) - K_{ds} D_{ep}(x,t) \frac{v}{h_{eff}} - \lambda D_{ep}(x,t)$$
(2.16)

όπου C(x,t) η ενεργότητα (σε διαλυτή μορφή) στο νερό (Bq/m³) στο σημείο x και σε χρόνο t, l(x) το πλάτος της υποπεριοχής (m), h_{eff} το ενεργό βάθος της υποπεριοχής (m) [Monte, 1995], $C_T(x,t)$ συνολική ενεργότητα (διαλυτή και σωματιδιακή μορφή) στο νερό (Bq/m³), $\Phi(x,t)$ η εισροή νερού (m³/s), R(x,t) εισρέουσα ενεργότητα από λεκάνες απορροής (Bq/m s⁻¹), v ταχύτητα καθίζησης ραδιονουκλιδίων (διαλυτή μορφή) από το νερό στο ίζημα (m/s), D_{ep} η ενεργότητα των ραδιονουκλιδίων στο επιφανειακό ίζημα (Bq/m²), v_s η ταχύτητα καθίζησης ραδιονουκλιδίων (σωματιδιακή μορφή) λόγω ιζηματογένεσης (m/s), K_{sw} ρυθμός επαναιώρησης ραδιονουκλιδίων από το ίζημα στο νερό (s⁻¹), K_{ds} ο ρυθμός μετανάστευσης στη στήλη του ιζήματος από το επιφανειακό στο βαθύ ίζημα (s⁻¹), λ η σταθερά αποδιέγερσης ραδιονουκλιδίου (s⁻¹).

Στη συνέχεια, οι βιοτικές διαδικασίες αντιμετωπίζονται χωριστά από τις αβιοτικές, ενώ οι δύο τύποι διαδικασιών συνδέονται με τη βοήθεια του συντελεστή βιοσυσσώρευσης (bioconcentration factor). Ο συντελεστής βιοσυσσώρευσης τροποποιείται από παράγοντες που είναι γνωστό ότι επηρεάζουν την βιολογική πρόληψη (biouptake) των ραδιονουκλιδίων, όπως είναι η συγκέντρωση των σταθερών στοιχείων που είναι χημικά ανάλογα των ραδιονουκλιδίων στο νερό (π.χ. του K για το ¹³⁷Cs και του Ca για το ⁹⁰Sr, άρα της αλατότητας του νερού [Hakanson, L. και Sazykina, T., 2001]), η ποσότητα των ραδιονουκλιδίων σε διαλυτή και σωματιδιακή φάση, οι διατροφικές συνήθειες των ψαριών, το μέσο βάρος τους, τα τροφικά χαρακτηριστικά του υδάτινου περιβάλλοντος και η θερμοκρασία του νερού. Η μόλυνση των ψαριών στα υδάτινα σώματα εξαρτάται χωρικά και χρονικά από τα επίπεδα της συγκέντρωσης των ραδιονουκλιδίων με βάση τις αρχές της δυναμικής πρώτης τάξης. Η διαφορική εξίσωση που διέπει την συγκέντρωση του ραδιονουκλιδίου στα ψάρια είναι:

$$\frac{dCF(t)}{dt} = F_{Fu} - F_{Fe} - \lambda CF(t)$$
(2.17)

όπου CF(t) είναι η συγκέντρωση του ραδιονουκλιδίου στα ψάρια ως προς το χρόνο t (Bq/kg), F_{Fu} η βιολογική πρόληψη ραδιονουκλιδίων (Bq/kg s⁻¹), F_{Fe} η απόρριψη ραδιονουκλιδίων από τους οργανισμούς (Bq/kg s⁻¹) και $\lambda CF(t)$ η ραδιενεργός αποδιέγερση (Bq/kg s⁻¹).

Οι ενεργές δόσεις για τα ψάρια και τον πληθυσμό, καθώς και η συλλογική δόση υπολογίζεται με βάση τις τυποποιημένες εξισώσεις εκτίμησης, λαμβάνοντας υπόψη τις διατροφικές και παράκτιες ψυχαγωγικές συνήθειες του πληθυσμού [ICRP, 1991]. Παράλληλα, υπάρχει ένας μεγάλος αριθμός διαθέσιμων επιλογών μέτρων αντιμετώπισης της ραδιομόλυνσης που έχουν ενσωματωθεί στο πρόγραμμα, που περιλαμβάνουν από ειδική χημική επεξεργασία των υδάτων έως απαγορεύσεις αλίευσης ή άρδευσης των καλλιεργειών [Hakanson et al., 1996b]. Οι πιθανές ενέργειες μπορούν να ταξινομηθούν σε τέσσερις βασικές κατηγορίες: χημικές, βιολογικές, φυσικές και κοινωνικές. Σε ορισμένες περιπτώσεις, ο συνδυασμός των δράσεων μπορεί να είναι η καλύτερη στρατηγική, γεγονός που εξηγεί γιατί το MOIRA-PLUS DSS είναι πολύ χρήσιμο για την βελτιστοποίηση μια απόφασης ή για την αξιολόγηση των κοινωνικοοικονομικών επιπτώσεων, ακόμα και όταν δεν πραγματοποιηθεί καμία ενέργεια.

Το ολοκληρωμένο σύστημα MOIPA-PLUS ή επιμέρους κομμάτια του ως αυτοτελή μοντέλα έχουν χρησιμοποιηθεί αρκετές φορές σε εφαρμογές για πραγματικά και υποθετικά σενάρια ραδιομόλυνσης. Παραδείγματα εφαρμογών περιλαμβάνουν:

 την προσομοίωση της χρονικής εξέλιξης της διασποράς ¹³⁷Cs σε πολλές λίμνες που καλύπτουν ένα ευρύ φάσμα χαρακτηριστικών, επιδεικνύοντας εξαιρετική προβλεπτική ικανότητα [Hakanson, L., 2000].

- μια τυφλή δοκιμή του μοντέλου MOIRA στη λίμνη Uruskul της Ρωσίας, που είχε μολυνθεί από ραδιενεργό νέφος 137 Cs λόγω του ατυχήματος στο Kyshtym το 1957 [Hakanson, L., και Sazykina, 2001].

ανάλυση ενός συνόλου εναλλακτικών στρατηγικών αποκατάστασης της λίμνης Svyatoe, που βρίσκεται 237 km από το Chernobyl, η οποία χαρακτηρίζεται από υψηλά επίπεδα ρύπανσης ¹³⁷Cs, στα πλαίσια του διεθνούς προγράμματος EVANET-HYDRA [Monte et al., 2005b]

- στα πλαίσια του προγράμματος EMRAS της IAEA για την αξιολόγηση διαφορετικών μοντέλων, πραγματοποιήθηκαν προσομοιώσεις της έκπλυσης αποθέσεων ⁹⁰Sr και ¹³⁷Cs στην κοίτη του ποταμού Pripyat της Ουκρανίας, της εκροής ⁹⁰Sr και ¹³⁷Cs από τον ποταμό Dnieper της Ουκρανίας στην εκβολή του στη Μαύρη Θάλασσα (Nότια Boug), της μεταφοράς ³H στον ποταμό Loire της Γαλλίας και της συμπεριφοράς του ²²⁶Ra στις εκβολές του ποταμού Huelva στην Ισπανία [Monte et al., 2008].

- εφαρμογή σε περιφερειακό επίπεδο για την πρόβλεψη της συμπεριφοράς της χρονικής εξέλιξης της ραδιομόλυνσης σε μεγάλα συστήματα γλυκού νερού, όπως του ποταμού Po – ο μεγαλύτερος της Ιταλίας με μήκος 652 km και λεκάνη απορροής 7×10^4 km² – που με βάση εμπειρικούς υπολογισμούς των αποθέσεων του ¹³⁷Cs από το ατύχημα του Chernobyl στην λεκάνη απορροής του ποταμού, αξιολογήθηκε με επιτυχία η χρονική εξέλιξη των συγκεντρώσεων στο νερό στην τοποθεσία Caorso [Monte et al., 2009].

- προσομοίωση της μόλυνσης που προκύπτει από ένα σοβαρό ατύχημα που οδηγεί σε έκλυση ¹³⁷Cs και ⁹⁰Sr στη λεκάνη απορροής του ποταμού Tagus της Ισπανίας, στα πλαίσια άσκησης λήψης αποφάσεων σχετικά με τη μακροπρόθεσμη διαχείριση ραδιομόλυνσης γλυκού νερού σε περιφερειακό επίπεδο [Gallego et al., 2009]. - εφαρμογή, στο πλαίσιο του έργου EURANOS για την πρόγνωση της μακροπρόθεσμης εξέλιξης της μόλυνσης ¹³⁷Cs στα ψάρια και το νερό της λίμνης Kohzanovskoe στην περιφέρεια Bryansk της Ρωσίας για την περίοδο μετά το Chernobyl, σύγκριση με εμπειρικά δεδομένα και αξιολόγηση της αποτελεσματικότητας διαφόρων στρατηγικών παρέμβασης με βάση εφαρμογή μέτρων [Gallego et al., 2010].

εφαρμογή σε περιφερειακή κλίμακα για την εκτίμηση των ραδιολογικών επιπτώσεων του ατυχήματος του Chernobyl για το οικοσύστημα του γλυκού νερού που περιλαμβάνει 10 λίμνες και 18 ποτάμια της Ιταλίας επιβαρυμένα με ¹³⁷Cs [Monte, L., 2011].

παράδειγμα εφαρμογής στο θαλάσσιο περιβάλλον για την πρόβλεψη της εξέλιξης της συγκέντρωσης του ραδιενεργού ¹³⁷Cs από το Chernobyl στα νερά της Μεσογείου [Monte, L., 2011b].

- εφαρμογή σε σύνθετο θαλάσσιο περιβάλλον για την αξιολόγηση της μακροπρόθεσμης συμπεριφοράς του ¹³⁷Cs στο νερό και τα ψάρια της Βαλτικής Θάλασσας [Monte, L., 2014].

- εφαρμογή για τον προσδιορισμό της περιβαλλοντικής ευαισθησίας διαφορετικών υδάτινων οικοσυστημάτων στα πλαίσια άσκησης του προγράμματος EMRAS ΙΙ με στιγμιαία επιφανειακή εναπόθεση ⁹⁰Sr και ¹³⁷Cs σε υδάτινο περιβάλλον γλυκού νερού στις λίμνες Øvre Heimdalsvatn της Νορβηγίας και Bracciano της Ιταλίας, καθώς και σε θαλάσσιο περιβάλλον στον κόλπο του Θερμαϊκού της Ελλάδας, που πραγματοποιήθηκε στα πλαίσια της παρούσας διατριβής [IAEA, 2014].

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 3

ΠΕΙΡΑΜΑΤΙΚΕΣ ΜΕΘΟΔΟΙ

3.1 Μέθοδοι μέτρησης

Η συλλογή πειραματικών δεδομένων από το περιβάλλον μπορεί να πραγματοποιηθεί με μία από τις ακόλουθες μεθόδους: (α) συλλογή δειγμάτων και εργαστηριακές μετρήσεις (lab-based), (β) απευθείας μέτρηση με όργανα επιτόπιας καταγραφής (in-situ) και (γ) επιτόπια μέτρηση δειγμάτων (on-site). Εν προκειμένω, αντικείμενο μελέτης ήταν η επίδραση των ραδιονουκλιδίων στο υδάτινο περιβάλλον και η συσχέτισή τους με άλλες φυσικοχημικές παραμέτρους. Οι μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν περιελάμβαναν τόσο δειγματοληψίες νερού και ιζήματος όσο και επιτόπιες διασκοπίσεις με κατάλληλα όργανα καταγραφής. Στη συνέχεια παρατίθενται οι τεχνικές και τα μέσα δειγματοληψίας και οι αισθητήρες επιτόπιας καταγραφής δεδομένων που χρησιμοποιήθηκαν στο σύνολο των περιοχών μελέτης, με βάση τις συνθήκες μέτρησης και την διαθεσιμότητα υλικών.

3.1.1 Δειγματοληψίες

Οι δειγματοληψίες που πραγματοποιήθηκαν αφορούν στη συλλογή δειγμάτων νερού από διάφορα βάθη της υδάτινης στήλης και στη συλλογή επιφανειακών δειγμάτων και κατακόρυφων πυρήνων ιζήματος πυθμένα. Σε όλες τις δειγματοληψίες χρησιμοποιήθηκε ο εξοπλισμός του ΕΛΚΕΘΕ [HCMR, 2014], με εξαίρεση αυτές στην λίμνη Ulubat στην περιοχή της Θάλασσας του Μαρμαρά. Το ωκεανογραφικό Ω/Κ ΑΙΓΑΙΟ (Σχήμα 3.1 και Πίνακας 3.1) είναι το σκάφος που κατεξοχήν χρησιμοποιήθηκε για την πραγματοποίηση των ερευνητικών αποστολών σε ανοικτή θάλασσα, ενώ σε παράκτιες περιοχές οι μετρήσεις έγιναν με μικρότερα σκάφη.



Σχήμα 3.1. Το ωκεανογραφικό σκάφος Ω/Κ ΑΙΓΑΙΟ του ΕΛΚΕΘΕ.

Χρονολογία Πλοήγησης:	1985 (1997 ανακατασκευή)
Διαστάσεις (m):	μήκος (61.5)/πλάτος (9.6)/βύθιση (2.9)
Μέγιστη ταχύτητα (kn):	12.5
Αυτονομία (d):	20
Μέγιστος αριθμός προσωπικού:	22 πλήρωμα, 21 ερευνητές - τεχνικοί
Χώροι Εργαστηρίων (m²):	χημείας-βιολογίας (29), υγρής ανάλυσης (10), γεωλογίας-CTD (32), ακουστικών ερευνών (6), πρωτογενούς παραγωγής (6), υπολογιστών (6), "καθαρό" δωμάτιο ανάλυσης διαλυτών ιχνοστοιχείων (κοντέινερ)
Ερευνητικός εξοπλισμός:	σόναρ (multibeam, side scan), σύστημα σεισμικής ανάλυσης (air-gun), CTDs, μετρητές θαλ. ρευμάτων, ροζέτες για δειγματοληψία νερού (με 12 & 24 δειγματολήπτες), δειγματολήπτες πλαγκτού, ιζηματοπαγίδες, βενθικοί δειγματολήπτες, πυρηνολήπτες (πανίδας & ιζήματος).
Ωκεανογ. βαρούλκο (μέγιστο βάθος m):	6000
Υποβρύχια οχήματα (μέγιστο βάθος m):	βαθυσκάφος "ΘΕΤΙΣ" (610),ROV "Super ΑΧΙΛΛΕΑΣ" (1000)-"Max ROVER" (2000)

Πίνακας 3.1. Τεχνικά χαρακτηριστικά και ερευνητικός εξοπλισμός του σκάφους Ω/Κ ΑΙΓΑΙΟ.

Σε όλες τις δειγματοληψίες ιζήματος ακολουθήθηκαν οι καθιερωμένες από την επιστημονική κοινότητα διαδικασίες ώστε να διασφαλιστεί η ποιότητα των δειγμάτων που συλλέγονται [IAEA, 2003], στο βαθμό που κάθε φορά αυτό ήταν εφικτό. Ιδιαίτερη φροντίδα δίνεται στην επιλογή των σημείων δειγματοληψίας, λαμβάνοντας υπόψη τα γεωλογικά-ιζηματολογικά χαρακτηριστικά και την μορφολογία του πυθμένα, ώστε αυτά να είναι αντιπροσωπευτικά της υπό μελέτη περιοχής, αλλά και την προσβασιμότητα. Σε περίπτωση επιφανειακών δειγματοληψιών ευρύτερων περιοχών με σκοπό την χαρτογράφηση του πυθμένα (mapping) σημαντική είναι η επιλογή τόσο της κατάλληλης στρατηγικής δειγματοληψίας (εμπειρική, συστηματική ή τυχαία) όσο και του δικτύου δειγματοληψίας (grid) – για το σκοπό αυτό υπάρχουν ακόμα και ειδικευμένα λογισμικά [VSP, 2014]. Ο τρόπος με τον οποίο πραγματοποιείται μια δειγματοληψία ιζήματος παρέχει διαφορετικές πληροφορίες του υπό μελέτη δείγματος. Στην περίπτωση του προσδιορισμό της συγκέντρωσης των ραδιονουκλιδίων στο ίζημα (και όχι μόνο) βασική προϋπόθεση ποιοτικών μετρήσεων είναι τα δείγματα να είναι όσο το δυνατόν αδιατάρακτα και ομοιογενή. Ο εξοπλισμός που χρησιμοποιείται για αυτό το σκοπό περιλαμβάνει διάφορους τύπους οργάνων πυρηνοληψίας (corers) ή αρπαγής επιφανειακού ιζήματος (grappers). Σε εξαιρετικές περιπτώσεις η συλλογή δείγματος μπορεί να γίνει με το χέρι (στην παράκτια ζώνη ή με δύτη έως 50 m βάθος) ή από υποβρύχια οχήματα (σε μεγαλύτερα βάθη).

Πιο αναλυτικά, οι αρπάγες επιφανειακού ιζήματος ή φαγάνες είναι αρκετά εύχρηστες ακόμα και σε ρηχά περιβάλλοντα αλλά βοηθούν μόνο στη μελέτη επιφανειακών ιζημάτων ή και μικρών πυρήνων ιζήματος (έως 20 cm). Τα δείγματα που συλλέγονται με αυτόν τον τρόπο πρέπει να μοιάζουν όσο το δυνατόν περισσότερο με το αρχικό υλικό χωρίς απώλειες στο μέγεθος των σωματιδίων ή γεω-

χημικής κλάσης. Διατάραξη ή αλλοίωση του δείγματος θα μπορούσε να συμβεί μέσω της συμπίεσης (compaction), ανάμειζης (mixing) ή κλασματικής απώλειας (fractional loss) των ιζημάτων. Αυτές οι διαταραχές μπορεί να προκληθούν από το κύμα πίεσης του δειγματολήπτη πριν την συλλογή δείγματος, από την τριβή αντίστασης κατά τη διάρκεια της διείσδυσης στο ίζημα, την κλίση διείσδυσης του δειγματολήπτη και το ξέπλυμα ή άλλες απώλειες κατά τη διάρκεια της ανάκτησης του δείγματος. Σημαντικό ρόλο για τη δυνατότητα χρήσης κάθε τύπου αρπαγέα σε διάφορα περιβάλλοντα παίζει το βάρος του, ενώ η μεγάλη επιφάνεια δειγματοληψίας θεωρείται πλεονέκτημα για την απομόνωση αδιατάραχτων επιφανειακών δειγμάτων από το κέντρο τους. Οι διαθέσιμοι από το ΕΛΚΕΘΕ αρπάγες είναι τύπου:

- Ponar me epiqáneia deigmatolyvíaz 0.45 m^2
- Van Veen με επιφάνεια δειγματοληψίας 0.2 m² και 0.1 m²
- Smith- Mcintyre με επιφάνεια δειγματοληψίας 0.1 m²

ενώ τα πλεονεκτήματα και μειονεκτήματα τους ως προς το σύστημα ενεργοποίησης, το σχεδιασμό, την προστασία του δείγματος από ξέπλυμα κατά την ανάσυρση και τη σταθερότητα συνοψίζονται στον Πίνακα 3.2.

Τύπος	Σύστημα ενεργοποίησης	Σχεδίαση	Προστασία δείγματος	Σταθερότητα
Ponar	Καλό, υπερβολικά ευαίσθητο σε πυθμένες ψηφίτη.	Εξαιρετική, το σχήμα των δαγκάνων ακολουθεί το τόξο κοπής, καμία μετατόπιση του δείγματος.	Καλή, εκτός από τις επικαλυπτόμενες δαγκάνες, ένα ζεύγος μεταλλικών πλακών τοποθετημένα κοντά στις πλευρικές όψεις τους μειώνει περαιτέρω την πιθανότητα ξεπλύματος του δείγματος.	Πολύ καλή, δειγματολήπτης βαρύς με ευρεία γραμμική βάση (όταν είναι ανοιχτές οι δαγκάνες), διατηρεί σχεδόν κατακόρυφη κατάβαση, σταθερή στάση στον πυθμένα στα περισσότερα υδάτινα περιβάλλοντα με σχετικά ασθενή ρεύματα (λίμνες).

Πίνακας 3.2. Σύγκριση τεχνικών χαρακτηριστικών τυπικών αρπαγέων ιζήματος επιφανείας.

Van Veen	Καλό,	Σταθμισμένες	7-20%	Εξαιρετική,	
	ο βελτιωμένος	δαγκάνες	διακύμανση στις	σταθμισμένες	
	μηχανισμός	κατασκευασμένες	μέτρησεις του	δαγκάνες, η	
	απελευθεύροςης	από ανοξείδωτο	όγκου του	μηχανισμός	
	παρέχει	χάλυβα με	ιζήματος,	μεταφοράς	
	ευκολότερη	μεγάλη	προσθήκη	κίνησης (μέσω	
	δειγματοληψία	επιφάνεια	καλυμμάτων από	αλυσίδας)	
	σε εκτεθειμένες	ιδανικές για	καουτσούκ στο	επιτρέπει κάθετη	
	θαλάσσιες σκληρές		άνοιγμα συλλογής	βύθιση <i>,</i> ακόμη και	
	περιοχές.	συνθήκες στη	ιζήματος που	όταν υπάρχουν	
		θάλασσα.	αποσκοπεί στην	ισχυρά	
			αποτροπή	υποθαλάσσια	
			ξεπλύματος.	ρεύματα.	
Smith-	Καλό,	Πλευρικές και	Πτερύγια από	Σταθερή,	
McIntyre	πείροι έλξης	κάτω πλάκες	καουτσούκ	δύο κουβάδες-	
	ασφάλειας που	εξωτερικά	στερεωμένα στα	δαγκάνες	
	προβλέπονται	τοποθετημένες	πλαίσια του	τοποθετημένα σε	
	για την πρόληψη	στις δαγκάνες	ανοίγματος, το	σταθμισμένο	
	της πρόωρου ή	εμποδίζουν την	καλύπτουν κατά	ατσάλινο πλαίσιο	
	τυχαίου	εμπλοκή και το	τη διάρκεια της	επιτρέπουν στον	
	κλεισίματος.	αναπάντεχο	ανάκτησης και	δειγματολήπτη να	
		κλείσιμο.	προστατεύουν το	τοποθετηθεί	
			δείγμα.	κατακόρυφα στον	
				πυθμένα,	
				ελεύθερη ρήψη	
				10 m πάνω από	
				τον πυθμένα της	
				λίμνης ή της	
				θάλασσας είναι	
				ικανή για τη	
				συλλογή σκληρών	
				δειγμάτων.	

Οι πυρηνολήπτες, σε αντίθεση με τους αρπάγες, διεισδύουν σε βάθος λαμβάνοντας πυρήνες ιζημάτων, επιτρέποντας τη μελέτη της κατακόρυφης κατανομής τους. Τα δείγματα των πυρήνων χρησιμεύουν για τον καθορισμό του ρυθμού ιζηματογένεσης, την ιστορία της προσθήκης εξωγενών προσμείξεων/μολυντών στο σύστημα του νερού, καθώς και τις συνολικές αποθέσεις ρύπων. Κατά τη λήψη ενός πυρήνα, είναι σημαντικό να συλλεχτούν αδιατάραχτα τα αρχικά στρώματα του ιζήματος και να αποφευχθεί η απώλεια σημαντικών τμημάτων του πυρήνα, ιδιαίτερα του επιφανειακού στρώματος που έχει υψηλή περιεκτικότητα σε νερό και μπορεί να περιέχει τους πιο πρόσφατους μολυντές. Η διάμετρος του σωλήνα πρέπει να είναι όσο το δυνατό μεγαλύτερη, προκειμένου να παρέχει επαρκές υλικό για ανάλυση, να ελαχιστοποιούνται οι επιπτώσεις της επάλειψης κατά μήκος της ακμής του πυρήνα και να ελαχιστοποιηθεί η πιθανότητα συμπίεσης του πυρήνα. Στην πράξη, συνήθως χρησιμοποιούνται σωλήνες διαμέτρου 5 και 12 cm. Προβλήματα που συνδέονται με την τριβή του ιζήματος κατά μήκος του εσωτερικού τοιχώματος του κυλίνδρου είναι πιο έντονες στους σωλήνες μικρότερου μήκους, αλλά εξαρτάται επίσης και από τον τύπο του ιζήματος – τα λεπτόκοκκα ιζήματα είναι πιο προβληματικά. Κατά αναλογία με του αρπάγες επιφανείας, για την συλλογή πυρήνων ιζήματος υπάρχει ένα πλήθος διαφορετικού τύπου πυρηνολήπτες [Udroch and MacKnight, 1994]. Οι πυρηνολήπτες που χρησιμοποιήθηκαν στην παρούσα μελέτη ήταν τύπου:

- βαρύτητας (gravity corers) διαφόρων μηκών μέχρι 5 m
- πολυ-πυρηνολήπτης βαρύτητας (multiple gravity corer)
- κιβωτολήπτες (box corers) με επιφάνεια δειγματοληψίας 0.25 και 0.1 m^2
- φορητός πεπιεσμένου αέρα (piston corer) 1 m για χρήση από κινρά σκάφη

Οι πυρηνολήπτες βαρύτητας μπορούν να συλλέξουν πυρήνες μεγάλου βάθους, αλλά διαταράσσουν αρκετά τα ιζήματα επηρεάζοντας έτσι σε μεγάλο βαθμό τις εκτιμήσεις του ρυθμού ιζηματογένεσης. Το φαινόμενο αυτό μπορεί να ελαττωθεί με τη χρήση κιβωτοληπτών, όμως επιτρέπουν τη μελέτη μόνο των ανώτερων στρωμάτων του πυρήνα που σχετίζονται με την πιο πρόσφατη χρονικά (σύγχρονη) ιζηματογένεση.



Σχήμα 3.2. Χαρακτηριστικές δειγματοληψίες ιζήματος στο πεδίο με χρήση προικολήπτη βαρύτητας (δεζιά) και αρπάγες ιζήματος τύπου Ponar (κέντρο) και Van Veen (αριστερά).

Αντίθετα με δειγματολήπτες πυθμένα, οι παγίδες ιζήματος (sediment traps) είναι το μόνο διαθέσιμο μέσο για τον προσδιορισμό του ρυθμού καθίζησης (κατακρήμνιση) ή κίνησης (μεταφορά) ιζήματος. Πρέπει, ωστόσο, να επισημανθεί ότι σε μικρά βάθη γύρω από τις παγίδες ιζήματος είναι μπορεί να αναπτυχτεί ένα στρώμα από μικροοργανισμούς που περιβάλλει τα συγκρατούμενα σωματίδια και επομένως οι ροές που καταγράφονται να είναι συχνά χαμηλότερες από τις πραγματικές.

Όσον αφορά τις δειγματοληψίες νερού η μεθοδολογία, οι τεχνικές και τα μέσα ποικίλουν και καθορίζονται σε μεγάλο βαθμό από την μετρούμενη ποσότητα και τον τύπο της περαιτέρω ανάλυσης [Wurl, 2009]. Κύριοι παράγοντες κατά την δειγματοληψία νερού με σκοπό τον προσδιορισμό ραδιονουκλιδίων (και ειδικότερα του ¹³⁷Cs) είναι η ταχύτητα στην μεταφορά και η ερμητική φύλαξη στου δείγματος,

ώστε να ελαχιστοποιηθεί η έκθεσή του στον αέρα (διατήρηση διαλυτών αερίων στο νερό), καθώς και η επίτευξη χαμηλού pH με χρήση κατάλληλων οξέων (αποφυγή προσρόφησης ραδιονουκλιδίων στα τοιχώματα του δοχείου φύλαξης). Ο εξοπλισμός του ΕΛ.ΚΕ.ΘΕ. σχετικά με τις δειγματοληψίες νερού από διάφορα βάθη περιλαμβάνει:

- φιάλες συλλογής νερού τύπου Niskin 8 και 12 L
- ροζέτες (rosettas) 12 και 24 θέσεων Niskin
- ωκεανογραφικό βαρούλκο (dynacon winch) με καλώδιο πόντισης 6000 m
- απελευθερωτές (releasers) ακουστικοί και μηχανικοί

Η διαδικασία δειγματοληψίας νερού σε διάφορα βάθη περιλαμβάνει την τοποθέτηση ανοιχτών φιαλών Niskin στο πλαίσιο της ροζέτας συνδεόμενα με απελευθερωτές. Κατά την κάθοδο του πλαισίου στην υδάτινη στήλη, με τη χρήση βαρούλκου, ενεργοποιούνται οι απελευθερωτές στο επιθυμητό κάθε φορά βάθος εγκλωβίζοντας ποσότητα νερού μέσα στις φιάλες. Παράλληλα, πραγματοποιείται καταγραφή του βάθους ή και άλλων παραμέτρων (αλατότητα, θερμοκρασία κ.ά.) με κατάλληλους αισθητήρες. Στο τέλος της πόντισης το σύστημα ανασύρεται και πάλι με το βαρούλκο στο κατάστρωμα του σκάφους.



Σχήμα 3.3. Μεθοδολογία δειγματοληψίας νερού σε διάφορα βάθη με ροζέτα (αριστερά, κέντρο) εφοδιασμένη με φιάλες Niskin (δεζιά).

Σε όλες τις περιπτώσεις επιτόπιας δειγματοληψίας που αναφέρθηκαν επιλέγεται ικανή ποσότητα δείγματος και αποθηκεύεται σε κατάλληλα δοχεία και σφραγίζονται με αντίστοιχη καταγραφή των δεδομένων δειγματοληψίας (ακριβής θέση, ώρα, μέθοδος, συνθήκες περιβάλλοντος κ.ά.). Τα δείγματα φυλάσσονται (συνήθως υπό ψύξη) και μεταφέρονται κατά τέτοιο τρόπο ώστε να αποφευχθούν τυχών αλλοιώσεις (λόγω ανάδευσης στους πυρήνες, απώλειας υγρασίας, θέρμανσης κ.ά.) για περαιτέρω κατεργασία, δειγματοποίηση και εργαστηριακές μετρήσεις.

3.1.2 Επιτόπιοι καταγραφείς ωκεανογραφικών παραμέτρων

Όπως αναφέρθηκε και προηγουμένως, κατά την διάρκεια δειγματοληψιών νερού στη υδάτινη στήλη με χρήση ροζέτας πραγματοποιούνται παράλληλα και κατακόρυφες καταγραφές βασικών φυσικών παραμέτρων. Από ωκεανογραφικής άποψης η γνώση της κατακόρυφης κατανομής της θερμοκρασίας, της αλατότητας, και της πυκνότητας του νερού είναι θεμελιώδης. Η μέτρηση της θερμοκρασίας γίνεται άμεσα ενώ το βάθος προκύπτει από την μέτρηση της πίεσης (1+βάθος(m)÷10=πίεση(bar)). Η αλατότητα και η πυκνότητα επίσης υπολογίζονται έμμεσα συνήθως, ως συνάρτηση της ηλεκτρικής αγωγιμότητας του νερού σε συνδυασμό με το βάθος και την θερμοκρασία (είτε σε πρακτικές μονάδες αλατότητας (psu) [UNESCO, 1983] είτε σε κατά βάρος περιεκτικότητα αλάτων στο νερό (ppt) [Gill, 1982]). Σε δεύτερο επίπεδο τα κατακόρυφα προφίλ του διαλυτού οξυγόνου, της γλωροφύλλης, των αιωρούμενων σωματιδίων, της θολότητας και άλλων χαρακτηριστικών δίνουν μια πιο ολοκληρωμένη εικόνα της υπό μελέτη περιοχής. Η καταγραφείς που διαθέτει το Ινστιτούτο Ωκεανογραφίας του ΕΛ.ΚΕ.ΘΕ. είναι:

- αυτογραφικό όργανο CT (conductivity temperature) SBE-37
- αυτογραφικό όργανο CTD (conductivity temperature depth) SBE-19
- ηλεκτρονικό σύστημα πολλαπλών αισθητήρων SBE-911
- σαλινογράφος (salinometer) Autosal για την ακριβή μέτρηση της αλατότητας
- σταθερός θερμοσαλινογράφος ST (salinometer temperature) στο Ω/Κ ΑΙΓΑΙΟ

Όργανα χημικής σάρωσης (chemical scanners) και οπτικοί αισθητήρες για τη μέτρηση σωματιδίων - όπως οι μετρητές μεταφοράς (transmissometers) και αισθητήρες σκέδασης φωτός (ligt scattering sensors) - μπορούν επίσης να προσαρμοστούν σε κοινό πλαίσιο και σε επικοινωνία με τα CTD παρέχοντας σημαντικές επιπλέον πληροφορίες, χρήσιμες, για παράδειγμα, στη μελέτη υποθαλάσσιων γεωθερμικών ρευμάτων νερού.

Πέρα από τις κατακόρυφες καταγραφές, στις δειγματοληψίες πεδίου είναι απαραίτητο να υπάρχει μια ελάχιστη γνώση της περιοχής μελέτης. Πρωταρχική πληροφορία στο υδάτινο περιβάλλον είναι η τοπολογία του πυθμένα. Η άμεση καταγραφή του βάθους αλλά και ευρύτερα της μορφολογίας του πυθμένα, γίνεται με τα βαθύμετρα (bathometers) ή με συστήματα πολυδιαυλικής βυθομέτρησης (multibeam bathymetry systems). Στον εξοπλισμό του Ινστιτούτου περιλαμβάνονται τα μόνιμα εγκατεστημένα στο Ω/Κ ΑΙΓΑΙΟ:

- βυθόμετρο OceanData-Bathy 1500
- σύστημα πολυδιαυλικής βυθομέτρησης 20 kHz Seabeam-2120 βαθέων υδάτων

και τα φορητά όργανα:

- βυθόμετρο Lowrance X15 για μικρά βάθη και μικρά σκάφη
- σύστημα πολυδιαυλικής βυθομέτρησης 180 kHz Seabeam-1180 ρηχών υδάτων

3.1.3 Υποθαλάσσιοι ανιχνευτές ακτινοβολίας-γ

Στους επιτόπιους καταγραφείς που αναφέρθηκαν προηγουμένως συμπεριλαμβάνονται και δύο υποθαλάσσιοι ανιχνευτές ακτινοβολίας-γ για τη μελέτη των ραδιονουκλιδίων στο νερό. Οι δύο ανιχνευτές που έχουν χρησιμοποιηθεί ευρέως στο θαλάσσιο περιβάλλον είναι τα RADAM ΙΙΙ και KATERINA.



Σχήμα 3.4. Ο ανιχνευτής RADAMIII (αριστερά) και γράφημα του εσωτερικού και του εζωτερικού μέρους του ανιχνευτή KATERINA (δεζιά).

Και οι δύο ανιχνευτές είναι σπινθηριστές (scintillators) και περιλαμβάνουν ένα 3"×3" κρύσταλλο NaI(Tl). Ο σπινθηριστής συνδέεται μέσω κυματοδηγών (phototubes) με φωτοπολλαπλασιαστή (photomultiplier) και το παραγόμενο ηλεκτρικό σήμα κατόπιν οδηγείται διαδοχικά σε προενισχυτή (preamplifier), σε ενισχυτή (amplifier) διαμόρφωσης σήματος και τέλος στο κομμάτι επεξεργασίας σήματος (data processor), που περιλαμβάνει αναλογικό/ψηφιακό μετατροπέα (analog to digital converter) και πολυδιαυλικό αναλυτή (multi-channel analyzer). Παράλληλα, υπάρχει παροχή ρεύματος (power supply) υψηλής τάσης για τον κρύσταλλο και χαμηλής για τα υπόλοιπα ηλεκτρονικά, ενώ κατάλληλη διεπαφή (interface) ηλεκτρονικών επιτρέπει τον επικοινωνία με την συσκευή και τη μεταφορά δεδομένων.



Σχήμα 3.5. Σχηματικά διάγραμμα του περιβλήματος του κρυστάλλου (αριστερά) και του συστήματος των ηλεκτρονικών του ανιχνευτή ΚΑΤΕRINA (δεξιά).

3.1.3.1 Σύστημα ανίχνευσης RADAM III

Ο αισθητήρας RADAM III κατασκευάστηκε από την Νορβηγική εταιρεία OCEANOR με σκοπό την υποθαλάσσια μέτρηση ραδιενέργειας. Το σύνολο των ηλεκτρονικών είναι σχεδιαστηκά ελαχιστοποιημένο και τοποθετημένο έτσι ώστε να προσαρμόζεται ακριβώς, μέσα στο στεγανό περίβλημα αλουμινίου και πολυεστέρα (POM) του ανιχνευτή (80×600 mm), για μέγιστη ευστάθεια. Η κατανάλωση του είναι περίπου 1.5 W, η θερμοκρασία λειτουργίας κυμαίνεται από -10 έως 50 °C, ενώ η μετατόπιση ηλεκτρικής επαύζησης (gain shift) λόγω της διακύμανσης της θερμοκρασίας ρυθμίζεται αυτόματα με κύκλωμα θερμικής αντίστασης (thermistor). Οι ενέργειες ανίχνευσης είναι μεταξύ 50 - 2000 keV και διατίθενται συνολικά 512 κανάλια μνήμης. Ο ανιχνευτής συνδέεται μέσω κατάλληλου ομοαξονικού καλωδίου με το σύστημα καταγραφής και την μονάδα παροχής ισχύος ή με επαναφορτιζόμενες μπαταρίες [Tsabaris et al., 2001].

Για να προσδιοριστούν με ακρίβεια τα χαρακτηριστικά του το σύστημα βαθμονομήθηκε (calibration) εργαστηριακά για ενέργειες μέχρι 2000 keV και ελέγχθηκε ως προς την σταθερότητα του σε θερμοκρασιακές διακυμάνσεις. Οι βαθμονομήσεις ενέργειας (energy) προς κανάλι καταγραφής, διακριτικής ικανότητας (resolution) φωτοκορυφών και απόλυτης απόδοσης (absolute efficiency) καταγραφής ακτίνων-γ ανά ενέργεια πραγματοποιήθηκαν τόσο στον αέρα όσο και στο νερό [Tsabaris and Ballas, 2005]. Η βαθμονόμηση στον αέρα έγινε με πέντε σημειακές πηγές ακτινοβολίας-γ (εκπομπή 8 ακτίνων-γ σε όλο το εύρος ενεργειών ενδιαφέροντος), οι οποίες τοποθετήθηκαν σε συγκεκριμένη γεωμετρία αναφοράς (απόσταση 25 cm από το κέντρο της μπροστινής επιφάνειας του κρυστάλλου). Από την ανάλυση των πειραματικών φασμάτων προέκυψε ότι η σχετική απόδοση (relative efficiency) του συστήματος ήταν σχεδόν 100% και η ενεργειακή διακριτική ικανότητας της τάξης του 6 και 6.5% στα 661.6 και 1132.5 keV, αντίστοιχα.

Ο ανιχνευτής, ακολούθως, βαθμονομήθηκε στο νερό με χρήση διαλυτών πηγών αναφοράς ραδιονουκλιδίων και δεξαμενής βαθμονόμησης όγκου 5.5 m³. Ο ανιχνευτής τοποθετήθηκε στη μέση της δεξαμενής που γέμισε με πόσιμο νερό, αφού πρώτα έγιναν οι συνδέσεις του ανιχνευτή με το σύστημα καταγραφής και την τάση τροφοδοσίας. Η γεωμετρία αυτή διασφαλίζει ακτίνα 1m νερού γύρω από τον κρύσταλλο ανίχνευσης, απόσταση αρκετή για να προσομοιωθεί η λειτουργία του συστήματος σε ανοιχτή θάλασσα για μετρήσεις ¹³⁷Cs, λόγω της συνολικής εξασθένησης των ακτίνων-γ 661.6 keV μέσα στο νερό. Στο κάτω μέρος της δεξαμενής τοποθετήθηκε ηλεκτρική αντλία ώστε να διασφαλίζεται η συνεχής κυκλοφορία του νερού προκειμένου να γίνει ανάμειξη του νερού με τις πηγές αναφοράς, να προκύψουν ομοιογενείς συνθήκες σε όλο τον όγκο νερού κα να αποφευχθεί η καθίζηση των ραδιονουκλιδίων. Οι πηγές αναφοράς που χρησιμοποιήθηκαν ήταν το 40 K, το 137 Cs και το 99m Tc που εκπέμπουν μονοενεργειακές ακτίνες-γ στα 1460.9, 661.6 και 142.6 keV, αντίστοιχα. Αρχικά ^{99m}Τς συγκεκριμένης ενεργότητας διαλύθηκε στη δεξαμενή και καταγράφηκε πειραματικό φάσμα μέχρι την πλήρη εξασθένισή του $(T_{1/2} = 6 h) - \mu \epsilon \delta i \delta \rho \theta \omega \sigma \eta$ ραδιενεργού εξασθένισης (decay correction) ως προς την ημερομηνία αναφοράς από τον κατασκευαστή. Για το ⁴⁰K 1000 g KCl αναμείχθηκαν στη δεξαμενή και η ενεργότητα υπολογίστηκε στα 3025±55 Bq/m³ (αναλογία 0.012% ⁴⁰K στο φυσικό κάλιο). Η ομοιογένεια της διάλυσης και η σταθερότητα του συστήματος ελέγχθηκε με την καταγραφή και ανάλυση αρκετών πειραματικών φασμάτων. Στη συνέχεια υγρή πηγή ¹³⁷Cs ενεργότητας 490±25 Bq/m³, μετρημένη πειραματικά στο Ινστιτούτο Πυρηνικής Φυσικής του ΕΚΕΦΕ "Δημόκριτος", αναμείχθηκε με το προϋπάρχον διάλυμα μαζί με 65% HNO₃ 0.005 N και καταγράφηκε πειραματικό φάσμα.



Σχήμα 3.6. Το ανιχνευτικό σύστημα μέσα στη δεζαμενή βαθμονόμησης. και πειραματικά φάσματα υποβάθρου, ¹³⁷Cs και ¹³⁷Cs με ⁴⁰K.

Από τις φασματικές αναλύσεις προέκυψαν οι πειραματικές τιμές της απόλυτης απόδοσης στο νερό με σφάλμα της τάξης του 5%, με κυριότερη συνεισφορά αυτή της αβεβαιότητας της ενεργότητας των πηγών. Στις πειραματικές τιμές προσαρμόστηκε συνάρτηση υπερβολής δύο σταθερών για την εκτίμηση της ολικής απόδοσης σε μεγαλύτερο εύρος ενεργειών.



Σχήμα 3.7. Ολική απόδοση του υποθαλάσσιου ανιχνευτή RADAM III στο νερό). Η συνεχής γραμμή αναπαριστά την προσαρμογή των πειραματικών σημείων με συνάρτηση υπερβολής.

Η εφαρμογή του συστήματος στο θαλάσσιο περιβάλλον (χρόνος καταγραφής φασμάτων ανά 3 h σε βάθος πόντισης 3 m) έδωσε διακριτική ικανότητα 7-9% στα 661.6 keV λόγω των μετατοπίσεων τάσης των ηλεκτρονικών του μονάδων. Η μετατόπιση αυτή είχε σαν αποτέλεσμα την παραμόρφωση του φάσματος λόγω της μετατόπισης καναλιών (channel shifting) ενέργειας, έτσι ώστε να είναι αδύνατη η συνεχής μετρήσεις μακράς διαρκείας (monitoring). Για το λόγω αυτό πραγματοποιήθηκε περαιτέρω βελτίωση των αποτελεσμάτων με εφαρμογή και ανάπτυξη λογισμικών τεχνικών από την ομάδα Θαλάσσιας Τεχνολογίας του ΕΛ.ΚΕ.ΘΕ.

Στα πειραματικά ενεργειακά φάσματα από μετρήσεις στη θάλασσα είναι εμφανείς μια σειρά από φωτοκορυφές ραδιονουκλιδίων όπως το ⁴⁰K, ²¹⁴Bi, ²¹⁴Pb και ¹³⁷Cs. Λόγω όμως χαμηλής διακριτικής ικανότητας η απευθείας ανάλυσή των πειραματικών φασμάτων είναι σε πολλές περιπτώσεις προβληματική. Παράδειγμα αποτελεί η πιο έντονη – και συνεπώς αυτή με την καλύτερη στατιστική – κορυφή (46.1 %) του ²¹⁴Bi στα 609.3 keV που μέρος της επικαλύπτεται από την κορυφή του ¹³⁷Cs στα 661.6 keV. Το πρόβλημα της επικάλυψης φωτοκορυφών στο φάσμα αντιμετωπίστηκε με τη χρήση κατάλληλου αλγόριθμου αναδίπλωσης (unfolding) ενεργειακών κορυφών μέσω του προγράμματος SPECTRG [Kalfas, 2000]. Το πρόγραμμα πραγματοποιεί την βέλτιστη προσαρμογή πολλαπλών Gaussian κατανομών στο πειραματικό φάσμα και τον διαχωρισμό των γεγονότων στην κάθε φωτοκορυφή. Η δυνατότητα προσδιορισμού ασυμμετρίας στις κατανομές και ελέγχου της διεύρυνσης των κατανομών επιτρέπει ακόμα μεγαλύτερη βελτιστοποίηση των αποτελεσμάτων.



Σχήμα 3.8. Αναδίπλωση των φωτοκορυφών του ¹³⁷Cs(661.6 keV) και των ²¹⁴Bi (609.3 keV)+²⁰⁸Tl (583.1 keV) σε πειραματικό φάσμα 24 h με το πρόγραμμα SPECTRG.

Πέρα όμως από την διακριτική ικανότητα, περιορισμό στην ανιχνευτική ικανότητα του συστήματος αποτελεί και η έντονη συνεισφορά υποβάθρου, σε όλο το ενεργειακό εύρος, της φωτοκορυφής του ⁴⁰K λόγω της υψηλής αλατότητας της

θάλασσας. Για το λόγω αυτό, αναπτύγθηκε ο κώδικας NalFold [Vlachos and Tsabaris, 2003], που μέσω Monte Carlo προσομοίωσης παρακολουθεί την διάδοση των ακτίνας-γ κάθε μονοενεργειακού φωτονίου, λαμβάνοντας υπόψη τη γεωμετρία και τις αλληλεπιδράσεις των φωτονίων με τα άτομα του νερού, το υλικό της θωράκισης και τον κρύσταλλο του ανιχνευτή. Η ενσωμάτωση στις προηγούμενες αλληλεπιδράσεις της πειραματικής ενεργειακής κατανομής και της διακριτικής ικανότητας του ανιχνευτή με κατάλληλη εξίσωση Gaussian-διεύρυνσης (folding), του ενεργειακού επιτρέπει την αναπαραγωγή φάσματος οποιασδήποτε μονοχρωματικής ακτίνα-γ. Για γνωστή τιμή της αλατότητας του νερού μπορεί να εκτιμηθεί το ⁴⁰K και κατόπιν με την παραπάνω τεγνική μπορεί να προσομοιωθεί το αναμενόμενο ενεργειακό φάσματα. Αφαιρώντας από πειραματικά φάσματα την ισχυρή συνεισφορά του ⁴⁰K, όπως προκύπτει από τις προσομοιώσεις για τιμές αλατότητας από 36-38 psu, επιτεύθηκε μείωση του υποβάθρου μέχρι και 40 % στην ενέργεια των 661.6 keV του ¹³⁷Cs [Vlachos and Tsabaris, 2005].



Σχήμα 3.9. Πειραματικό φάσμα 3 ημερών του RADAM III στη θαλάσσια περιοχή του Άθω και προσομοιωμένο φάσμα ⁴⁰K για μέση αλατότητα 36.4 psu.

Εν κατακλείδι, το RADAM III από άποψη κατασκευής μπορεί να χρησιμοποιηθεί με αξιοπιστία για επιχειρησιακούς ωκεανογραφικούς σκοπούς, κάτω από αντίξοες καιρικές συνθήκες, ακόμα και με ισχυρά κύματα ή υψηλές θερμοκρασίες. Η απόδοση και η διακριτική του ικανότητα το καθιστούν επαρκές για σκοπούς ελέγχου ή συναγερμού, με την προϋπόθεση ότι οι φωτοκορυφές των ακτίνων-γ από τα διάφορα εμπλεκόμενα ραδιονουκλίδια δεν επικαλύπτονται. Με εφαρμογή κατάλληλων τεχνικών σταθεροποίησης του σήματος και για ενεργότητες ραδιονουκλιδίων πάνω από το όρια ανίχνευσης μπορεί να χρησιμοποιηθεί και για συνεχή καταγραφή φυσικής και τεχνητής ραδιενέργειας, ενώ το ελάχιστο όριο ανίχνευσης μπορεί περαιτέρω να μειωθεί με χρήση τεχνικών μείωσης υποβάθρου (background suppression) – από 100 σε 30 Bq/m³ ¹³⁷Cs για χρόνο μέτρησης μίας ημέρας σε θαλάσσιο περιβάλλον αλατότητας 36 psu.

3.1.3.2 Σύστημα ανίχνευσης ΚΑΤΕRINA

Το ανιχνευτικό σύστημα KATERINA είναι πρωτότυπο φασματόμετρο ακτίνων-γ που αναπτύχθηκε στο ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε (αρ. ευρεσιτεχνίας 1006066/ διεθ. ταξινόμηση G01T 7/00), με σκοπό τη μέτρηση ραδιοϊσοτόπων (φυσικών και τεχνητών) χαμηλής συγκέντρωσης στο θαλάσσιο περιβάλλον [Tsabaris et al., 2005]. Ένα στεγανό κυλινδρικό περίβλημα (85×550 mm) από ακετάλ (C₇H₁₄O₂) περικλείει το σύστημα του κρυστάλλου ανίγνευσης μαζί με τα απαραίτητα ηλεκτρονικά, κατάλληλα σχεδιασμένα ώστε να προσαρμόζονται ακριβώς μέσα στο προστατευτικό κάλυμμα του ανιχνευτή. Η επιλογή του υλικού του περιβλήματος έγινε με βάση την ανοχή του στην πίεση και την ελάχιστη απορρόφηση ακτίνων-γ λόγω της χαμηλής του πυκνότητας (0.825 gr/cm³), ενώ για τον ίδιο λόγω η απόσταση απέχει από τον κρυστάλλου-περιβλήματος είναι μόλις 1.8 mm. Στο σύστημα, πέρα από τα ηλεκτρονικά που παρουσιάστηκαν προηγουμένως (Σχήμα 3.5), έχει ενσωματωθεί ειδική μνήμη με μικροελεγκτή (micro-processor) τύπου RS232 για την αυτόνομη καταγραφή και αποθήκευση των δεδομένων, ώστε να είναι ανεξάρτητο από οποιοδήποτε σύνδεση με υπολογιστή. Ρυθμιζόμενες δε είναι η χρονική διαμόρφωση (shaping time), $\eta \delta i \delta \rho \theta \omega \sigma \eta \mu \rho \rho \phi \beta \zeta$ (pole-zero cancellation) και $\eta \alpha \pi \rho \kappa \alpha \tau \delta \sigma \tau \alpha \sigma \eta$ υποβάθρου (base-line restoration) των ηλεκτρικών παλμών για την επίτευξη υψηλών επιδόσεων του συστήματος, με ελαχιστοποίηση του νεκρού χρόνο (dead time) συλλογής δεδομένων και βελτιστοποίηση της ενεργειακής διακριτικής ικανότητας. Γενικά χαρακτηριστικά του συστήματος παρουσιάζονται και στον Πίνακα 3.3.

Τύπος αισθητήρα	3"×3" Nal(Tl)	
Ενεργειακό εύρος	Διευθετήσιμη μέγιστη και ελάχιστη	
	ενέργεια ανίχνευσης (μι	εγ. 3000 keV)
ADC	Διαδοχική προσέγγιση 1	LObit
Υψηλή τάση	Εσωτερικά ελεγχόμενη	100-1200V
Φασματοσκοπία	Διευθετήσιμα 256, 512	ή 1024 κανάλιων
Ενίσχυση	Εσωτερικά ελεγχόμενη	
	Τάση λειτουργίας	9-18V
	Μέθοδος διαμόρφωσης CR-(RC)2	
	Χρόνος διαμόρφωση	590ns – 7µs
	Είσοδος	μονοπολική (-/+)
	Είσοδος αντίστασης	50Ω / 93Ω
	Απολαβή	10 - 100db
Νεκρός χρόνος	< 0.5% στο υδάτινο περ	ιβάλλον
Ενεργειακή διακριτική ικανότητα (140.5 keV)	10 %	
Ενεργειακή διακριτική ικανότητα (661.6 keV)	6.5 %	
Θερμοκρασία λειτουργίας	-5°C έως +50°C	
Κατανάλωση	1.2-1.4W	
Έξοδος	ημερομηνία, cps, φάσμ	α, νεκρός χρόνος
Προστατευτικό κάλυμμα	σχήμα: κύλινδρος, υλικα	ó: acetal

Πίνακας 3.3. Τεχνικά	γαρακτηριστικά του	ανιχνευτικού συστή	ματος ΚΑΤΕRINA.

Το σύστημα βαθμονομήθηκε στο εργαστήριο ως προς την ενέργεια, την ενεργειακή του διακριτική ικανότητα και την απόλυτη απόδοση, με 7 σημειακές πηγές αναφοράς σε απόσταση 31.1 cm, που καλύπτουν το ενεργειακό εύρος λειτουργίας [Tsabaris et al., 2008]. Με την κατάλληλη προσαρμογή γνωστών από την βιβλιογραφία συναρτήσεων κατέστη δυνατός ο υπολογισμός των παραπάνω μεγεθών για οποιαδήποτε ενέργεια, ενώ διαπιστώθηκε πειραματικά ότι η βαθμονόμηση της ενέργειας και της διακριτικής ικανότητας δεν επηρεάζεται ούτε από την επένδυση με acetal ούτε από την πόντιση στο νερό. Αντίθετα η απόδοση του συστήματος μειώνεται δραστικά στο νερό λόγω της ενδοαπορρόφησης (self-absorption)¹ των φωτονίων μέσα σε αυτό. Η απόσταση που διανύει ένα φωτόνιο μέσα στο νερό έως ότου απορροφηθεί τελείως από αυτό εξαρτάται από την ενέργειά του. Υποθέτοντας σφαιρική συμμετρία μέσα στο νερό, ορίζεται ο ενεργός όγκος (effective volume) φωτονίου ενέργειας *E* ως ο όγκος μέσα στον οποίο μπορεί να ανιχνευθεί το φωτόνιο αυτό από την σχέση:

$$V_{eff}(E) = \frac{4\pi}{3} \left(\frac{\ln 2}{\mu(E)}\right)^3, \ \mu(E) = 0.03475 + 0.09248e^{-\frac{E}{1.06952}} + 0.09653e^{-\frac{E}{0.1529}}$$
(3.1)

όπου $V_{e\!f\!f}$ ο ενεργός όγκος σε m³ και η μ ο ολικός συντελεστής ενδοαπορρόφησης στο νερό σε cm⁻¹.

Είναι προφανές ότι όταν ένα φωτόνιο συγκεκριμένης ενέργειας βρίσκεται έξω από τον ενεργό όγκο, που αντιστοιχεί σε αυτή την ενέργεια τότε η πιθανότητα να φτάσει στον ανιχνευτή είναι μηδαμινή. Με βάση την παραπάνω σχέση και δεδομένου ότι η απόλυτη ενεργότητα (σε Bq) ενός ραδιονουκλιδίου διαλυμένου στο νερό εξαρτάται και από τον όγκο του διαλύματος που ανιχνεύεται, ορίζεται η υδάτινη απόδοση (marine efficiency) $ε_m$ του ανιχνευτή ως:

$$\varepsilon_m(\mathbf{E}) = \varepsilon \cdot V_{eff}(\mathbf{E}) \tag{3.2}$$

όπου ε_m η υδάτινη απόλυτη απόδοση σε m³ και ε η απόλυτη απόδοση του ανιχνευτή στην συγκεκριμένη 4π γεωμετρία ανίχνευσης [Bagatelas et al., 2010].

Το σύστημα ΚΑΤΕRINA βαθμονομήθηκε πειραματικά για την απόδοσή του στο νερό με χρήση 4 ραδιονουκλιδίων με την διαδικασία που περιγράφηκε και προηγουμένως (Παρ. 3.1.3.1), ενώ πραγματοποιήθηκαν και προσομοιώσεις με κώδικα Monte Carlo GEANT4 [GEANT4, 2003] για προσδιορισμό της απόδοσης σε όλο το εύρος ενεργειών που λειτουργεί ο ανιχνευτής. Από τα πειραματικά και θεωρητικά δεδομένα προκύπτει η καμπύλη απόδοσης του ανιχνευτή στη νερό, με προσαρμογή κατάλληλης εμπειρικής συνάρτησης.

¹ Ο όρος ενδοαπορρόφηση αναφέρεται στη εξασθένιση (attenuation) των ακτίνων-γ μέσα σε ένα υλικό όταν το υλικό αυτό είναι παράλληλα και η πηγή εκπομπής τους.

Από 24 h φάσματα υποβάθρου, η ελάχιστη ανιχνεύσιμη ενεργότητα στο γλυκό νερό υπολογίστηκε στα 50 Bq/m³ για το ¹³⁷Cs και το ²⁰⁸Tl, 100 Bq/m³ για το ²¹⁴Bι και το ²¹⁴Pb, 140 Bq/m³ για το ²²⁸Ac και 350 Bq/m³ για το ⁴⁰K. Οι τιμές αυτές στη θάλασσα παρουσιάζονται αυξημένες ανάλογα την αλατότητα (έως και 3 φορές μεγαλύτερες για το ¹³⁷Cs), λόγω του υποβάθρου που εισάγει στο φάσμα το συνεχές-Compton (Compton continuum) της φωτοκορυφής του ⁴⁰K στα 1460.9 keV – με εξαίρεση το ²⁰⁸Tl που υπολογίζεται στα 2614.5 keV.



Σχήμα 3.10. Βαθμονομήσεις του ανιχνευτικού συστήματος ΚΑΤΕRINA.Η ενεργειακή διακριτική ικανότητα (πάνω) και η απόδοση όγκου του ανιχνευτικού συστήματος στο νερό(κάτω), πειραματικών και προσομοιωμένων δεδομένων με καμπύλες προσαρμογής.



Σχήμα 3.11. Πειραματικά φάσματα του ανιχνευτή ΚΑΤΕRINA 12 h στη θάλασσα.

Συνοψίζοντας τις κυριότερα χαρακτηρίστηκα του, το σύστημα ΚΑΤΕΡΙΝΑ παρέχει (α) δυνατότητα συνεχούς καταγραφής σε βάθη μέχρι 400 m, (β) σύστημα μετάδοσης δεδομένων σε πραγματικό χρόνο, (γ) 5 y χρόνο ζωής περιβλήματος για συνεχή λειτουργία και (δ) επιλογή υλικού περιβλήματος με κριτήριο την ελάχιστη απορρόφηση ακτινοβολίας ακτίνων-γ. Τα πλεονεκτήματα του νέου συστήματος είναι (α) η αυτονομία τροφοδοσίας και υπολογιστικών συστημάτων, (β) η βελτιωμένη διακριτική ικανότητα και (γ) το μεγαλύτερο ενεργειακό εύρος. Πρέπει τέλος να σημειωθεί ότι πρόσφατη παραλλαγή του συστήματος καθιστά δυνατή την πόντισή του σε πολύ μεγάλα βάθη έως και στα 4500 m [Tsabaris, 2013].

3.2 Χαρακτηρισμός ιζήματος

Το επόμενο βήμα μετά τις δειγματοληψίες ιζήματος είναι η κατάλληλη επεξεργασία τους και οι επακόλουθες εργαστηριακές μετρήσεις. Η προετοιμασία των δειγμάτων, η δειγματοποίηση και οι μετρήσεις που αφορούν στο χαρακτηρισμό των ιζημάτων πραγματοποιήθηκαν στο εργαστήριο Ιζηματολογίας του ΕΛ.ΚΕ.ΘΕ και περιλαμβάνουν τον προσδιορισμό βασικών φυσικών παραμέτρων, της κοκκομετρίας, της περιεκτικότητας σε οργανικό άνθρακα και σε βαρέα μέταλλα.

Στην περίπτωση των επιφανειακών δειγμάτων, η ποσότητα του δείγματος που συλλέγεται στο πεδίο είναι συνήθως υπεραρκετή για όλες τις αναλύσεις – περίπου 200 gr ή μικρότερη όταν η δειγματοληψία πραγματοποιείται από δύτη. Η ποσότητα αυτή μεταφέρετε με κατάλληλα δοχεία στο εργαστήριο ώστε να παραμείνουν

αναλλοίωτα τα κύρια γαρακτηριστικά του ιζήματος (πορώδες, πυκνότητα κλπ) και κατόπιν για κάθε μία από τις παραπάνω αναλύσεις επιλέγεται ορισμένη ποσότητα. Στην περίπτωση των πυρήνων ιζήματος πραγματοποιείται διάνοιξη με κατάλληλα κοπτικά εργαλεία για τον σωλήνα και με σκληρό νήμα για το ίζημα ώστε να μην υπάρχουν, όσο το δυνατόν, απώλειες σε νερό και ανάμειξη των επιμέρους στρωμάτων. Από τις δύο κατακόρυφες διατομές που προκύπτουν, πραγματοποιείται αρχικά οπτικός γεωλογικός χαρακτηρισμός (διαστρωματώσεις, χρώμα, υφή κτλ) και συλλέγονται εγκάρσια τμήματα κατά μήκος τους πάχους 1 ή 2 cm, συνήθως, ανάλογα τις απαιτήσεις σε κατακόρυφη διακριτική ικανότητα και την ποσότητα δείγματος που απαιτείται για αυτές. Επειδή η ποσότητα για κάθε σημείο δειγματοληψίας πυρήνα είναι περιορισμένη (<100 gr), οι μετρήσεις πραγματοποιούνται αλλεπάλληλα με τελευταίες αυτές που απαιτούν καταστροφική δειγματοποίηση. Σε όλες τις παραπάνω διαδικασίες αλλά και σε κάθε άλλη που ακολουθεί και περιλαμβάνει συλλογή, μεταφορά, αποθήκευση και επεξεργασία ιζήματος τα όργανα που χρησιμοποιούνται (πετρί, δοχεία, γουδί, λαβίδες κτλ) ξεπλένονται με απιονισμένο νερό και στεγνώνουν κατά την επαναχρησιμοποίηση τους στο επόμενο δείγμα να μην έτσι ώστε αλλοιώσουν τα χαρακτηριστικά του.

3.2.1 Φυσικές παράμετροι

Οι κύριες φυσικές παράμετροι που προσδιορίζονται πρώτοι σε οποιοδήποτε δείγμα ιζήματος, είτε επιφανειακό είτε πυρήνα, αφορούν στην ποσόστωση νερού (water content), στην πυκνότητα (density) και το πορώδες (porosity) του ιζήματος. Ο προσδιορισμός των παραμέτρων αυτών δίνει πληροφορίες για την προέλευση του ιζήματος, χαρακτηρίζει μια δεδομένη περιοχή και αποτελούν κριτήριο ώστε να ερμηνευθούν σωστά τα αποτελέσματα των υπολοίπων μετρήσεων που αναφέρονται σε συγκεντρώσεις στοιχείων.

Η διαδικασία επεξεργασίας των δειγμάτων περιλαμβάνει τα εξής βήματα:

1. Κοσκίνισμα του δείγματος και απομάκρυνση των μη χρήσιμων στοιχείων με κόκκο διαμέτρου μεγαλύτερης των 2 mm (πέτρες, κοχύλια κτλ).

2. Μέτρηση της μάζας του εναπομείναντος δείγματος.

3. Μέτρηση της πυκνότητας του με χρήση ογκομετρικής φιάλης.

4. Αποξήρανση ποσότητας δείγματος (~ 60 g). Το δείγμα παραμένει σε κλίβανο στους 70 °C. Τυπικός χρόνος αποξήρανσης ενός δείγματος ιζήματος είναι περίπου 2 ημέρες. Ο χρόνος αυτός εξαρτάται από την κοκκομετρία του ιζήματος, την ποσότητα νερού που περιέχεται σε αυτό και τη θερμοκρασία του φούρνου.

5. Μέτρηση της τελικής στεγνής μάζας του αφυδατωμένου ιζήματος. Ο προσδιορισμός της τελικής μάζας στεγνού ιζήματος επιτυγχάνεται μέσω επαναλαμβανόμενων μετρήσεων της μάζας του δείγματος. Το δείγμα εξάγεται από το φούρνο προσδιορίζεται η μάζα του και επανεισάγεται σε αυτόν.

6. Μέτρηση της πυκνότητας του στεγνού δείγματος με χρήση ογκομετρικής φιάλης.

Η ποσοστιαία περιεκτικότητα σε νερό στο δείγμα w.c. ιζήματος (σε % ποσοστό) προσδιορίζεται από τον λόγω:

w.c. =
$$\frac{m_w}{m} = \frac{(m - m_d)}{m}$$
 (3.3)

όπου m_w η μάζα του νερού στο δείγμα, m η συνολική μάζα του αρχικού μη αφυδατωμένου δείγματος και m_d η τελική μάζα του αποξηραμένου δείγματος

ενώ η πυκνότητα (σε g/cm³) τόσο του αρχικού (υγρού) ρ_w , όσο και του τελικού (στεγνού) ρ_d ιζήματος προσδιορίζεται από τον λόγω της καθαρής (net) μετρούμενης μάζας του δείγματος προς τον όγκο στο δοχείο τοποθέτησης του, πριν και μετά την αποξύρανση αντίστοιχα.

Το πορώδες ϕ είναι το μέτρο του κενού διαστήματος μεταξύ των κόκκων του στερεού υλικού και ισούται με το κλάσμα του όγκου των κενών προς τον συνολικού όγκου του δείγματος (τιμές μεταξύ 0 και 1). Πρακτικά υπολογίζεται από την σχέση:

$$\phi = \frac{V_v}{V} = 1 - \frac{\rho_b}{\rho_p} \tag{3.4}$$

όπου V_V ο όγκος του νερού στο δείγμα, V ο συνολικός όγκος του αρχικού μη αφυδατωμένου δείγματος, ρ_b η πυκνότητα του αποξηραμένου δείγματος και ρ_p η σωματιδιακή πυκνότητα που στην περίπτωση των συνηθισμένων κορεσμένων ιζημάτων έχει προσεγγιστικά την τιμή 2.65 cm³, αν και για τον ακριβή προσδιορισμό της απαιτείται λιθολογική εξέταση των σωματιδίων του δείγματος.

3.2.2 Κοκκομετρία

Στην συνέχεια των ιζηματολογικών μετρήσεων, μετά τον προσδιορισμό των φυσικών παραμέτρων, είναι ο υπολογισμός μεγέθους των κόκκων των δειγμάτων. Το μέγεθος του κόκκου από το οποίο αποτελείται ένα υπό μελέτη ίζημα είναι η πιο θεμελιώδης φυσική ιδιότητα του. Οι γεωλόγοι και οι ιζηματολόγοι χρησιμοποιούν αυτήν την πληροφορία για τη μελέτη των επιφανειακών διεργασιών που σχετίζονται με τις δυναμικές συνθήκες μεταφοράς και απόθεσης, οι μηχανικοί για τη μελέτη της διαπερατότητας και της μηχανικής σταθερότητα, οι γεωχημικοί για να μελετήσουν τις κινητικές αντιδράσεις και τη συσχέτιση λεπτόκοκκων σωματιδίων και μολυντών και οι υδρογεωλόγοι για τη μελέτη της κίνησης των ρευστών στο υπέδαφος [McCave and Syvitski, 1991].

Η ανάλυση του μέγεθος του κόκκου ή κοκκομετρία (granulometry) ενός δείγματος ιζήματος έχει ως στόχο να προσδιοριστούν με ακρίβεια τα επιμέρους σωματιδιακά μεγέθη που το αποτελούν, να καθοριστεί η κατανομή της συχνότητάς εμφάνισής τους και να υπολογιστεί μια στατιστική περιγραφή που χαρακτηρίζει

επαρκώς το δείγμα. Το μέγεθος του κόκκου αναφέρεται στη διάμετρο των μεμονωμένων κόκκων του ιζήματος. Στα θαλάσσια ιζήματα οι τιμές αυτές τυπικά ποικίλλουν σε μέγεθος από λίγα μικρόμετρα σε μερικά χιλιοστά. Για την περιγραφή της ποικιλίας κόκκων ορισμένης διαμέτρου χρησιμοποιούνται κλάσεις μεγέθους των διαμέτρων μέσω ειδικών ιζηματολογικών κλιμάκων, όπως η διευρυμένη κλίμακα Wentworth [Wentworth, 1922].

Κλάση	Κοκκομετρική τάξη	Διάμετρος Κόκκων (mm)
Ψηφίτες (gravel)	Ογκόλιθοι (boulders)	256-1024
	Κροκάλες (cobbles)	64-256
	Βότσαλα (pebbles)	4-64
	Ψηφίδες (granules)	1-4
Άμμος (sand)	Χοντρή άμμος (coarse sand)	0.5-1
	Μέση άμμος (medium sand)	0.25-0.5
	Ψιλή άμμος (fine sand)	0.13-0.25
	Πολύ ψιλή άμμος (very fine sand)	0.0625-0.13
lλύς (mud)	Πηλός (silt)	0.002-0.0625
	Άργιλος (clay)	< 0.002

Πίνακας 3.4. Διευρυμένη κλίμακα Wentworth του μέγεθος των κόκκων του ιζήματος

Ο εξοπλισμός και οι τεχνικές που χρησιμοποιείται για την κοκκομετρική ανάλυση πρέπει να είναι τέτοιες ώστε τα αποτελέσματα να προκύπτουν γρήγορα, να είναι ακριβή και να παρουσιάζουν επαναληψιμότητα. Η ακρίβεια των μετρήσεων καθορίζεται από τον τρόπο δειγματοληψίας, τις συνθήκες αποθήκευσης, τις αναλυτικές μεθόδους, τον εξοπλισμό και κυρίως την ικανότητα του πειραματιστή. Όπως και με τις περισσότερες ιζηματολογικές αναλύσεις, δεν υπάρχει απόλυτη ή ιδανική διαδικασία για όλα τα είδη δειγμάτων και ως εκ τούτου έχουν αναπτυχθεί πολλές διαφορετικές τεχνικές για αυτό τον σκοπό. Σε γενικές γραμμές, η μέθοδος ανάλυσης του μεγέθους των σωματιδίων πραγματοποιείται χρησιμοποιώντας κυρίως δύο τεχνικές: (α) την τεχνική κοσκινίσματος συνήθως για το κλάσμα κόκκου >2 mm και (β) την τεχνική περίθλασης με λέιζερ για το κλάσμα κόκκου <2 mm. Τα ιζήματα που πειραιστο μεγέσματα τους ενσωματώνονται.

Η μέθοδος του κοκκοδιαχωρισμού που εφαρμόστηκε συνεχίζει με την ανάλυση ποσότητας αποξηραμένων δειγμάτων (3-5 gr). Αρχικά, για κλάσμα κόκκου μεγαλύτερο από 63 μm, διακρίνει δύο περιπτώσεις για τον διαχωρισμό σε ιλύς, άμμο και ψηφίτες:

 Στην περίπτωση όπου το δείγμα είναι αμμώδες (χοντρόκοκκο ίζημα όπου οι κόκκοι φαίνονται καθαρά διαχωρισμένοι) επιλέγεται η μέθοδος του ζηρού διαχωρισμού (dry separation) χωρίζεται το δείγμα σε τρείς κλάσεις (>2 mm, 2 mm – 63 μm, <63 μm) χρησιμοποιώντας κόσκινα δύο διαφορετικών διαμέτρων (2 mm και 63μm) και προσδιορίζεται η ποσότητα δείγματος από κάθε κόσκινο με ζυγό ακριβείας. 2. Στην περίπτωση όπου το δείγμα είναι λασπώδες (λεπτόκοκκο ίζημα όπου οι κόκκοι του εμφανίζονται σαν συσσωματώματα) είναι απαραίτητος ο υγρός διαχωρισμός (wet separation) των κόκκων. Σε αυτήν την περίπτωση το αποξηραμένο δείγμα τοποθετείται σε ποτήρι ζέσεως (50 ml) και προστίθενται 20 ml Calgon (περιεκτικότητας 5.5 gr/l) για την αποκόλληση των κόκκων, αναδεύεται ήπια και ηρεμεί σε συνθήκες περιβάλλοντος για 24 h. Κατόπιν, το υγρό δείγμα διαχωρίζεται με κόσκινα (διαμέτρου 63 και 2 mm) και η ποσότητα δείγματος που παρέμεινε σε κάθε ένα από αυτά μετά από το διαχωρισμό, ξεπλένεται με απιονισμένο νερό, συγκεντρώνεται σε καθαρό ποτήρι ζέσεως, τοποθετείται στον κλίβανο (για 24 h στους 60 °C) και ζυγίζεται σε ζυγό ακριβείας.



Σχήμα 3.12. Συσκευή δόνησης κοσκινίσματος με επαλληλία κόσκινων (αριστερά) και η συσκευή κοκκομετρίας μέσω περίθλασης με λέιζερ (δεζιά).

Κατόπιν, στο προϊόν του διαχωρισμού του ιλυώδους κλάσματος κόκκου, κάτω από τα 63 μm, εφαρμόζεται η τεχνική ανάλυσης με περίθλαση ακτίνων-Χ για τον προσδιορισμό της κατανομής στα μικρότερα κλάσματα κόκκου (άργιλος και πηλός). Η ανάλυση των δειγμάτων ως προς το ποσοστό τους σε άργιλο και έγινε με τον ανιχνευτή SEDIGRAPH. Η αρχή λειτουργίας του βασίζεται σε δύο φυσικά φαινόμενα: (α) το νόμο της βαρύτητας των ιζημάτων που καθιζάνουν μέσα σε υγρό και (β) στο νόμο εξασθένησης των ακτίνων-Χ μέσα σε διάλυμα σωματιδίων.

Συγκεκριμένα, η βαρυτική ιζηματαπόθεση σωματιδίων είναι συνάρτηση της διαμέτρου τους καθώς, με βάση το νόμο του Stokes, η τελική ταχύτητα καθόδου σφαιρικών σωματιδίων μέσα σε ένα υγρό είναι συνάρτηση της διαμέτρου τους, υπό την προϋπόθεση ότι τα σωματίδια καθιζάνουν με στρωτή ροή και δεν δημιουργείται τυρβώδης κίνηση του υγρού που μειώνει την ταχύτητα καταβύθισης των σωματιδίων. Η συνθήκη αυτή επιτυγχάνεται αυτόματα από το SEDIGRAPH καθώς λαμβάνοντας υπόψη την πυκνότητα του δείγματος επιλέγει το κατάλληλο διαθέσιμο υγρό για την ανάλυση, με επιθυμητή πυκνότητα και ιξώδες. Έτσι, μετρώντας το χρόνο που χρειάζεται για την καταβύθιση των σωματιδίων σε ένα συγκεκριμένο βάθος μπορεί να προσδιοριστεί η ταχύτητά καταβύθισης και ως εκ τούτου η διάμετρός τους.

Επειδή όμως στα δείγματα ενυπάρχουν πολλά κλάσματα ιζήματος διαφορετικής διαμέτρου, χρησιμοποιείται δέσμη ακτίνων-Χ ευθυγραμμισμένη μέσα από μια λεπτή οριζόντια κυψελίδα όπου προσδιορίζει κατευθείαν τη συγκέντρωση της μάζας των

σωματιδίων στο υγρό μέσο. Αυτό πραγματοποιείται μετρώντας την εξασθένηση της έντασης της δέσμης ακτίνων-Χ, από τα στερεά σωματίδια μέσα στο δείγμα που καθιζάνει σε ένα σημείο αναφορά συγκεκριμένου βάθους. Κατά τη διάρκεια της ιζηματολογικής ανάλυσης πρώτα βυθίζονται κάτω από τη ζώνη μέτρησης τα σωματίδια μεγάλου μεγέθους και στη συνέχεια βυθίζονται και τα υπόλοιπα με ταχύτητες ανάλογες του μεγέθους τους. Όσο περισσότερα από τα χονδρόκοκκα βυθίζονται κάτω από τη ζώνη μέτρησης και δεν αντικαθίστανται από του ίδιου μεγέθους σωματίδια που καθιζάνουν από πάνω, η εξασθένηση της δέσμης των ακτίνων-Χ μειώνεται. Με αυτό τον τρόπο επιτυγχάνεται και ποσοτικός διαχωρισμός των κλασμάτων του ιζήματος (αλλαγή μετρούμενης έντασης δέσμης) και η ταχύτητα των κόκκων (άρα και η διάμετρος) με βάση το χρόνο που χρειάστηκε για να καθιζάνουν στο βάθος αναφοράς [Καββαδία, 2007].

Η μετρητική διαδικασία για μια ομάδα δειγμάτων (μέχρι 20) περιλαμβάνει τα ακόλουθα βήματα:

1. Τοποθέτηση των γυάλινων δοχείων με τα αποξηραμένα λεπτόκοκκα δείγματα στον περιστρεφόμενο δίσκο της συσκευής ανίχνευσης και προγραμματισμός του λογισμικού λειτουργίας με εισαγωγή των στοιχείων των δειγμάτων (βάρος κλάσματος, όνομα δείγματος και θέση στο δίσκο) που θα αναλυθούν, το ένα κατόπιν του άλλου.

2. Ανάδευση του δείγματος με τη βοήθεια υπερήχων.

3. Μεταφορά δείγματος στον υποδοχέα του ανιχνευτή και αυτόματη εισαγωγή του στη κυψελίδα του θαλάμου ακτίνων-Χ. Σε αυτό το στάδιο είναι απαραίτητος και ο έλεγχος των δειγμάτων για τυχόν ύπαρξη φυσαλίδων.

4. Ανάλυση 12 min για κάθε δείγμα και μετά την ολοκλήρωση της διαδικασίας, εκτύπωση των αποτελεσμάτων σε αναλυτική μορφή και διαγράμματα καμπύλων κοκκομετρίας.

5. Αυτόματος καθαρισμός των σωληνώσεων και των θαλάμων του ανιχνευτή με διάλυμα Calgon πριν την επόμενη ανάλυση.

Εφόσον έχει προσδιοριστεί με τους παραπάνω τρόπους το ποσοστό των διαφορετικών κλάσεων κόκκου στο ίζημα, τα δείγματα μπορούν να ταξινομηθούν με βάση τα συστατικά μέρη τους σε τύπους ιζημάτων και να καθοριστεί η υφή (texture) τους. Αυτή η κατάταξη διευκολύνει στην περιγραφή και τη σύγκριση των ιζημάτων με βάση την σχετική αναλογία του μεγέθους των κόκκων σε ένα ίζημα. Η ονοματολογία που χρησιμοποιείται ευρέως προέρχεται από το σύστημα ταξινόμησης που πρότεινε ο Folk [Folk, 1954] και κατατάσσει το ίζημα μεταξύ των κλάσεων ιλύς, άμμου και ψηφίτη (χαλίκι).

Υφή /Texture	Συμβολισμός	Ορισμός/Περιγραφή
Άργιλος (Clay)	С	άργιλος:πηλός αναλογία >2:1 και άργιλος+πηλός >90%, άμμος <10%, ψηφίτες <2%
Ιλύς (Mud)	Μ	άργιλος:πηλός αναλογία από 1:2 μέχρι 2:1 και άργιλος+πηλός >90%, άμμος <10%, ψηφίτες <2%
Αμμώδης άργιλος (Sandy clay)	sC	άργιλος:πηλός αναλογία >2:1 και άργιλος+πηλός >50%, άμμος <50%, ψηφίτες <2%
Αμμώδης ιλύς (Sandy mud)	sM	άργιλος:πηλός αναλογία από 1:2 μέχρι 2:1 και άργιλος+πηλός >50%, άμμος <50%, ψηφίτες <2%
Πηλός (Silt)	Z	άργιλος:πηλός αναλογία <1:2 και άργιλος+πηλός >90%, άμμος <10%, ψηφίτες <2%
Αμμώδης πηλός (Sandy silt)	sZ	πηλός:άργιλος >2:1 και άργιλος+πηλός >50%, άμμος <50%, ψηφίτες <2%
Αργιλώδης άμμος (Clayey sand)	cS	άμμος >50%, άργιλος:πηλός αναλογία >2:1 και άργιλος+πηλός <50%, ψηφίτες <2%
Ιλώδης άμμος (Muddy sand)	mS	άμμος >50%, άργιλος:πηλός αναλογία από 1:2 μέχρι 2:1 and άργιλος+πηλός <50%, ψηφίτες <2%
Πηλώδης άμμος (Silty sand)	zS	άμμος >50%, πηλός:άργιλος αναλογία >2:1 και άργιλος+πηλός <50%, ψηφίτες <2%
Άμμος (Sand)	S	άμμος >90%, άργιλος+πηλός <10%, ψηφίτες <2%
Ψηφιτωιδής ιλύς (Gravelly mud)	gM	άμμος:πηλός+άργιλος αναλογία <1:9, ψηφίτες 2-30%
Ψηφιτωιδής αμμώδης ιλύς (Gravelly sandy mud)	gsM	άμμος:πηλός+άργιλος αναλογία από 1:9 μέχρι 1:1, ψηφίτες 2-30%
Ψηφιτωιδής ιλώδης άμμος (Gravelly muddy sand)	gmS	άμμος:πηλός+άργιλος αναλογία από 1:1 μέχρι 9:1, ψηφίτες 2-30%
Ψηφιτωιδής άμμος (Gravelly sand)	gS	άμμος:πηλός+άργιλος αναλογία >9:1, ψηφίτες 2-30%
Ιλώδης ψηφίτες (Muddy gravel)	mG	ψηφίτες 30-80%, άμμος:πηλός+άργιλος αναλογία <1:1
Ιλώδης αμμώδης ψηφίτες (Muddy sandy gravel)	msG	ψηφίτες 30-80%, άμμος:πηλός+άργιλος αναλογία από 1:1 μέχρι 9:1
Αμμώδης ψηφίτες (Sandy gravel)	sG	ψηφίτες 30-80%, άμμος:πηλός+άργιλος αναλογία >9:1
Ψηφίτες (Gravel)	G	ψηφίτες >80%

Πίνακας 3.5.	Χαρακτηρισμός	υφής ιζημάτων	σύμφωνα με την	, ταξινόμηση κατά Folk.
--------------	---------------	---------------	----------------	-------------------------

Η σχετική αναλογία των κόκκων στις τρείς κατηγορίες στη συνέχεια χρησιμοποιείται για να περιγράψει το ίζημα ανάλογα με την θέση που εμφανίζεται σε ένα διάγραμμα κοινώς ονομαζόμενο ως "τρίγωνο Folk". Εναλλακτικά, για λεπτόκκοκα ιζήματα συχνά χρησιμοποιείται και το αντίστοιχο τριγωνικό διάγραμμα κατάταξης μεταξύ αργίλου, πυλού και άμμου [Folk, 1974].



Σχήμα 3.13. Σύστημα κατάταξης ιζημάτων κατά Folk.

Παράλληλα, με τις παραπάνω ποσοστιαίες αναλύσεις μπορεί να προσδιοριστεί το μέσο μέγεθος κόκκου (mean grain size) και η κοκκομετρική καμπύλη (galunometric curve) του ιζήματος που μέσω των χαρακτηριστικών της (κυρτότητα, καμπύλωση, συντελεστής ομοιομορφίας κ.ά.) παρέχει χρήσιμες ιζηματολογικές πληροφορίες, που όμως υπερβαίνουν το αντικείμενο της παρούσας έρευνας.

3.2.3 Οργανικός άνθρακας

Δεδομένου ότι τα οργανικά υπολείμματα των φυτών και των ζωικών οργανισμών παρουσιάζουν υψηλή προσρόφηση οργανικών μικρορύπων και βαρέων μέταλλων, η συνολική περιεκτικότητα σε οργανική ύλη στο ίζημα είναι συχνά χρήσιμο να προσδιορίζεται. Το ποσοστό οργανικής ύλης, δηλαδή του *οργανικού* άνθρακα (organic carbon), σε δείγματα ιζήματος για μετρήσεις ρουτίνας προσδιορίζεται εύκολα από την απώλεια βάρους μετά από 6 ώρες θέρμανσης στους 360° C [Kralik, 1999]. Άλλες αναλυτικές τεχνικές που χρησιμοποιούνται ευρέως για τον σκοπό αυτό είναι η υγρή οξείδωση και διάφοροι μέθοδοι μέτρησης του συνολικού άνθρακα (TOC) και αντιστοίχησής του στον οργανικό.

Στη παρούσα εργασία εφαρμόστηκε η εργαστηριακή μέθοδος των Walkey – Black [Walkey and Black, 1934]. Αναλυτικά, για τον προσδιορισμό του ποσοστού οργανικού άνθρακα στο ίζημα χρησιμοποιείται μικρή ποσότητα αρχικού ιζήματος (~3 g) από την δειγματοληψία, που εν συνεχεία υποβάλλεται σε ψυχρή ξήρανση σε ξηραντήρα, κατόπιν σε χειρονακτική κονιοποίηση με γουδί από πορσελάνη και φύλαξη σε φιαλίδια σπινθηρισμού (scintillation vials). Η μέθοδος που χρησιμοποιείται περιλαμβάνει την ομογενοποίηση του δείγματος με ανάδευση και την περαιτέρω ξήρανσή του. Επιλέγεται ακριβής ποσότητα 0.3 g με χρήση ζυγού ακριβείας και τοποθετείται σε κωνική φιάλη στην οποία προστίθενται 10 mL K₂Cr₂O₇ και 20 mL H₂SO₄ και μετά την πάροδο 30 min στο διάλυμα προστίθενται 0.2g NaF, 10mL H₃PO₄ και 15 σταγόνες DPA (δείκτης διφαινυλαμίνης). Η τιτλοδότηση γίνεται με προσθήκη με προχοϊδα ακριβείας 0.05mL NH₄Fe(SO)₄, ενώ κατά τακτά διαστήματα (κάθε 5 δείγματα) τιτλοδοτείται και πρότυπο (τυφλό) δείγμα. Το ποσοστό περιεχόμενου οργανικού άνθρακα C_{Org} στο δείγμα (σε % ποσοστό) δίνεται από τη σχέση:

$$C_{\text{Org.}} = \frac{3 \cdot \left(1 - \frac{Vs}{Vt}\right)}{m} \tag{3.5}$$

όπου V_s είναι ο όγκος από την τιτλοδότηση του δείγματος, V_t είναι ο μέσος όρος των όγκων των τιτλοδοτήσεων των προτύπων και *m* η μάζα του δείγματος.

3.2.4 Βαρέα μέταλλα

Για τον προσδιορισμό της σύστασης δειγμάτων ιζήματος μια σειρά από καταστρεπτικές ή μη καταστρεπτικές τεχνικές είναι διαθέσιμες, ανάλογα το όριο ανίχνευσης, την ακρίβεια, το πλήθος των μετρούμενων στοιχείων, αλλά και την ταγύτητα και το κόστος των αποτελεσμάτων. Στις κυριότερες καταστροφικές αναλυτικές τεχνικές προσδιορισμού των συγκεντρώσεων των ιχνοστοιχείων στα ιζήματα περιλαμβάνονται οι πανοραμικές τεχνικές όπως η φασματομετρία οπτικής εκπομπής (Inductively Coupled Plasma Optical Emission Spectrometry, ICP-OES) η φασματομετρία μάζας (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, ICP-MS) επαγωγικά συζευγμένου πλάσματος και τεχνικές ανίχνευσης ενός στοιχείου, όπως η φασματοφωτομετρία ατομικής απορρόφησης (Atomic Absorption Spectrometry, AAS). Μερικές φορές χρησιμοποιούνται ηλεκτροχημικές μεθόδοι, φασματομετρία μάζας αραίωσης ισοτόπων, φθορισμομετρικές και φασματοφωτομετρικές μεθόδοι, που και πάλι οι τεγνικές προετοιμασίας του δείγματος είναι ίδιες με πριν. Παράλληλα υπάρχει μεγάλη ποικιλία από τεχνικές αναλυτικής χημείας για την πλήρη διάλυση των γεωλογικών δειγμάτων όπως τα ιζήματα, ενώ σύγχρονες μέθοδοι που βασίζονται σε διατάξεις μικροκυμάτων επιτυγγάνουν συνθήκες αυξημένης θερμοκρασίας και πίεσης για την επιτάχυνση της διαδικασίας της διάλυσης. Οι κύριες μη καταστροφική αναλυτικές τεχνικές που εφαρμόζονται σε δείγματα ιζημάτων για τον προσδιορισμό της στοιχειακής σύνθεσής τους είναι η ανάλυση εργαστηριακής νετρονικής ενεργοποίησης (Instrumental Neutron Activation Analysis, INAA), η ανάλυση ιοντικής δέσμης (Ion Beam Analysis, IBA), η οποία περιλαμβάνει την σωματιδιακά επαγόμενη εκπομπή ακτίνων-X (Particle Induced X-ray Emission, PIXE), την ανάλυση πυρηνικής $\alpha v \tau i \delta \rho \alpha \sigma \eta \varsigma$ (Nuclear Reaction Analysis, NRA) και την φασματομετρία οπισθοσκέδασης Rutherford (Rutherford Backscattering Spectrometry, RBS), καθώς και την ανάλυση φθορισμού ακτίνων-X (X-ray Fluorescence Analysis, XRF) [IAEA, 2003].

Στην παρούσα εργασία πραγματοποιήθηκε ο προσδιορισμός της σύστασης των υπό μελέτη ιζημάτων με τη μέθοδο XRF στο Βιογεωχημικό Εργαστήριο του Ινστιτούτου Ωκεανογραφίας του ΕΛΚΕΘΕ. Αν και με την ίδια μέθοδο είναι εφικτός ο προσδιορισμός τόσο των κύριων στοιχείων (major) όσο και των ιχνοστοιχείων (tracers) του δείγματος με μικρή διαφοροποίηση στην παρασκευή του δοκιμίου μέτρησης (δοκίμια υαλώδους και πεπιεσμένου δίσκου αντίστοιχα), επιλέχθηκε για λόγους ερευνητικής συνάφειας και οικονομίας χρόνου να γίνει ανάλυση μόνο ως προς ένα κομμάτι των ιχνοστοιχείων, τα κυριότερα βαρέα μέταλλα (heavy metals).

3.2.4.1 Μετρήσεις βαρέων μετάλλων

Η αρχή λειτουργίας της φθορισομετρίας ακτίνων-Χ βασίζεται στην ενεργειακή διέγερση των ατόμων του υπό εξέταση δείγματος με χρήση δέσμης ακτίνων-Χ και κατόπιν ανίχνευση των χαρακτηριστικών ακτίνων-Χ που εκπέμπονται από τα άτομα του δείγματος. Συγκεκριμένα, ηλεκτρόνια εσωτερικής ατομικής στοιβάδας διεγείρονται από την προσπίπτουσα ακτινοβολία κατάλληλης ενέργειας και διαφεύγουν από το άτομο δημιουργώντας οπές. Κατά τη μετάπτωση των ατόμων στη βασική τους κατάσταση, ηλεκτρόνια ανώτερης ενεργειακής στάθμης καταλαμβάνουν τις κενές θέσεις της εσωτερικής στιβάδας και η μετάβαση συνοδεύεται από την εκπομπή φωτονίων ενέργειας στην περιοχή των ακτίνων-Χ. Η πρωτογενής ακτινοβολία πρέπει συνεπώς να είναι ενέργειας υψηλότερης, αλλά γειτονική προς την ενέργεια σύνδεσης των ηλεκτρονίων των εσωτερικών στιβάδων (Κ και L) στα υπό διέγερση άτομα και προέρχεται συνήθως από ραδιοϊσοτοπικές πηγές ή λυχνίες ακτίνων Χ. Αναλόγως με τα στοιχεία που πρόκειται να αναλυθούν, άρα και των διεγειρόμενων ενεργειών, επιλέγεται κατάλληλη πηγή ραδιοϊσοτόπων ή το υλικό της ανόδου της λυχνίας. Οι παραγόμενες ακτίνες-Χ κατόπιν ανιχνεύονται από κατάλληλο αισθητήρα (NaI(Tl), Si(Li), HPGe, SiDRIFT, CdZnTe κ.ά.) και καταγράφεται το ενεργειακό φάσμα ακτίνων-Χ που εμφανίζει μια σειρά χαρακτηριστικών ενεργειακών κορυφών. Μετά από κατάλληλη βαθμονόμηση, η ενεργειακή θέση των κορυφών οδηγεί στην ταυτοποίηση των στοιχείων που περιέχονται στο δείγμα (ποιοτική ανάλυση), ενώ από την έντασή τους προκύπτουν οι απόλυτες συγκεντρώσεις των στοιχείων του δείγματος (ποσοτική ανάλυση).

Οι μετρήσεις πραγματοποιήθηκαν με βαθμονομημένο φασματόμετρο φθορισμού ακτίνων-Χ διασποράς μήκους κύματος (Wavelength Diffraction XRF) PW-2400, Philips. Το σύστημα περιλαμβάνει λυχνία παραγωγής ακτίνων-Χ με άνοδο Rh (3 kW) για την παραγωγή της πρωτογενής δέσμης, κατευθυντήρες και άλλα οπτικά μέσα για την καθοδήγηση της δέσμης στο σημείο όπου τοποθετείται το δείγμα. Είναι εφοδιασμένο με 8 κρυστάλλους (LiF 200, LiF 220, PE 002, Ge 111, PX1 multilayer, PX2 multilayer, PX4 multilayer, TIAP 100 coated) για την περίθλαση της δέσμης, 3 ανιχνευτές της δευτερογενής δέσμης ανάλογου ροής (flow proportional), σπινθηριστή Na(Tl), αερίου Xe) και ηλεκτρονικές μονάδες για την καταγραφή του φάσματος. Το συγκεκριμένο σύστημα δύναται να πραγματοποιήσει ποσοτικές μετρήσεις για ένα εύρος 40 στοιχείων από το Be (Z=4) ως U (Z=92), παρέχοντας αποτελέσματα απευθείας συγκέντρωσης του στοιχείου στο δείγμα (μg/g ή ppm), ενώ είναι εφοδιασμένο με αυτόματο σύστημα αλλαγής δειγμάτων 30 θέσεων, τόσο για υγρά όσο και για στερεά δείγματα. Η ανάλυση των φασμάτων πραγματοποιείται αυτόματα με το λογισμικό Pro Trace, Panalytical για συγκεκριμένη γεωμετρία με βάση την ποιοτική ανάλυση του δείγματος – αναγνώριση ιχνοστοιχείων από τις φωτοκορυφές του φάσματος – και με πολλαπλή προσαρμογή (unfolding) στο πειραματικό φάσμα μοναδιαίων φασμάτων βαθμονόμησης, ενώ περιλαμβάνει αναλυτικούς υπολογισμούς όλων των πιθανών δευτερογενών φαινομένων (κορυφές διαφυγής, α-φωτοκορυφές, επικαλύψεις κορυφών κ.ά) και διόρθωση του συντελεστή ενδοαπορρόφησης (mass attenuation coefficient) στο δείγμα.

Βαθμονόμηση της διάταξης πραγματοποιείται με 25 πρότυπα δείγματα μοναδικών ή πολλαπλών στοιχείων γνωστής περιεκτικότητας, στην περιοχή συγκεντρώσεων του υπό εξέταση δείγματος για τα 40 στοιχεία που μπορεί να ανιχνεύσει το σύστημα, κατά τακτά χρονικά για να διασφαλίζεται η γραμμικότητα του. Καθένα από τα 40 ιχνοστοιχεία βαθμονομείται ξεχωριστά με περισσότερα από 200 διεθνώς πιστοποιημένα δείγματα αναφοράς (reference materials) ιζήματος και πετρωμάτων από τη U.S.Geological Survey (U.S.G.S.) και το National Research Council of Canada (N.R.C.C.), ενώ για κάθε στοιχείο προκύπτει μια γραμμική σχέση μεταξύ συγκέντρωσης και έντασης χαρακτηριστικών φωτοκορυφών. Η ακρίβεια της βαθμονόμησης εξαρτάται ισχυρά από τη μορφολογία του δείγματος, η οποία πρέπει να συμπίπτει κατά το δυνατόν με εκείνη του προτύπου, ενώ σημαντικό είναι να διατηρείται σταθερή η γεωμετρία κατά την παρασκευή και τοποθέτηση των δειγμάτων στο σύστημα. Εναλλακτικά, ποσοτικές αναλύσεις μπορούν να γίνουν μέσω της μεθόδου θεμελιωδών παραμέτρων (fundamental parameters method), η οποία στηρίζεται σε θεωρητικούς υπολογισμούς που λαμβάνουν υπόψη τις αλληλεπιδράσεις της πρωτογενούς ακτινοβολίας με τα άτομα του δείγματος. Για τον έλεγχο των θεωρητικών αλγορίθμων αρκεί η ανάλυση ενός προτύπου δείγματος.

Το όριο ανίχνευσης της μεθόδου (limit of detection of the method, LMD), δηλαδή οι ελάχιστες συγκεντρώσεις που είναι δυνατόν να προσδιοριστούν μέσω της φασματοσκοπίας XRF, καθορίζεται τόσο από το όρια ανίχνευσης (detection limit, LLD) του ανιχνευτικού συστήματος όσο και από τα όρια ανίχνευσης της αναλυτικής μεθόδου (προετοιμασία του δείγματος, χρονική διάρκεια της μέτρησης, γεωμετρία κλπ.). Το LDM εκφράζει το όριο που η αναλυτική μέθοδος μπορεί να επαναλάβει ικανοποιητικά ένα συγκεκριμένο αποτέλεσμα (με επίπεδο εμπιστοσύνης 95.4 %) και υπολογίζεται από μια σειρά μετρήσεων *n* πανομοιότυπων δειγμάτων που παρασκευάζεται από το ίδιο υλικό αναφοράς με τις ίδιες πειραματικές συνθήκες, σύμφωνα με τον τύπο:

$$LDM = 2 \cdot \sqrt{\frac{\sum_{m=1}^{n} C_m - \overline{C}}{n-1}}$$
(3.6)

όπου C_m η προσδιοριζόμενη συγκέντρωση του κάθε επιμέρους δείγματος και C η μέση τιμή του συνόλου των μετρήσεων.

Όσον αφορά την ακρίβεια των αποτελεσμάτων, η εκτίμηση της αβεβαιότητας των μετρήσεων βασίζεται σε στατιστικούς υπολογισμούς που συνδυάζουν την τυπική απόκλιση της επαναληψιμότητας των εργαστηριακών αποτελεσμάτων και την απόκλιση των εκτιμήσεων αυτών, αλλά και της μεθόδου στο σύνολο της, ως προς δια-εργαστηριακούς ελέγχους επιδόσεων (proficiency testing, PF) συμφωνά με τα διεθνή στάνταρ ποιότητας [GUM, 2008; IAEA, 2008; FASFC, 2008]. Συγκεκριμένα, η συνολική αβεβαιότητα U των εκτιμούμενων συγκεντρώσεων υπολογίζεται από τον τύπο:

$$U = \sqrt{u(R_w)^2 + u(bias)^2} = \sqrt{u(R_w)^2 + (RMS_{bias})^2 + u(C_{ref})^2}$$
(3.7)

όπου $u(R_m)$ η τυπική εργαστηριακή απόκλιση κατά την επαναληπτική μέτρηση του ίδιου δείγματος για ένα αριθμό μετρήσεων, u(bias) το σφάλμα λόγω απόκλισης από τα PF δεδομένα αναφοράς, RMS_{bias} η τυπική απόκλιση του συνόλου των επιμέρους μετρήσεων του εργαστηρίου από τη μέση τιμή αναφοράς και $u(C_{ref})$ η δια-εργαστηριακή τυπική απόκλιση της μέσης τιμής αναφοράς.

Τόσο το όριο ανίχνευσης LDM όσο και η συνολική αβεβαιότητα των μετρήσεων U για τα κυριότερα ιχνοστοιχεία προσδιορίστηκαν με διαδοχικές μετρήσεις δειγμάτων (n=10) του δείγματος αναφοράς PACS-2 [Karageorgis, 2005]. Με δεδομένο ότι η τυπική απόκλιση για όλα τα ιχνοστοιχεία μετάλλων ιζήματος στο δείγμα αναφοράς είναι της τάξης του ±12.5% και η τυπική εργαστηριακή απόκλιση φτάνει έως ±5%, στον πίνακα που ακολουθεί παρουσιάζονται οι τιμές για τα κυριότερα βαρέα μέταλλα που αναλύθηκαν με την μέθοδο της φασματοσκοπίας XRF.

Στοιχείο	Εύρος βαθμονόμησης	LDM	ΡΑCS-2- αναφοράς	ΡΑCS-2- μέτρησης	RMS _{bias}	U
	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(%)	(%)
V	0–300	3	133	143	7.29	15.01
Cr	0–500	4	90.7	94.4	4.07	13.74
Mn	0–5000	4	440	455	3.51	13.59
Со	0–80	2	11.5	11.5	0.00	13.12
Ni	0–500	2	39.5	38.5	2.48	13.36
Cu	0–450	4	310	326	5.14	14.10
Zn	0-1100	12	364	344	5.39	14.19
As	0–70	2	26.2	28	6.95	14.85
Sr	0–3200	2	276	300	8.96	15.89
Мо	0–35	1	5.43	5.6	3.13	13.49
Ва	0–3100	54	-	802	-	13.12
Pb	0–250	4	183	188	2.74	13.41

Πίνακας 3.6. Προσδιορισμός των κύριων ιχνοστοιχείων για το δείγμα αναφοράς PACS-2 με δεδομένο ότι $u(C_{ref})=12.5$ % και $u(R_m)=5$ %.

Για μια ποιο αντικειμενική εκτίμηση της ποιότητας των αποτελεσμάτων, η μέθοδος του εργαστηρίου ελέγχεται συνεχώς από το 1999 δύο φορές το χρόνο στα

πλαίσια της συμμετοχής στο ευρωπαϊκό πρόγραμμα QUASIMEME (Διασφάλιση Ποιότητας Πληροφορίας για την Παρακολούθηση του Θαλάσσιου Περιβάλλοντος στην Ευρώπη) [Cofino and Wells, 1994]. Στα πλαίσια αυτής της δια-εργαστηριακής άσκησης προσδιορίζεται η τιμή του δείκτης ποιότητας Ζ για κάθε ιχνοστοιχείο ως προς μια σειρά δειγμάτων αναφοράς σύμφωνα με τη σχέση:

$$Z = \left(C_i - \overline{C}_{ref}\right) / u(C_{ref})$$
(3.8)

όπου C_i η προσδιοριζόμενη από το εκάστοτε εργαστήριο συγκέντρωση του στοιχείου στο δείγμα και \overline{C}_{ref} η συγκέντρωση αναφοράς ως μέση τιμή όλων των εργαστηρίων που συμμετέχουν και $u(C_{ref})$, όπως και πριν, η δια-εργαστηριακή τυπική απόκλιση της μέσης τιμής αναφοράς.

Τιμές του |Z| μικρότερες και ίσες του 2 θεωρούνται αποδεκτές, μικρότερες του 3 αμφισβητούμενες ενώ τιμές μεγαλύτερες του 3 μη αποδεκτές. Η μέση τιμή του Z για σειρά μετρήσεων 10 δειγμάτων αναφοράς (QTM - 53 έως QTM - 65) ήταν < 1 για το Al, Fe, Ni, Cu, Zn και < 2 για το Cr, Mn, ενδεικτικές των ικανοποιητικών επιδόσεων της εφαρμοζόμενης αναλυτικής μεθόδου. Η σταθερότητα των επιδόσεων της μεθόδου διασφαλίζονται μέσα από διατήρηση σταθερών συνθηκών του οργάνου μέτρησης (θερμοκρασία, σταθερή τάση και ρεύμα) και συστηματικές καθημερινές σαρώσεις συνθετικών δειγμάτων αναφοράς (Breitlaender και AUSMON) για διόρθωση πιθανών αλλαγών στην απόκριση του οργάνου.



Σχήμα 3.14. Το υδραυλικό πιεστήριο (αριστερά) και το φασματόμετρο φθορισμού ακτίνων-Χ (δεξιά) που χρησιμοποιήθηκε για τις μετρήσεις των βαρέων μετάλλων στο ίζημα.

Από πειραματικής άποψης, για την μέτρηση των δειγμάτων ως προς τα ιχνοστοιχεία κατασκευάζονται κατάλληλα δισκία σκόνης (powder pellets), της ίδιας ακριβώς γεωμετρίας και κοκκομετρίας με τα δισκία βαθμονόμησης, μέσω υδραυλικής συμπίεσης. Αρχικά αποξηραμένο δείγμα ιζήματος (ξήρανση σε κλίβανο στους 70 °C για 24 h) κονιοποιείται, πρώτα με γουδοχέρι και στη συνέχεια με μηχανικό μύλο (τριβή δείγματος με κινούμενες μπίλιες από αχάτι για 10 min στις 250 στροφές/min). Επιλέγεται το κλάσμα του δείγματος κάτω από τα 63 μm με κοσκίνισμα, ομογενοποιείται με ελαφρά ανάδευση και επανατοποθετείται στον κλίβανο για την απομάκρυνση τυχόν υγρασίας. Κατόπιν, 5 g δείγματος μαζί με 0,5 g κεριού (Hoechst Wax-C), που χρησιμοποιείται για την συνεκτικοποίηση του δοκιμίου, τοποθετείται σε
βάση 31 mm Al η οποία καλύπτεται με λεπτή μεμβράνη (X- Ray Film Milar) για να μην επιμολυνθεί το δείγμα από την επαφή με το μεταλλικό καπάκι του υδραυλικού πιεστηρίου. Το μείγμα τελικά συμπιέζεται με υδραυλική πρέσα HTP-40, Herzog υπό πίεση 210 bar για 1 λεπτό και το δείγμα είναι έτοιμο για τη απευθείας μέτρηση των ιχνοστοιχείων ή φυλάσσεται σε ξηραντήρα για μελλοντική χρήση.

3.3 Μετρήσεις ραδιονουκλιδίων

Οι εργαστηριακές μετρήσεις ολοκληρώνονται με το ραδιολογικό χαρακτηρισμό των δειγμάτων. Η μέθοδος που εφαρμόστηκε είναι η απευθείας μέτρηση ιζήματος με φασματοσκοπία-γ από ημιαγώγιμους ανιχνευτές υψηλής καθαρότητας γερμανίου (high purity germanium) HPGe, καλύπτοντας ένα μεγάλο εύρος φυσικών και τεχνικών ραδιενεργών ιχνοστοιχείων, ενώ για ερευνητικούς καθαρά ερευνητικούς λόγους, εξετάζεται και η απευθείας μέτρηση δειγμάτων νερού με τον ίδιο τρόπο. Σε αντίθεση με τις παραπάνω άμεσες μετρήσεις, ραδιοχημική μέθοδος προσυγκέντρωσης εφαρμόστηκε για την μέτρηση ¹³⁷Cs στο νερό πάλι με φασματοσκοπία-γ και ²¹⁰Pb στο ίζημα με φασματοσκοπία-α. Στη συνέχεια παρουσιάζονται αναλυτικά η δειγματοποίηση, η οργανολογία και η μέτρηση ²¹⁰Pb με φασματοσκοπία-α περιγράφονται αναλυτικά σε ξεχωριστό υποκεφάλαια.

3.3.1 Δειγματοποίηση

Για την απευθείας μέτρηση των ιζημάτων, ποσότητα αποξηραμένου δείγματος κονιορτοποιείται σε ειδικό μύλο με σκοπό τον θρυμματισμό των κόκκων και τη μείωση του μεγέθους τους σε διάμετρο μικρότερη των 63 μm. Εναλλακτικά, η κορνιοτοποίηση του δείγματος μπορεί να πραγματοποιηθεί χρησιμοποιώντας γουδί από αγάτη. Το λεπτόκοκκο πλέον δείγμα τοποθετείται σε κοντέινερ μέτρησης μέγρι την πλήρωσή του, διασφαλίζοντας παράλληλα και την ομοιογένεια του. Χρησιμοποιήθηκαν δύο κυλινδρικές γεωμετρίες των 65.35 cm³ (68 mm διάμετρος, 18 mm ú ψ oc) και 5.41 cm³ (36.22 mm διάμετρος, 5.25 mm ú ψ oc), ανάλογα την διαθέσιμη ποσότητα δείγματος, ενώ και στις δύο περιπτώσεις τα κοντέινερ ήταν κατασκευασμένα από ακρυλικό πολυμερές (Plexiglas) πάχους 1 mm ώστε να διασφαλίζεται η μικρότερη δυνατή απορρόφηση ακτίνων-γ από τα τοιχώματα. Η τελική πυκνότητα όλων των δειγμάτων κυμαίνεται κοντά στη μονάδα (0.6-1.4 gr/cm^3), ανάλογα με την σύστασή του, ενώ σε περίπτωση που το δείγμα δεν επαρκεί προστίθεται ραδιενεργά ουδέτερο λεπτόκοκκο υλικό (κυτταρίνη πυκνότητας 0.8 gr/cm³) ώστε να προκύπτει πάντα ακριβώς η ίδια γεωμετρία. Το αποτέλεσμα αυτό είναι ιδιαίτερα σημαντικό στις μετρήσεις φασματοσκοπίας-γ, ώστε να υπάρχουν ίδια φαινόμενα ενδοαπορρόφησης των ακτίνων-γ του δείγματος σε σχέση με τις πηγές που χρησιμοποιούνται για την βαθμονόμηση των εργαστηριακών ανιχνευτικών συστημάτων. Τα δείγματα τέλος σφραγίζονταν ερμητικά με στεγανωτική ταινία (ή φιλμ εποξειδικής ρητίνης), ώστε να αποφεύγεται η διαφυγή των αέριων ραδιονουκλιδίων, ραδονίου ²²²Rn ($T_{1/2}$ = 3.8 d) και θορονίου ²²⁰Rn ($T_{1/2}$ = 5.4 s).

Για την απευθείας μέτρηση νερού χρησιμοποιήθηκαν δοχεία από βοριοπυριτικό γυαλί, υλικό με χαμηλή απορρόφηση ακτινοβολίας-γ και ανθεκτικό σε υψηλές πιέσεις, για την δυνατότητα απευθείας δειγματοληψιών από δύτες σε διάφορα βάθη. Πρόκειται για κυλινδρικές φιάλες πάχους 7 mm και όγκους 0.6 L (86 mm διάμετρος, 160 mm ύψος) και 2.2 L (126 mm διάμετρος, 240 mm ύψος), αμφότερα με στόμιο ακτίνας 20 mm και σχήμα κόλουρου κώνου (1/4 του συνολικού ύψους). Το δείγμα νερού τοποθετείται άμεσα κατά την δειγματοληψία ή με μετάγγιση από μεγαλύτερα δοχεία αποθήκευσης, χωρίς να έρθει σε επαφή με τον αέρα, μέχρι υπερχείλισης της φιάλης και σφραγίζεται ερμητικά με χρήση μονωτικής ταινίας για να αποφευχθούν πιθανές απώλειες των αέριων ραδιονουκλιδίων.



Σχήμα 3.15. Γεωμετρίες απευθείας μέτρησης δειγμάτων νερού – 2.2 L και 0.6 L (αριστερά) – και ιζήματος – 5.4 (κέντρο) και 65.4 cm³ (δεξιά) – με φασματοσκοπία-γ.

Στην περίπτωση της προσυγκέντρωσης ¹³⁷Cs σε δείγμα νερού ακολουθείται συγκεκριμένη χημική διαδικασία με σκοπό τη δέσμευση και καθίζηση του διαλυτού στο θαλάσσιο νερό Cs και τη συγκέντρωσή του τελικά σε μορφή ιζήματος. Για τον προσδιορισμό του συντελεστή της χημικής απόδοσης της μεθόδου, δηλαδή του λόγου της τελικής ποσότητας ¹³⁷Cs μετά την μετατροπή του δείγματος σε ίζημα προς την αρχική του ποσότητα στο αντίστοιχο θαλάσσιο δείγμα, χρησιμοποιείται σε κάθε δείγμα σαν ιχνηθέτης ¹³⁴Cs γνωστής ενεργότητας. Το ¹³⁴Cs παρουσιάζει ίδια χημική συμπεριφορά με το ¹³⁷Cs και αναμένεται να βρίσκεται σε αμελητέες ποσότητες στα συλλεγόμενα θαλάσσια δείγματα δεδομένου του μικρού χρόνου ημιζωής του (T_{1/2}= 2.065 y). Ο συντελεστής της χημικής απόδοσης χρησιμοποιείται για την αναγωγή των αποτελεσμάτων των μετρήσεων στην ενεργότητα του ¹³⁷Cs στο νερό. Η χημική προσυγκέντρωση και δειγματοποίηση περιλαμβάνει τα εξής βήματα:

1. Ποσότητα 20 L οξυμένου, κατά την δειγματοληψία, δείγματος νερού ογκομετράται και μεταφέρεται σε ανοιχτό δοχείο πολυαιθυλενίου, ενώ το pH ελέγχεται να είναι 1.5 με επιπλέον προσθήκη HCl αν χρειαστεί.

2. Το δείγμα αναδεύεται ήπια μηχανικά και προστίθεται 1 ml ραδιοϊχνηθέτη ¹³⁴Cs ενεργότητας 2 Bq/ml.

3. Διαλύονται 15 g μολυβδοφωσφορικού αμμωνίου (Ammonium Molybdo-Phosphate, AMP) (NH₄)₃PMo₁₂O₄₀×H₂O σε οξυνισμένο (pH 1.5) αποσταγμένο νερό 50 ml με μαγνητική ανάδευση και κατόπιν προστίθενται στο δείγμα, όπου συνεχίζεται η ανάδευση για 4 h.

4. Το δείγμα αφήνεται να ηρεμήσει για περίπου 8 h μέχρι να καταβυθιστεί το ίζημα.

5. Αποχύνεται το υπερκείμενο διαυγές διάλυμα και το ίζημα μεταγγίζεται με τη βοήθεια οξυνισμένου (pH 1) απεσταγμένου νερού σε μικρότερο δοχείο 2 L, ενώ ξεπλένονται προσεχτικά και τα τοιχώματα του αρχικού δοχείου. Το ίζημα αφήνεται να κατακαθίσει για χρονικό διάστημα μερικών ωρών και τελικά, όπως και πριν, μεταγγίζεται στην τελική γεωμετρία μέτρησης (65.35 cm³).

6. Το τελικό διάλυμα αποξηραίνεται πλήρως στους 40°C δίνοντας ένα στερεό υπόλοιπο (~15 g) και κατόπιν προστίθεται κυτταρίνης (cellulose) – υπό μορφή talk – μέχρι να συμπληρωθεί πλήρως το κοντέινερ μέτρησης με φασματοσκοπία-γ.



Σχήμα 3.16. Δοχεία ογκομέτρησης και αποθήκευσης δειγμάτων νερού 20 L (αριστερά), φιαλίδια ιχνηθέτη ¹³⁴Cs 1 ml (κέντρο πάνω), δόση απορροφητή AMP 15 gr (κέντρο κάτω) και δείγμα προσυγκεντρωμένου ιζήματος ¹³⁷Cs πριν και μετά την πλήρωσή της με πούδρα (δεξιά).

3.3.2 Ανιχνευτικές διατάξεις ακτινοβολίας-γ

3.3.2.1 Φασματοσκοπία με ανιχνευτές υπερκαθαρού γερμανίου (HPGe)

Όλες οι μετρήσεις φασματοσκοπίας-γ των δειγμάτων πραγματοποιήθηκαν με ανιχνευτικές διατάξεις HPGe, σε διάφορες χρονικές περιόδους και εργαστήρια. Η αρχή λειτουργίας τους βασίζεται στον ημιαγώγιμο χαρακτήρα του κρυστάλλου Ge που διαθέτουν, που λόγω της μικρής ενεργειακής απόσταση μεταξύ των ζωνών σθένους-αγωγιμότητας (~ 0.66 keV) αλληλεπιδρά έντονα με την προσπίπτουσα σε αυτόν ακτινοβολία. Βέβαια, ακόμα και στους υπερκαθαρούς κρυστάλλους Ge, υπάρχουν και επιπλέων ενδιάμεσες ζώνες λόγω κρυσταλλικών ατελειών και τυχαίων προσμείξεων. Για την βελτίωση των ιδιοτήτων τους λοιπόν, στα άκρα των κρυστάλλων προστίθενται προσμίξεις διαφορετικών στοιχείων που έχουν είτε ένα περισσότερο είτε ένα λιγότερο ηλεκτρόνιο σθένους και αντικαθιστούν ουδέτερα άτομα πλεγματικών θέσεων. Έτσι δημιουργείται μια νέα ενεργειακή στάθμη πλησιέστερα στη ζώνη αγωγιμότητας με περίσσια ηλεκτρονίων στην πρώτη περίπτωση (η-τύπου), ή στη ζώνη σθένους με έλλειμμα ηλεκτρονίων – ή ισοδύναμα περίσσεια οπών –στην δεύτερη περίπτωση (p-τύπου). Όταν οι δύο τύποι ημιαγωγών ενυπάργουν ως υποπεριοχές σε ένα κρύσταλλο πραγματοποιείται μετακίνηση φορέων, δηλαδή ηλεκτρονίων και οπών, άμεσης γειτνίασης στην επαφή p- και nτύπου αντίστοιχα, δημιουργώντας μια κεντρική περιοχή απογύμνωσης (ενδογενής), χωρίς περίσσια οπών ή ηλεκτρονίων. Η ενδογενής περιοχή διευρύνεται περαιτέρω με

εφαρμογή αντίστροφης υψηλής τάσης (θετική τάση στην n-επαφή και αρνητική στην p-επαφή) και κατά την πρόπτωση ακτινοβολίας δημιουργούνται φορείς φορτίου που έλκονται προς την p- ή την n-επαφή αντίστοιχα, δίνοντας ηλεκτρικούς παλμούς ανάλογους της ενέργειας της ακτινοβολίας.

Σε όλες τις διατάξεις φασματοσκοπίας-γ που χρησιμοποιήθηκαν ο ανιχνευτής ήταν κρύσταλλος Ge υψηλής καθαρότητας p-τύπου (~10³ ατόμα τυχαίων πλεγματικών προσμίξεων/cm³). Γεωμετρικά πρόκειται για ομοαξονικό κύλινδρο κλειστού άκρου με εσωτερική αξονική οπή, για την παροχή υψηλής τάσης. Μια επαφή η-τύπου στην εξωτερική επιφάνεια του κρυστάλλου, που πρόκειται για διασκορπισμένο στο Ge στρώμα λιθίου Li, και μία p-τύπου στην επιφάνεια της εσωτερικής οπής από εμφυτευμένο βόριο Β, αποτελούν τα ηλεκτρόδια της διάταξης. Βασικότερο χαρακτηριστικό της ποιότητας ενός τέτοιου είδους κρυστάλλου είναι το πάχος της η-τύπου επαφής, στην μπροστινή κυρίως επιφάνεια του κρύσταλλου (μερικά μm), καθώς όσο μικρότερο είναι τόσο αυξάνεται και η ευαισθησία σε χαμηλής ενέργειας φωτόνια, λόγω της χαμηλής εξασθένησης της ακτινοβολίας-γ σε αυτό το στρώμα. Για τον ίδιο λόγω πολύ σημαντικό ρόλο παίζει και το "παράθυρο" (end cup) του ανιχνευτή, δηλαδή το μπροστινό μέρος του περιβλήματος του κρυστάλλου, τόσο Όσον αφορά το πάχος όσο και το υλικό κατασκευής τους παράθυρα βηρυλλίου Be ή ανθρακονημάτων (carbon fiber) παρουσιάζουν καλύτερες επιδόσεις σε σχέση με τα συνήθη παράθυρα αλουμινίου ΑΙ. Καθοριστικής σημασίας επίσης είναι και οι διαστάσεις του κρυστάλλου, καθώς ο όγκος του είναι ανάλογος της συνολικής ανιχνευτικής απόδοσης. Τυπικά, η περιοχή ενεργειών που χρησιμοποιείται οι ανιχνευτές Ge είναι από 50 keV μέχρι περισσότερα από 10 MeV.



Σχήμα 3.17. Σχηματικό διάγραμμα τυπικής πειραματικής ανιχνευτικής διάταξης φασματοσκοπίας-γ με p-τύπου HPGe.

Μια τυπική ανιχνευτική διάταξη φασματοσκοπίας-γ γερμανίου (Σχήμα 3.17), περιλαμβάνει εκτός του κρυστάλλου Ge και συγκεκριμένα ηλεκτρικά και ηλεκτρονικά κυκλώματα, ενώ είναι απαραίτητο και ψυκτικό μέσο (υγρό άζωτο). Κάθε τέτοια διάταξη χωρίζεται σε τρία μέρη, από άποψη λειτουργίας αλλά και τοποθέτησης των συσκευών: (α) τον ανιχνευτή HPGe, (β) ένα κιβώτιο ηλεκτρικών μονάδων πυρηνικής φασματοσκοπίας (nuclear instrument module) NIM υπό μορφή ειδικών πλαισίων και (γ) το ηλεκτρονικό σύστημα καταγραφής των δεδομένων.

Το ανιχνευτικό σύστημα τροφοδοτείται με συνεχή υψηλή και χαμηλή τάση για την λειτουργία της p-n επαφής του ημιαγωγού Ge και του ενσωματωμένου προενισχυτή (preamplifier) PRE, αντίστοιχα. Στο πλαίσιο NIM προσαρτώνται και τροφοδοτούνται με κατάλληλη τάση το τροφοδοτικό υψηλής τάσης (high voltage) HV, ο ενισχυτής (amplifier) AMP του σήματος εξόδου από τον ανιχνευτή, καθώς και το σύστημα μετατροπής και καταγραφής παλμών ADC/MCA, ενώ προσαρμόζεται και προστατευτικό τάσης (uninterruptible power supply) UPS των ηλεκτρονικών της διάταξης. Τα δεδομένα τελικά αποθηκεύονται σε μορφή φάσματος σε ηλεκτρονικό υπολογιστή Η/Υ, ενώ τα αναλογικά ηλεκτρικά σήματα του προενισχυτή και του ενισχυτή μπορούν να ελεγχτούν από παλμογράφο (oscillator). Όπως όλους τους ανιχνευτές Ge, οι HPGe πρέπει να ψύχονται όταν βρίσκονται υπό τάση, για να αποφευχθεί η θερμικά παραγόμενη διαρροή ρεύματος στο κρύσταλλο λόγω θερμικής κίνησης των ατόμων του πλέγματος, ενώ αν και μπορούν να μεταφερθούν και να αποθηκευθούν χωρίς ψύξη, εντούτοις, η μακροπρόθεσμη σταθερότητα τους συντηρείται καλύτερα κρατώντας τον κρύσταλλο σε χαμηλές θερμοκρασίες. Η ψύξη του κρυστάλλου επιτυγγάνεται με κατάλληλο εξωτερικό δογείο (Dewar) που φέρει ικανή ποσότητα υγρού αζώτου (LN2) και επανατροφοδοτείται κατά τακτά χρονικά διαστήματα.

Τα περιβαλλοντικά δείγματα φυσικής ραδιενέργειας είναι εν γένει χαμηλής έντασης. Για το λόγω αυτό και οι ρυθμίσεις των ηλεκτρονικών συστημάτων για τέτοιου είδους μετρήσεις πρέπει να γίνονται με τέτοιο τρόπο ώστε να λαμβάνεται υπόψη ο μικρός ρυθμός καταγραφής γεγονότων (counting rate), η απώλεια γεγονότων ενδοαπορρόφησης (attenuation losses) στις φωτοκορυφές και η μείωση διακριτικής ικανότητας (resolution degradation) λόγω των πολλαπλών σκεδάσεων των φωτονίων μέσα στο δείγμα, της εκτεταμένης γεωμετρίας του δείγματος (άρα και διευρυμένης στερεάς γωνίας ανίχνευσης) και της χαμηλής περιεκτικότητας σε ραδιονουκλίδια. Οι ρυθμίσεις αφορούν στην όσο το δυνατόν πλήρη συλλογή κάθε ξεχωριστού ηλεκτρικού σήματος που αποκρίνεται σε συγκεκριμένη ακτίνα-γ, την καλύτερη δυνατή μορφοποίηση των παλμών (Gaussian μορφή) που βγαίνουν από τον ενισχυτή και την επιλογή του εύρους του ύψους των ηλεκτρικών παλμών που τελικά θα καταγραφούν στο φάσμα. Οι παραπάνω παράμετροι καθορίζονται πειραματικά από το χρόνο διαμόρφωσης (shaping time), την εξάλειψη ασυμμετρίας (pole zero cancellation) και την ενίσχυση (coarse/fine gain) του παλμού εξόδου του ενισχυτή, αντίστοιχα. Η καταγραφή φάσματος 24 h σε διακριτοποίηση 4096 ενεργειακών καναλιών που καλύπτουν ενεργειακό εύρος από 0 έως 2000 keV περίπου είναι, παραδοσιακά, ένας ικανοποιητικός συμβιβασμός μεταξύ ανιχνευτικών δυνατοτήτων και πρακτικών παραγόντων για μετρήσεις φασματοσκοπίας-γ περιβαλλοντικών δειγμάων με HPGe.

Απαραίτητο στοιγείο για μετρήσεις ραδιενέργειας περιβαλλοντικών δειγμάτων είναι και η θωράκιση της ανιχνευτικής διάταξης από την ακτινοβολία υποβάθρου με σκοπό τη βελτίωση των επιπέδων ανιγνευσιμότητας και της ακρίβειας των μετρήσεων, καθώς και η παρακολούθηση της ποιοτικής, ποσοτικής και γρονικής διακύμανσης. Βασικές πηγές αυτής της ακτινοβολίας είναι: (α) η ραδιενέργεια του περιβάλλοντος χώρου, αναφερόμενοι στην ακτινοβολία-γ κυρίως που προέρχεται από τα πετρώματα του εδάφους και υπεδάφους και τα υλικά δόμησης του χώρου των μετρήσεων λόγω των φυσικών ραδιενεργών σειρών $(^{238}U, ^{232}Th, ^{235}U)$ και του ^{40}K , (β) η ύπαρξη ραδιο-προσμείξεων, δηλαδή ραδιενεργών ιχνοστοιχείων (φυσικά, ανθρωπογενή και κοσμογενή), στα υλικά και τις επιφάνειες του κρυστάλλου και της θωράκισης, (γ) το αέριο ²²²Rn που κυκλοφορεί στην ατμόσφαιρα και τα θυγατρικά του ραδιονουκλίδια που επικάθονται στις επιφάνειες. (δ) δευτερογενής ακτινοβολία λόγω των αντιδράσεων της κοσμικής ακτινοβολίας με τα υλικά της ανιγνευτικής διάταξης και (ε) δευτερογενής ακτινοβολία από τις αλληλεπιδράσεις υλικών ανιγνευτή/θωράκισης και νετρονίων, προεργόμενα από αυθόρμητες σγάσεις και (a,n) αντιδράσεις.



Σχήμα 3.18. Διάγραμμα της προέλευσης του υποβάθρου στη φασματοσκοπία με ανιχνευτές Ge.

Απαραίτητο, λοιπόν, για την επιλογή κατάλληλης θωράκισης είναι η χρήση υλικών με μεγάλο μαζικό αριθμό Ζ, όπως ο μόλυβδος (Pb), ώστε να παρουσιάζουν μεγάλη απορρόφηση ιοντίζουσας ακτινοβολίας και κυρίως των ακτίνων-γ. Η επιλογή και το πάχος του υλικού θωράκισης, αλλά και του ανιχνευτή, σχετίζονται κυρίως με την δευτερογενή ακτινοβολία, ενώ το σημαντικότερο είναι ο πειραματικός έλεγχος των καθαυτών υλικών που θα χρησιμοποιηθούν σε κατάλληλες εγκαταστάσεις – όπως τα υπόγεια εργαστήρια πολύ χαμηλής συγκέντρωσης φασματοσκοπίας ακτίνων-γ (Ultra Low-level Gamma-ray Spectrometry) ULGS – ώστε να διασφαλίζονται τα χαμηλά επίπεδα ραδιο-προσμείξεων σε αυτά. Περαιτέρω μείωση του υποβάθρου των ΗΡGe ανιχνευτών σε ULGS εργαστήρια, που παρουσιάζουν πολύ καλή θωράκιση από την κοσμική ακτινοβολία, μπορεί να επιτευχθεί είτε με Ge εμπλουτισμένο σε σταθερά ισότοπα ^{72,73,74}Ge ή με την απευθείας υπόγεια κατασκευή του κρυστάλλου. Ήδη πλέον, υλικά θωράκισης και κατασκευής ανιχνευτών αποθηκεύονται όσο το δυνατόν

μεγαλύτερο διάστημα υπόγεια, προκειμένου να μειωθεί η ενεργοποίηση τους από την κοσμική ακτινοβολία [Alessandrello et al., 1988; Brodzinski et al.,1988]. Εναλλακτικά, η χρήση ενεργητικών θωρακίσεων, όπως η κατασκευή ανιχνευτών που περιλαμβάνουν πολλαπλούς (multiple) ή διαμερισματοποιημένους (segmented) κρυστάλλους, πραγματοποιούν περιορισμό του φαινομένου Compton (Compton suppression) ή υλοποιούν κυκλώματα σύμπτωσης (coincidence circuits) με χρήση ακόμα και άλλων ανιχνευτών, για τη μείωση του υποβάθρου, ώστε να βελτιστοποιηθεί η ευαισθησία σε ορισμένα ραδιονουκλίδια [Laubenstein et al., 2004].

3.3.2.2 Εργαστηριακές εγκαταστάσεις

Οι μετρήσεις φασματοσκοπίας-γ πραγματοποιήθηκαν ως επί το πλείστον στα εργαστήρια Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος του ΕΛΚΕΘΕ και Πυρηνικής Φυσικής στον Τομέα Φυσικής του Εθνικού Μετσόβιου Πολυτεχνείου (ΕΜΠ), ενώ μέρος μετρήσεων έγιναν στο Ινστιτούτο Πυρηνικής Φυσικής του Εθνικού Κέντρου Έρευνας Φυσικών Επιστημών (ΕΚΕΦΕ) "Δημόκριτος" και στο υπόγειες Εγκαταστάσεις Χαμηλού Υποβάθρου (Low Background Facilities) του National Laboratory of Gran Sasso – Insituto Nazionale di Fisica Nucleare (L.N.G.S.– I.N.F.N.).

Το μεγαλύτερο μέρος των μετρήσεων δειγμάτων ιζήματος πραγματοποιήθηκαν πρωτίστως στο ΕΛΚΕΘΕ και μέρος τους στο ΕΜΠ από πανομοιότυπο ανιγνευτικό σύστημα HPGe μεγάλου ενεργειακού εύρους GEM-FX8530P4, Ortec. O συγκεκριμένος τύπος ανιχνευτή φέρει κρύσταλλο Ge μεγάλων διαστάσεων (64×85 mm) και υπέρλεπτο παράθυρο (0.76 mm) από ελαφρύ υλικό (ανθρακονήματα) δίνοντας έτσι την δυνατότητα ανίγνευσης από τα ~22 keV, ενώ έως και τα 150 keV η ανιχνευτική ικανότητα αυξάνει μέχρι και 6 φορές σε σχέση με άλλους GEM τύπου αισθητήρες [Keyser and Twomey, 2004]. Η σχετική απόδοση του ανιχνευτή, δηλαδή ο λόγος της απόλυτης απόδοση του ανιχνευτή Ge προς την απόδοση ενός ανιχνευτή NaI 3" \times 3"στην κορυφή 1332 keV του ⁶⁰Co σε απόσταση 25 cm από την πρόσοψη του κρυστάλλου, έχει ονομαστική τιμή (nominal value) 50% με διακριτική ικανότητα (resolution), εκφρασμένη από τα keV του πλήρες εύρους στη μέση του μεγίστου (full width at the half maximum) FWHM της φωτοκορυφής, να είναι 1.77 keV στην 1332 keV αιχμή του ⁶⁰Co και ο λόγος φωτοκορυφής: Compton (photopeak to Compton ratio), δηλαδή τα γεγονότα που καταγράφονται στην φωτοκορυφή προς αυτά που χάνονται στην αιχμή Compton της κορυφής, να είναι 62:1. Η ονομαστική τάση λειτουργίας του κρυστάλλου ήταν +4.8 kV, ενώ τα ηλεκτρονικά συστήματα που χρησιμοποιήθηκαν στα δύο εργαστήρια παρουσιάζονται στον πίνακα που ακολουθεί.

	-				
Εργαστήριο	Πλαίσιο	Τροφοδοτικό	Ενισχυτής	Σύστημα	Πρόγραμμα
	NIM	ΗV	ΑΜΡ	ADC/MCA	καταγραφής
ΕΛΚΕΘΕ	1400, Canberra	TC950A, Tennelec	2020, Canberra	UC530, Spectech	Spectech driver
ЕМП	2100,	659 <i>,</i>	672 <i>,</i>	8715,	Genie2000,
	Canberra	Ortec	Ortec	Canberra	Canberra

Πίνακας 3.7. Ηλεκτρονικές διατάζεις των πανομοιότυπων ανιχνευτικών διατάζεων HPGe.

Πέρα από τη διαφορά στα ηλεκτρονικά, οι δύο διατάξεις είχαν και διαφορετική θωράκιση και γεωμετρία μέτρησης. Το ανιχνευτικό σύστημα του ΕΛΚΕΘΕ ήταν κατακόρυφα προσαρμοσμένο με τα δείγματα να τοποθετούνται σε επαφή με το παράθυρου του ανιγγευτή, προστατευμένο από πλαστικό κάλυμμα (acetal) μικρού πάχους (2 mm), ώστε να προστατεύεται το υπέρλεπτο παράθυρο C από το βάρος του δείγματος και από τυχόν ραδιο-επιμολύνσεις (radio-contaminations), και ταυτόχρονα να περιορίζεται η απώλεια χαμηλοενεργειακών φωτονίων λόγω ενδοαπορρόφησης. Η θωράκιση αποτελούνταν από δύο σειρές τούβλων Pb πάχους 58.5 mm, δημιουργώντας ένα τετράγωνο περίβλημα γύρω από το δείγμα ύψους 23 mm και πλάτους 31 mm, ενώ το πάνω μέρος της θωράκισης έκλινε με λεπτό φύλο μολύβδου (1 cm). Στην περίπτωση του ανιχνευτικού συστήματος του ΕΜΠ, ο ανιχνευτής ήταν τοποθετημένος οριζόντια και τα δείγματα τοποθετούνταν και πάλι σε επαφή με το παράθυρο του ανιχνευτή με βοήθεια πλαστικών υποστυλωμάτων, ενώ μεταξύ δείγματος και παραθύρου παρεμβάλλονταν λεπτό στρώμα πορώδους πλαστικού (afrolex) για προστασία του παραθύρου. Η θωράκιση του ανιγγευτή ήταν ένας οριζόντιος κύλινδρος με εσωτερική οπή, όπου ο ανιχνευτής σύρονταν έως ότου το δείγμα να τοποθετηθεί στο μέσον του. Ο κύλινδρος αποτελούνταν από ένα εξωτερικό στρώμα Pb πάχους 50 mm, κατόπιν ένα στρώμα καδμίου (Cd) 2.5 mm και τέλος στο εσωτερικό του από στρώμα χαλκού (Cu) 2.5 mm. Η συνεισφορά στο υπόβαθρο από το ⁴⁰Κ ήταν αυξημένη στα φάσματα του συστήματος στο ΕΛΚΕΘΕ σε σχέση με το σύστημα του ΕΜΠ είτε λόγω της διαφορετικής ποιότητας οικοδομικών υλικών στα δύο εργαστήρια είτε ενδεγομένως λόγω της απόστασης από τη θάλασσα.





Σχήμα 3.19. Οι ανιχνευτικές διατάζεις του GEM-FX8530P4 με τις αντίστοιχες θωρακίσεις στο ΕΛ.ΚΕ.ΘΕ. (πάνω) και στο ΕΜΠ (κάτω).

Λόγω της διαφοράς στη θωράκιση των συστημάτων ήταν αναμενόμενη η διαφορά στην ακτινοβολία υποβάθρου που εμφανίζουν τα φάσματα των δύο διατάξεων. Πράγματι, από μετρήσεις της ακτινοβολίας υποβάθρου μέσα και έξω από τη θωράκιση προέκυψε ότι το φάσμα υποβάθρου στην περίπτωση του ΕΛΚΕΘΕ ήταν κατά πολύ αυξημένο σε σχέση με αυτό του ΕΜΠ.



Σχήμα 3.20. Σύγκριση πειραματικών φασμάτων υποβάθρου (κανονικοποιημένα ανά ώρα) των ανιχνευτικών διατάζεων του ΕΛΚΕΘΕ (HCMR) και του ΕΜΠ (NTUA).

Ποιοτικά στο υπόβαθρο συνεισφέρουν ραδιονουκλίδια της φυσικής σειράς του ουρανίου και του θορίου με επικρατέστερα το ²¹⁴Bi, ²¹⁴Pb, ²¹²Pb, ²¹²Bi, ²⁰⁸Tl, ²²⁸Ac και ²³⁴Th, ενώ είναι εμφανής και η συνεισφορά του ²³⁵U και ²²⁶Ra στην κοινή τους φωτοκορυφή (~185 keV). Η σημαντικότερη συνεισφορά στο φάσμα είναι από το ⁴⁰K στα 1460.8 keV και από τις ακτίνες-X του Pb της θωράκισης στις χαμηλές ενέργειες. Ποσοτικά η ακτινοβολία υποβάθρου ήταν υψηλότερη στο εργαστήριο του ΕΛΚΕΘΕ από 2, στις υψηλές ενέργειες, έως 5, στις χαμηλές, φορές σε σχέση με αυτό του ΕΜΠ λόγω της ελλιπής θωράκισης από το πάνω και το κάτω μέρος του ανιχνευτικού συστήματος. Αξιοσημείωτο είναι το γεγονός ότι στην ανιχνευτική διάταξη του ΕΜΠ παρατηρείται αναλογικά υψηλότερη φωτοκορυφή στα 511 keV, λόγω της μεγαλύτερης μάζας Pb στη θωράκιση του ανιχνευτή. Τα φωτόνια αυτά προέρχονται από εξαΰλωση ζευγών ηλεκτρονίων-ποζιτρονίων, που δημιουργούνται από δίδυμη γένεση κατά την αλληλεπίδρασης υψηλοενεργειακής κοσμικής ακτινοβολίας (>1024 keV) με τους πυρήνες των υλικών της θωράκισης.

Επιπλέον μετρήσεις με HPGe ανιχνευτή GC5021, Canberra πραγματοποιήθηκαν στο εργαστήριο του EMΠ. Ο ανιχνευτής είναι και πάλι κυλινδρικός p-τύπου (67×67 mm) με 50 % ονομαστική σχετική απόδοση, 2.1 keV FWHM στα 1332 keV και 56:1 λόγω φωτοκορυφής προς Compton. Η θωράκιση και οι υπόλοιπες ηλεκτρονικές διατάξεις ήταν οι ίδιες με πριν, ενώ η τάση πλήρης λειτουργίας είναι τα +3.5 kV. Βασική διαφορά αποτελεί το παράθυρο Al του ανιχνευτή πάχους 1 mm, που έχει σαν αποτέλεσμα την ραγδαία μείωση της ανιχνευτικής απόδοσης στις χαμηλές ενέργειες. Αυτό εξάλλου αποτυπώνεται και από την μείωση της ακτινοβολίας υποβάθρου που καταγράφεται μέσα στην θωράκιση.



Σχήμα 3.21. Σύγκριση πειραματικών φασμάτων υποβάθρου (κανονικοποιημένα ανά ώρα) μέσα στη θωράκιση δύο διαφορετικών ανιχνευτών HPGe στο εργαστήριο του ΕΜΠ

Στο εργαστήριο του ΕΚΕΦΕ "Δημόκριτος" πραγματοποιήθηκαν οι εργαστηριακές μετρήσεις του ¹³⁷Cs στο νερό με την μέθοδο της προσυγκέντρωσης. Ο ανιχνευτής HPGe που χρησιμοποιήθηκε ήταν ο GC8023, Canberra με 80% σχετική απόδοση, διακριτική ικανότητα 1.2 keV (αιχμή 122 keV ⁵⁷Co) και 2.3 keV (αιχμή 1332 keV ⁶⁰Co) αντίστοιχα, λόγω φωτοκορυφής: Compton 70.8:1 και τάση λειτουργίας στα +4.6 kV. Ο κρύσταλλος Ge (74×71 mm) και ο προενισχυτής βρίσκονται ενσωματωμένοι μέσα σε κύλινδρο Al πάχους 1 mm, διαχωριζόμενοι από σταθεροποιητή ψύξης (σε θήκη άνθρακα) και φίλτρο αζώτου, ενώ το όλο σύστημα συνδέεται με μικρό κρυοστάτη LN₂ (30.5 L). Η θωράκιση που χρησιμοποιήθηκε ήταν και πάλι ανοιχτού τύπουm, όπως στο ΕΛΚΕΘΕ, αποτελούμενη από δακτύλιο Pb πάχους 5.85 cm τοποθετημένο περιμετρικά του κρυστάλλου του ανιχνευτή και πλάκες Pb, ίδιου πάχους και ύψους 23 cm, γύρο από το χώρο τοποθέτησης του δείγματος σε σχηματισμό ορθογώνιου.



Σχήμα 3.22. Ανιχνευτής και θωράκιση HPGe στο ΕΚΕΦΕ "Δημόκριτος".

Παρόλη την επιπλέον συνεισφορά στην ακτινοβολία υποβάθρου από ραδιενεργές πηγές αναφοράς και ιοντίζουσα ακτινοβολία από πειράματα γειτονικών εργαστηρίων, η θωράκιση ήταν ελαφρώς καλύτερη από αυτή στο ΕΛΚΕΘΕ, ιδίως στις χαμηλές ενέργειες.



Σχήμα 3.23. Σύγκριση φασμάτων υποβάθρου (κανονικοποιημένα ανά ώρα) σε θωράκιση ανοιχτού τύπου στο εργαστήριο του ΕΛΚΕΘΕ (HCMR)και του ΕΚΕΦΕ (NCSR).

Τέλος, σειρά δειγμάτων ιζήματος μικρής γεωμετρίας (~5 g) από την περιοχή του Θερμαϊκού μετρήθηκαν στο υπόγειο εργαστήριο φασματοσκοπίας-γ του LNGS στα πλαίσια του προγράμματος συνεργασίας με το ΕΛΚΕΘΕ Environmental Radioactivity Monitoring for Earth Sciences (E.R.M.E.S.). Το LNGS βρίσκεται στην οροσειρά του Gran Sasso (κεντρικά Απέννινα, Ιταλία) που ο υπερκείμενος ορεινός όγκος 1400 m (4000 m από το επίπεδο της θάλασσας), το θωρακίζει αποτελεσματικά από τις κοσμικές ακτίνες. Η ραδιενέργεια των πετρωμάτων που περιβάλλουν το εργαστήριο είναι χαμηλής ενεργότητας και η υπόγεια ροή νετρονίων είναι τρεις τάξεις μεγέθους μικρότερη απ' ότι υπέργεια, ενώ ο συνεχής αερισμός των εγκαταστάσεων με αέρα από το εξωτερικό της σήραγγας διατηρεί συγκέντρωση ²²²Rn περίπου 30 Bq/m³.



Σχήμα 3.24. Σειρά Ανιχνευτικών διατάζεων HPGe και εσωτερικό θωράκισης στο υπόγειο εργαστήριο φασματοσκοπίας-γ του LNGS στο Gran Sasso της Ιταλίας.

Το εργαστήριο είναι εξοπλισμένο με σειρά ομοαξονικών ανιχνευτών HPGe μεγάλου όγκου (Σχήμα 3.24), υψηλής διακριτικής ικανότητας και χαμηλής ενδογενούς ραδιενέργειας υποβάθρου. Οι ανιχνευτές Ge έχουν κατασκευαστεί και εγκατασταθεί από την Ortec (ΗΠΑ) και την Canberra (Βέλγιο) υπό την επίβλεψη του προσωπικού του εργαστηρίου, ενώ όλα τα υλικά του κρυοστάτη και της εσωτερικής στήριξης έχουν επιλεγεί προσεκτικά. Κάθε ανιγνευτής είναι πλήρως θωρακισμένος από τούβλα πάχους 25 cm Pb (2 tn) χαμηλής ραδιενέργειας (ποιότητα Dow Run από την JL Goslar, Γερμανίας). Οι ακτίνες-Χ και η ακτινοβολία πέδησης (bremsstrahlung) από τον Pb απορροφούνται από ένα στρώμα 10 cm ηλεκτρολυτικού Cu υψηλής αγωγιμότητας, χωρίς προσμείξεις οξυγόνου (ποιότητα NOSF από την Norddeutsche Affinerie, Γερμανίας) τοποθετημένα στο εσωτερικό της θωράκισης, επίσης, σε μορφή τούβλων. Ο Pb και Cu ήταν πρόσφατης κατασκευής και εκτέθηκαν σε κοσμική ακτινοβολία για πολύ μικρό χρονικό διάστημα, ώστε να αποφευχθεί η ενεργοποίηση τους. Στο κάτω μέρος της θωράκισης ένα ακρυλικό στρώμα 5 cm και ένα παχύ στρώμα Cd μειώνει την ροή των νετρονίων. Για προστασία από το 222Rn όλες οι θωρακίσεις στεγάζονται σε αεροστεγή κουτιά από ακρυλικό ή χάλυβα, που πραγματοποιείται συνεχής ροή αέριου Ν₂.

Η ραδιενεργός μόλυνση διαφόρων υλικών μπορεί να μελετηθεί και να ταυτοποιηθεί με τη μέτρηση δειγμάτων με τη μορφή μικρών κυλίνδρων που μπορούν να προσαρμοστούν γύρο από τον κρύσταλλο, σε δοχεία Marinelli με όγκο της τάξης του 1 L ακριβώς πάνω από το εξωτερικό καπάκι του ανιχνευτή. Οι προσμείξεις σε U

και Th υπολογίζονται με την υπόθεση της κοσμικής ισορροπίας για τις ραδιενεργές σειρές, όπου όμως μόνο η ακτινοβολία-γ ταυτοποιείται με αυτήν την τεχνική. Μέτρηση μεγάλης διάρκειας (700 h) ποσότητας 26 kg του Pb της θωράκισης με την προαναφερθείσα μέθοδο έδειξε ραδιο-μόλυνση της τάξης των 20 Bq/kg σε ²¹⁰Pb, ενώ δεν βρέθηκαν κορυφές από τη σειρά του ²³⁸U ή του ²³²Th πάνω από το υπόβαθρο προσδίδοντας ένα ανώτατο όριο προσμείξεων της τάξης των 0.1 mBq/kg για αυτά τα ραδιονουκλίδια . Επιπλέον, το σύστημα αφαίρεσης ραδονίου βρέθηκε να παρέχει μία ακτινοβολίας-γ υποβάθρου κατά έναν παράγοντα του 2. Το επίπεδο ευαισθησίας των ανιχνευτών για φασματοσκοπία ακτίνων-γ, τελικά, φθάνει στα 10⁻³ Bq/kg, που αντιστοιχεί σε μία συγκέντρωση της τάξης των 10⁻¹⁰ g/g ²³⁸U και ²³²Th θεωρώντας ραδιενεργό ισορροπία μεταξύ των θυγατρικών της σειράς τους [Arpesella, 1996].



Σχήμα 3.25. Φάσματα υποβάθρου ακτινοβολίας-γ (κανονικοποιημένα ανά ώρα) χωρίς και με κατάλληλη θωράκιση στο υπόγειο εργαστήριο LNGS.

Οι 3 συνολικά ανιχνευτές p-τύπου του εργαστηρίου που χρησιμοποιήθηκαν κατά την διάρκεια των μετρήσεων στο LNGS με τα κύρια χαρακτηριστικά τους, καθώς και αυτά των εργαστηρίων που παρουσιάστηκαν προηγουμένως, παρουσιάζονται στον Πίνακα 3.8.

Από την σύγκριση των εργαστηριακών εγκαταστάσεων είναι σαφές ότι στα υπόγεια ανιχνευτικά συστήματα του LNGS το υπόβαθρο της ακτινοβολίας-γ είναι 2 με 3 τάξεις μεγέθους μικρότερο σε σχέση με τα αυτό των υπέργειων εργαστηρίων. Όσον αφορά τα υπέργεια συστήματα ανίχνευσης, καθίσταται σαφές ότι η διάταξη στο ΕΜΠ υπερτερεί από άποψη θωράκισης σε σχέση με τις θωρακίσεις ανοιχτού τύπου τόσο του ΕΛΚΕΘΕ όσο και του ΕΚΕΦΕ, που εμφανίζουν ίδια επίπεδα υποβάθρου, και είναι σαφώς πιο ενδεδειγμένη για περιβαλλοντικές μετρήσεις χαμηλής

ενεργότητας. Η γεωμετρία και η μεγάλη αυτονομία σε LN_2 (λόγω του μεγαλύτερου Dewar), από την άλλη, της διάταξης στο ΕΛΚΕΘΕ δίνει ένα σαφές πλεονέκτημα στην ευκολία μέτρησης σειράς δειγμάτων. Ενδείκνυται η ανάπτυξη της θωράκισης για αυτή την γεωμετρία, ώστε να κλείνει περιμετρικά, ενώ ένα σύστημα κυκλοφορίας αέριου αζώτου κατά την διάρκεια των μετρήσεων, για την αφαίρεση του ²²²Rn και των κορών του από την περιοχή μέτρησης, θα βελτίωνε σαφώς τα επίπεδα ανίχνευσης.

Εργαστήριο		ελκέθε /	ЕМП	ЕМП	ЕКЕФЕ	LNGS		
Ανιχνευτής		GEM-FX8530P4		GC5021	GC8023	GePv	GsOr	GePaolo
Κατασκευαστής		Ortec		Canberra	Canberra	Ortec	Ortec	Ortec
Όγκος (cm³)		275		233	305	363	414	518
Παράθυρο		C-fiber		Al	Al	Cu	Cu	Cu
Σχετική απόδοση		50%		50%	80%	91%	96%	113%
FWHM (keV), 1.33 MeV		1.77		2.1	2.3	1.8	1.9	2
Φωτοκορυφή:Compton		62:1		56:1	70.8:1	96:1	87.9:1	88.3:1
Ρυθμός	60–1500	1053×10 ³	349×10 ³	249×10 ³	708×10 ³	951 [*]	980^*	624 [*]
γεγονότων	352	5.6×10 ³	0.7×10^{3}	0.5×10^{3}	3×10 ³	5.6	3	2.6
υποβάθρου	583	4.8×10 ³	0.2×10 ³	0.1×10 ³	1.2×10 ³	3.7	2.1	0.9
(d ⁻) σ ε (keV)	1461	11×10 ³	2.6×10 ³	2.8×10 ³	9.4×10 ³	6.4	8.7	4.7

Πίνακας 3.8. Τα κύρια χαρακτηριστικά και τα επίπεδα υποβάθρου των φασματόμετρων HPGe που χρησιμοποιήθηκαν στην παρούσα εργασία.

^{*} από τα 60-2700 keV

3.3.3 Μεθοδολογία βαθμονόμησης

3.3.3.1. Βαθμονομήσεις ανιχνευτών

Προκειμένου να πραγματοποιηθούν ποσοτικές αναλύσεις για τον προσδιορισμό της ενεργότητας ραδιονουκλιδίων σε δείγματα ιζήματος ή νερού είναι απαραίτητο τα συστήματα ανίχνευσης να βαθμονομηθούν. Όπως αναφέρθηκε και νωρίτερα (Παρ. 3.1.3.1), η βαθμονόμηση των συστημάτων περιλαμβάνει την ενεργειακή βαθμονόμηση, τη βαθμονόμηση της διακριτικής ικανότητας και την βαθμονόμηση της απόλυτης απόδοσης του ανιχνευτή. Οι δυο πρώτες αφορούν σε εγγενή χαρακτηριστικά του ανιχνευτή σε συνδυασμό με τα υπόλοιπα ηλεκτρονικά, ενώ η τελευταία αναφέρεται κάθε φορά σε συγκεκριμένη γεωμετρία ανίχνευσης και επηρεάζονται από τα χαρακτηριστικά του ανιχνευόμενου δείγματος. Οι βαθμονομήσεις πραγματοποιούνται πειραματικά με χρήση ραδιενεργών πηγών αναφοράς γνωστής ενεργότητας, ενώ σε πολλές περιπτώσεις χρησιμοποιούνται και μαθηματικές υπολογιστικές και ημι-εμπειρικές προσεγγίσεις.

Η ενεργειακή βαθμονόμηση εξυπηρετεί τόσο στον προσδιορισμό της ενεργειακής διακριτοποίησης (energy binning) στο τελικό φάσμα όσο και τον έλεγχο της γραμμικότητας (linearity) του συστήματος προενισχυτή-ενισχυτή-ADC/MCA. Στην πρώτη περίπτωση πραγματοποιείται αντιστοίχηση μεταξύ της ενέργειας των

ακτίνων-γ από τις πηγές αναφοράς και του καναλιού στο οποίο εμφανίζονται στο ενεργειακό φάσμα του MCA – παραδοσιακά 4096 κανάλια στην περίπτωση των HPGe. Η σχέση που προκύπτει είναι κατά βάση γραμμική της μορφής (Ενέργεια=a+b·Κανάλι), αν και σε περιπτώσεις έντονης μη-γραμμικότητας χρησιμοποιούνται και πολυώνυμα μεγαλύτερου βαθμού. Στην παραπάνω σχέση ο παράγοντας a εκφράζει το κατώτατο όριο ηλεκτρικών παλμών εισόδου του ADC (offset) πάνω από το οποίο τους επεξεργάζεται-ψηφιοποιεί (συνήθως φτάνει έως 10 V), ενώ η κλίση b την ενέργεια που αντιστοιγεί τελικά ανά κανάλι του MCA (τυπικά ~ 0.5 keV/ch). Όσον αφορά την γραμμικότητα του συστήματος τεχνικά διακρίνεται (α) στην ολοκληρωματική γραμμικότητα (integral linearity) που είναι η απόκλιση από την ευθύγραμμη αναλογία καναλιού-ενέργειας με τυπικές τιμές $< \pm 0.05\%$ για όλο το εύρος ενεργειών και (β) στην διαφορική γραμμικότητα (differential linearity) που είναι ένα μέτρο της σταθερότητας του πλάτους των καναλιών με τυπικές τιμές αναδιανομής γεγονότων σε γειτονικά κανάλια $< \pm 1\%$ – τιμή που ελάγιστα επηρεάζει τόσο την ενεργειακή βαθμονόμηση όσο και το συνολικό εμβαδό των μετρούμενων φωτοκορυφών. Η οποιαδήποτε παρατηρούμενη απόκλιση στην περίπτωση ανιχνευτών ημιαγωγών οφείλεται ως επί το πλείστον στην λειτουργία του ADC/MCA, δεδομένου ότι στους σύγχρονους προενισχυτές και ενισχυτές φασματοσκοπία-γ η γραμμικότητα είναι της τάξης του ±0.01%. Συγκεκριμένα, οι αποκλίσεις αυτές συσχετίζονται με το χρόνο μετατροπής (conversion time) που απαιτεί ο MCA για την καταχώρηση των ψηφιοποιημένων παλμών στις θέσεις μνήμης (ενεργειακά κανάλια), με το συνεπακόλουθο φαινόμενο λανθασμένων καταχωρίσεων κυρίως στα ενδιάμεσα ενεργειακά κανάλια. Επιπλέον αλλαγή στην γραμμικότητα του συστήματος μπορούν να προσδώσουν οι μεταβολές στη θερμοκρασία και η μακροχρόνια συνεχή χρήση, ιδιαίτερα σε μετρήσεις περιβαλλοντικών δειγμάτων που είναι μακράς διάρκειας. Εμπειρικά, στους σύγχρονους MCA αναμένεται μετατόπιση 2 καναλιών για αλλαγή θερμοκρασίας 10 °C και μικρού κλάσματος του ενός καναλιού μετά από 24 h συνεχής λειτουργίας σε σταθερή θερμοκρασία [Knoll, 2000].

Παράλληλα με την ενεργειακή βαθμονόμηση πραγματοποιείται και η βαθμονόμηση της διακριτικής ικανότητας. Με τον όρο διακριτική ικανότητα ενός ανιχνευτή, εννοούμε την ικανότητά του να ξεχωρίζει φωτόνια τα οποία έχουν παραπλήσια ενέργεια. Μέτρο της είναι το FWHM, που ορίζεται ως το πλάτος της κατανομής σε ύψος, ακριβώς το μέσο της κορυφής H_o . Ο ορισμός αυτός εμπεριέχει το γεγονός ότι, οποιοδήποτε υπόβαθρο πρέπει να θεωρηθεί αμελητέο σε σχέση με την φωτοκορυφή και μετράται συνήθως σε keV. Θεωρώντας Gaussian κατανομή το FWHM συσχετίζεται με την τυπική απόκλιση της ενέργειας $\sigma_{\rm E}$ με βάση τη σχέση:

$$H = H_o \exp\left(-\frac{\left(E - E_o\right)^2}{2\sigma_E^2}\right) \Rightarrow \ln\left(\frac{H}{H_o}\right) = \frac{\left(E_o - E\right)^2}{2\sigma_E^2} \Rightarrow \ln\left(\frac{H_{1/2}}{H_o}\right) = \frac{\left(E_o - E_{1/2}\right)^2}{2\sigma_E^2}$$

$$\Rightarrow \ln\left(\frac{1}{2}\right) = \frac{\left(\text{FWHM}/2\right)^2}{2\sigma_E^2} \Rightarrow \text{FWHM} = 2\sqrt{2\ln 2}\sigma_E \Rightarrow \text{FWHM} = 2.354\sigma_E$$
(3.9)

Κατά συνθήκη, σε ορισμένες οικογένειες ανιχνευτών (όπως οι σπινθηριστές) χρησιμοποιείται η σχετική διακριτική ικανότητα (relative resolution) R, που σε ορισμένη ενέργεια E ορίζεται ως το πηλίκο FWHM(E)/E. Γενικά, απόσταση 3×FWHM μεταξύ φωτοκορυφών θεωρείται αρκετή ώστε να είναι σαφώς διαχωρισμένες μεταξύ τους, ενώ απόσταση 1×FWHM απαιτεί τεχνικές αποσυνέλιξης φωτοκορυφών. Επιπλέον πέρα από την δυνατότητα διαχωρισμού φωτοκορυφών καλή διακριτική ικανότητα σημαίνει πρακτικά και καλύτερη αναλογία σήματος-θορύβου (signal-to-noise ratio), δεδομένο ότι τα γεγονότα της φωτοκορυφής συγκεντρόνεται σε λιγότερα κανάλια και επικάθονται ευκρινέστερα πάνω από το συνεχές του υπόβαθρου.

Πρακτικά, το FWHM προκύπτει από ίδια ενεργειακά αρχικά φωτόνια που καταγράφονται σε διαφορετικά κανάλια στο φάσμα λόγω αβεβαιοτήτων στο πλαίσιο των διαδικασιών εκπομπής, ανίχνευσης και μέτρησης. Υπό αυτή την έννοια, οι κυριότερες πηγές αβεβαιότητας μπορεί να εντοπιστούν και να συνδυαστούν με κατάλληλο στατιστικό τρόπο ως συνεισφορά στο FWHM σύμφωνα με τη σχέση:

$$FWHM^{2} = FWHM_{I}^{2} + FWHM_{P}^{2} + FWHM_{C}^{2} + FWHM_{F}^{2}$$
(3.10)

όπου καθένας από τους όρους του FWHM αναφέρεται ανάλογα με τον δείκτη στην αβεβαιότητα $_1$ της ενέργειας της εκπεμπόμενης ακτίνας-γ λόγω του εγγενούς πλάτους (intrinsic width) Γ της στάθμης αποδιέγερσης του ραδιενεργού πυρήνα, P στην παραγωγή φορέων ηλεκτρονίων-οπών στον κρύσταλλο του ανιχνευτή, C στην συλλογή φορτίων από τον κρύσταλλο και Ε λόγω ηλεκτρονικού θορύβου από την επεξεργασία των ηλεκτρικών παλμών.

Από τους παραπάνω παράγοντες, η αβεβαιότητα της ενέργειας μιας εκπεμπόμενης ακτίνας-γ από ένα ραδιονουκλίδιο με χρόνο ημιζωής Τ_{1/2} δίνεται από αρχή της αβεβαιότητας του Heisenberg ως FWHM_I = $10^{-5}/T_{1/2}$, που για συνήθη ραδιονουκλίδια είναι < 10^{-6} keV και πρακτικά αμελητέα. Όσον αφορά την αβεβαιότητα στην παραγωγή φορέων ενέργειας στον ανιχνευτή, μία ακτίνα-γ ενέργειας Ε που προσπίπτει στον κρύσταλλο του ανιχνευτή δημιουργεί n φορείς ελάχιστης ενέργειας ε, που αντιστοιχεί στην ενέργεια παραγωγής ενός ζεύγους ηλεκτρονίου-οπής στον ημιαγωγό. Αν η διαδικασία αυτή ήταν καθαρά στατιστική, με την έννοια ότι κάθε μεμονωμένο γεγονός ήταν ανεξάρτητο από όλα τα αλλά, θα ακολουθούσε την κατανομή Poisson και η τυπική απόκλιση κατά την δημιουργία των φορέων θα ήταν ($\sigma_n = \sqrt{n}$). Στην πραγματικότητα όμως η δημιουργία ενός ζεύγος ηλεκτρονίου-οπής αλλάζει τοπικά την κατανομή των ηλεκτρονίων εντός του κρυσταλλικού πλέγματος, επηρεάζοντας τοπικά την πιθανότητα της δημιουργία ενός νέου ζεύγους και παραβιάζοντας την ανεξαρτησία μεταξύ μεμονωμένων γεγονότων. Για το λόγω αυτό εισάγεται ο διορθωτικός παράγοντας Fano (Fano factor) F που ορίζεται ως η παρατηρούμενη διακύμανση του αριθμού των ζευγών ηλεκτρονίωνοπών που δημιουργούνται, διαιρούμενο με την διακύμανση που προβλέπεται από στατιστική Poisson και είναι ένας εμπειρικός παράγοντας της ποιότητας του κρυστάλλου με τιμές από 0 έως 1 (μικρότερες τιμές αντιστοιχούν σε καλύτερη κατάσταση κρυστάλλου άρα και καλύτερη διακριτική ικανότητα). Λαμβάνοντας υπόψη τα παραπάνω, η αβεβαιότητα σε όρους απορροφούμενης από τον κρύσταλλο ενέργειας σε keV δίνεται από την σχέση:

$$\sigma_{E} = \varepsilon \times \sigma_{N} = \varepsilon \times \sqrt{n \times F} = \varepsilon \times \sqrt{(E/\varepsilon) \times F} \Longrightarrow \sigma_{E} = \sqrt{E \times \varepsilon \times F}$$
(3.11)

Συνδυάζοντας τη σχέσεις (3.9) και (3.11), δεδομένου ότι για το Ge μέση τιμή του $\varepsilon = 2.96 \ 10^{-3} \text{ keV}$, τελικά το FWHM_P δίνεται από τη σχέση:

$$FWHM_{\rm P} = 2.354\sqrt{E \times \varepsilon \times F} \Longrightarrow FWHM_{\rm P} = 0.128\sqrt{E \times F}$$
(3.12)

με πειραματικές τιμές του F να κυμαίνονται μεταξύ 0.06 - 0.13 για ανιγνευτές Ge. O παράγοντας αβεβαιότητας στη αργή ή ημιτελή συλλογή του ρεύματος από τον κρύσταλλο συσχετίζεται με ατέλειες, προσμίξεις ή/και παγίδες φορέων στο κρυσταλλικό πλέγμα και έχουν ως αποτέλεσμα την δημιουργία ασυμμετρίας γαμηλών ενεργειών (low-energy tail) στα αριστερά της Gaussian κατανομής των φωτοκορυφών. Το φαινόμενο αυξάνει στους κρυστάλλους μεγαλύτερου μεγέθους και σε ανιχνευτές που έχουν υποστεί έντονη ακτινοβόληση, ειδικότερα στην περίπτωση ατελειών λόγω απομάκρυνσης ατόμων από ταχέα νετρόνια (Frenkel defects). Εμπειρικά, η συνεισφορά στην διακριτική ικανότητα από αυτή την αβεβαιότητα είναι της μορφής (FWHM_C = c·*E*), με την τιμή του παράγοντα c να είναι της τάξης του 10^{-1} ⁴ (π.χ. 0.15 keV στα 1332 keV, δηλαδή < 8% του συνολικού FWHM τυπικού HPGe). Τέλος, ο παράγοντας που συσχετίζεται με τον ηλεκτρονικό θόρυβο αναφέρετε πρακτικά στην αβεβαιότητα του κατώτατου ορίου ρεύματος που αντιλαμβάνονται τα ηλεκτρονικά. Μεταβολή ακόμα και μερικών mV μπορεί να επηρεάσει έντονα το ύψος των μετρούμενων παλμών, με αποτέλεσμα ίδια γεγονότα να καταγωρηθούν σε γειτονικά κανάλια. Πιο ευαίσθητο μέρος του συστήματος είναι η σύζευξη μεταξύ προενισχυτή-ενισχυτή, καθώς οποιαδήποτε αβεβαιότητα μεγεθύνεται από τον ενισχυτή, ενώ και ο χρόνος διαμόρφωσης (shaping time) παλμού επηρεάζει το ύψος του θορύβου. Ο θόρυβος αυτός είναι κοινός σε όλα τα ηλεκτρονικά συστήματα και οφείλεται σε φαινόμενα όπως οι τυχαίες θερμικές δονήσεις των ηλεκτρονίων (Johnson noise) ή τη διακύμανση του DC ρεύματος στις διόδους που προκαλείται από τη στατιστική φύση της διεργασίας παραγωγής ηλεκτρικών παλμών (shot noise). Στην περίπτωση των συστημάτων φασματοσκοπίας, ο ηλεκτρονικός θόρυβος ομαδοποιείται στον παράλληλο θόρυβο (parallel noise), στον θόρυβο σειράς (series noise) και στον θόρυβο flicker (fliker noise) από καθαρά τεχνική άποψη, καθώς διευκολύνει στην διαδικασία επιλογής της σταθεράς χρόνου διαμόρφωσης παλμού του ενισχυτή για την ελαχιστοποίηση του συνολικού θορύβου. Η αβεβαιότητα που εισάγει στον προσδιορισμό της ενέργειας ο ηλεκτρονικός θόρυβος και η συνεπακόλουθη συνεισφορά του στη διακριτική ικανότητα είναι της μορφής (FWHM_F = ε), σταθερή της τάξης του 1 keV και ανεξάρτητη της προσπίπτουσας ακτινοβολίας για όλο το εύρος ενεργειών.

Συνδυάζοντας τις συνεισφορές στην αβεβαιότητα καταγραφής της ενέργειας στο φάσμα, καταλήγουμε στην καθιερωμένη εμπειρική σχέση των Debertin και Helmer:

FWHM =
$$\sqrt{A + B \cdot E}$$
, $\delta \pi o v \varepsilon = \sqrt{A} \kappa \alpha v F = 61.03516 \cdot B$ (3.13)

Η παραπάνω σχέση θεωρεί αμελητέα την ενδογενή αβεβαιότητα στην ενέργειας της ακτινοβολίας-γ, ενσωματώνει την αβεβαιότητα στη συλλογή του ρεύματος από τον κρύσταλλο στον παράγοντα Fano και χρησιμοποιείται για την προσαρμογή των πειραματικών δεδομένων βαθμονόμησης για τον προσδιορισμό του ηλεκτρονικού θορύβου στο σύστημα ανίχνευσης ε και του παράγοντα ποιότητας του κρυστάλλου F [Gilmore, 2008].

Η βαθμονόμηση της απόδοσης του ανιχνευτή HPGe, από την άλλη, έχει να κάνει τόσο με τον ποιοτικό χαρακτηρισμό του όσο και με την ποσοτική μετατροπή των γεγονότων που καταγράφονται σε όλο το εύρος του ενεργειακού φάσματος σε ενεργότητα ραδιονουκλιδίων στο υπό μέτρηση δείγμα. Η σχετική απόδοση, που έχει ήδη αναφερθεί, είναι ένα ποιοτικό χαρακτηριστικό του ανιχνευτή ούτως ώστε να είναι δυνατή η σύγκριση ανάλογων ανιχνευτικών συστημάτων και αναφέρεται σε συγκεκριμένη γεωμετρία. Η ανιχνευτική ικανότητα του συστήματος μπορεί να οριστεί με διαφορετικούς τρόπους και είναι ανάλογη της ενέργειας της ακτινοβολίας. Ως απόλυτη απόδοση φωτοκορυφής (full photo peak efficiency) FEPE ή συνηθέστερα, καταχρηστικά, απόλυτη απόδοση (absolute efficiency) ορίζεται ώς ο αριθμός των γεγονότων που καταγράφονται στην φωτοκορυφή συγκεκριμένης ενέργειας προς τον αριθμό των εκπεμπόμενων από την πηγή φωτονίων. Προφανώς, εξαρτάται από την γεωμετρία μέτρησης και ισούται με το γινόμενο της στερεάς γωνίας πηγής-ανιχνευτή, που εκφράζει το ποσοστό των ισοτροπικά εκπεμπόμενων από την πηγή φωτονίων που τελικά εισέρχονται στον ανιχνευτή, με την εσωτερική (intrinsic) FEPE, που είναι ο αριθμός των γεγονότων που καταγράφονται στην φωτοκορυφή προς τα φωτόνια που εισέρχονται σε αυτόν. Κατά αναλογία, ορίζονται η απόλυτη και εσωτερική συνολική απόδοση (total efficiency) που όμως τώρα αναφέρονται στο συνολικό αριθμό των γεγονότων που καταγράφηκαν οπουδήποτε στο φάσμα (και όχι μόνο στην φωτοκορυφή) για μια συγκεκριμένης ενέργειας ακτινοβολία-γ [Tsoulfanidis, 1995].

Πρακτικά, η απόλυτη απόδοση σε συγκεκριμένη ενέργεια και για μια συγκεκριμένη γεωμετρία μέτρησης είναι αυτή που χρησιμοποιείται για τον ποσοτικό προσδιορισμό της ενεργότητας άγνωστων δειγμάτων και πειραματικά προσδιορίζεται από ραδιενεργές πηγές αναφοράς γνωστής ενεργότητας από τη σχέση:

$$\varepsilon_{\exp}(E) = \frac{cps}{I_{\gamma} \cdot A_{\text{ref}}}$$
(3.14)

όπου cps τα γεγονότα που καταγράφονται στην μονάδα του χρόνου (counts per second) στην φωτοκορυφή της εκπεμπόμενης ακτίνα-γ ενέργειας E, I_{γ} η ένταση

(intensity) ή αλλιώς η πιθανότητα εκπομπής (branching ratio) της ακτίνας-γ κατά την αποδιέγερση του ραδιενεργού πυρήνα και A_{ref} η ενεργότητα του ραδιονουκλιδίου της πηγής αναφοράς που εκπέμπει την ακτίνα-γ. Με τον τρόπο αυτό είναι δυνατό να προσδιοριστεί η απόλυτη απόδοση σε διακριτές ενέργειας, αυτές των εκπεμπόμενων ακτίνων-γ των ραδιονουκλιδίων των πηγών αναφοράς.

Για την επέκταση ή αλλιώς παρεμβολή (interpolation) των αποτελεσμάτων της βαθμονόμησης και σε άλλες ενδιάμεσες τιμές σε όλο το εύρος των ενεργειών έχουν αναπτυχθεί σειρά μαθηματικών εξισώσεων προσαρμογής (fitting functions) των πειραματικών τιμών για τον προσδιορισμό της καμπύλης απόδοσης (efficiency curve) του ανιχνευτή. Οι εξισώσεις που έχουν χρησιμοποιηθεί για τον προσδιορισμό της καμπύλης απόδοσης διαφόρων τύπων ανιχνευτών HPGe και για διάφορες ενεργειακές περιοχές μπορούν να ομαδοποιηθούν στις κατηγορίες [Debertin and Helemer, 1988]:

- Ημι-εμπειρικές (semi-empirical) σχέσεις, όπου αναλυτικές θεωρητικές εξισώσεις αλληλεπίδρασης της ακτινοβολίας-γ με τον κρύσταλλο του ανιχνευτή (ενεργός διατομή σκέδασης Compton, φωτοηλεκτρικού φαινομένου κ.α.) συνδυάζονται με εμπειρικές παραμέτρους, που συνδέονται έμμεσα με τις διαστάσεις του ανιχνευτή και την γεωμετρία μέτρησης. Οι εξισώσεις αυτές είναι περιορισμένης εφαρμογής ανάλογα τον τύπο του ανιχνευτή ενώ παρουσιάζουν μεγαλύτερες αποκλίσεις στις χαμηλές ενέργειες.

- Πολυωνυμικές (polynomial) σχέσεις, που είναι καθαρά μαθηματικές εκφράσεις και η επιλογή της τιμής των ελεύθερων παραμέτρων γίνεται μέσω διαδοχικών αναπροσαρμογών (iterations) της σχέσης στα πειραματικά δεδομένα με ποιοτικό κριτήριο την ελαχιστοποίηση της απόκλισης των θεωρητικών τιμών από τις πειραματικές. Για τους ανιχνευτές HPGe μια πρώτη προσέγγιση είναι η γραμμική εξάρτηση της απόλυτης απόδοσης ε και της ενέργειας Ε στο διπλό λογαριθμικό διάγραμμα, για ενέργειες από 200-2000 keV. Για την διεύρυνση του ενεργειακού εύρους έχουν αναπτυχθεί πολλές πολυωνυμικές σχέσεις, διαφόρων βαθμών (n>2), του $\log(\varepsilon)$ ως προς E, το $\log(E)$, το $\log(1/E)$ ή και συνδυασμούς τους, με εφαρμογή μη γραμμικής προσαρμογής ελαχίστων τετραγώνων. Κύριος στόχος όλων αυτών των εμπειρικών εκφράσεων είναι να πραγματοποιηθεί μια ομαλή σύνδεση της καμπύλης πριν και μετά το τοπικό μέγιστο που εντοπίζεται στην ενεργειακή περιοχή των 100-200 keV, ανάλογα με τα χαρακτηριστικά του ανιχνευτή. Κατά κανόνα, αυξάνοντας τον βαθμό του πολυωνύμου (n>3) βελτιώνεται η ποιότητα της προσαρμογής. Η διαδικασία της αύξησης του βαθμού ελευθερίας των πολυωνύμων, από την άλλη, είναι περιορισμένης αξίας καθώς μεγάλο n μπορεί να οδηγήσει σε μη ρεαλιστικές διακυμάνσεις στις παρεμβαλλόμενες θεωρητικές τιμές της απόλυτης απόδοσης, για το λόγω αυτό και ο αριθμός των πειραματικών σημείων πρέπει να είναι σημαντικά μεγαλύτερος από τον αριθμό των ελεύθερων παραμέτρων.

- Σχέσεις καμπύλωσης (spline), που πρόκειται για μια πιο ευέλικτη μέθοδο προσαρμογής καμπύλων αυθαίρετου σχήματος, καλύπτοντας περιπτώσεις διαφορετικών ημιαγώγιμων ανιχνευτών (Ge(Li), Si(Li), HPGe) και μεγάλο εύρος

ενεργειών (2 keV έως 3 MeV). Αυτή η προσέγγιση βασίζεται σε σετ καμπύλων εξισώσεων οποιουδήποτε βαθμού από κανονικοποιημένες βασικές καμπύλες ζεύγους (B-splines) για αυθαίρετο αριθμό κόμβων (σημείων σύνδεσης) [Janssen, 1990]. Οι ασυνέχειες στην καμπύλη απόδοσης επιτρέπει να αναπαρασταθούν οι αιχμές απορρόφησης των υλικών του ανιχνευτή, ενώ η αβεβαιότητα των θεωρητικών τιμών της απόδοσης υπολογίζεται από τον πίνακα συνδιακύμανσης (covariance matrix) των πειραματικών δεδομένων, λαμβάνοντας υπόψη τα σφάλματα των συσχετιζόμενων δεδομένων [Dias et al, 2004]. Οι συναρτήσεις καμπύλωσης είναι κατάλληλες για την κατασκευή καμπυλών απόλυτης απόδοσης με βάση μεγάλο αριθμό (>40 σημεία) πειραματικών δεδομένων βαθμονόμησης υψηλής ακρίβειας (<2% σχετική απόκλιση).

- Άλλες αναλυτικές (analytical) σχέσεις, που συνδυάζουν πολυωνυμικά εκθετικούς (exponential) ή/και αντίστροφα εκθετικούς (reverse exponential) ως προς την ενέργεια όρους, καλύπτοντας με αυτόν τον τρόπο μεγάλο εύρος ενεργειών με μία μοναδική εξίσωση. Πολλές από αυτές έχουν χρησιμοποιηθεί ευρέως και έχουν αξιολογηθεί συγκριτικά μεταξύ τους [Kis et al., 1998], ενώ έχουν προταθεί και πιο περίπλοκες εξισώσεις όπως πολυπαραμετρικές εκθετικές συναρτήσεις πολυωνυμικών όρων σε συνδυασμό με πλήρη μεθοδολογία βαθμονόμησης [Gunnink and Prindle, 1992], καθώς και πιο ειδικευμένες, όπως συναρτήσεις κατάλληλες για περιβαλλοντικά δείγματα εκτεταμένου όγκου [Vidmar et al., 2001]. Συγκεκριμένα για ομοαζονικούς ανιχνευτές HPGe p-τύπου χρησιμοποιούνται, με επιτυχία για μεγάλο εύρος ενεργειών, απλούστερες εξισώσεις λιγότερων παραγόντων που συνδυάζουν μία θετική και μία αρνητική εκθετική συνάρτηση [Svec, 2008]. Κατά αυτό το απλουστευμένο πρότυπο, στην παρούσα εργασία χρησιμοποιήθηκε η εμπειρική σχέση τεσσάρων ελεύθερων παραμέτρων, ικανοποιητική και για βαθμονομήσεις δειγμάτων εκτεταμένης γεωμετρίας, της μορφής:

$$\varepsilon(E) = aE^b \cdot \left(\frac{1}{10^3 c + E^d}\right) \tag{3.15}$$

Το πρώτο μέρος της εξίσωσης περιγράφει την σχεδόν γραμμική σχέση σε διπλή λογαριθμική κλίμακα απόλυτης απόδοσης-ενέργειας στις υψηλότερες ενέργειες (>150 keV), όπου ο θετικός εκθετικός b συσχετίζεται με τον όγκο του ανιχνευτή και η σταθερά a ισούται πρακτικά με την απόδοση του ανιχνευτή σε δεδομένη γεωμετρία για ενέργεια ίση με τη μονάδα (μονάδες επιλογής). Το δεύτερο μέρος της συνάρτησης είναι ένα απλουστευμένο μοντέλο της απορρόφησης της ακτινοβολίας-γ στα υλικά του ανιχνευτή και πηγής αλλά και του ενδιάμεσου χώρου, ενώ το ακρότατο εντοπίζεται ομαλά στην περιοχή μεταξύ 100 με 120 keV.

Όλες οι μαθηματικές μέθοδοι προσδιορισμού της καμπύλης βαθμονόμησης στερούνται θεωρητικής βάσης και είναι αναμενόμενο, όπως έχει φανεί ακόμα και από διεθνείς διεργαστηριακές συγκρίσεις [Zijp et al., 1986], να μην υπάρχει εν γένει βέλτιστη εξίσωση για όλες τις περιπτώσεις. Γενικά, τα πολυώνυμα υψηλότερου βαθμού δίνουν ποιο ικανοποιητικά αποτελέσματα. Όσον αφορά την στατιστική ποιότητας της προσαρμογής καθώς μπορούν να προβλέψουν όλες τις μικρές

διακυμάνσεις των δεδομένων, χωρίς όμως αυτό να σημαίνει απαραίτητα ότι προσεγγίζουν σωστά την πραγματική καμπύλη, δεδομένου ότι οι διακυμάνσεις αυτές μπορεί να είναι στατιστικές λόγω της αβεβαιότητας των πειραματικών δεδομένων. Για το λόγω αυτό ιδανικά θα πρέπει να λαμβάνεται υπόψη η αβεβαιότητα κάθε πειραματικού σημείου κατά την διάρκεια των μαθηματικών προσαρμογών έτσι ώστε να αποδίδεται στατιστικό βάρος σε κάθε πειραματικό σημείο (weighted fit).

Όσον αφορά την εκτίμηση του σφάλματος των καμπύλων απόδοσης, δεδομένου ότι οι ελεύθερες παράμετροι όλων των εξισώσεων προσαρμογής είναι έντονα σχετιζόμενες, η στατιστική αβεβαιότητα των παραγόντων αυτών δεν είναι ενδεικτική της συνολικής αβεβαιότητας των εκτιμώμενων θεωρητικών τιμών. Επιπλέον η απόκλιση από τις πραγματικές τιμές σε περιοχές που δεν υπάρχουν πειραματικά δεδομένα δεν μπορεί να προσδιοριστεί με κανένα τρόπο, οπότε γίνεται μια εκτίμηση της συσχέτισης με το συστηματικό πειραματικό σφάλμα. Τεχνικές παράλειψης σημείων με μεγάλο αναλογικά σφάλμα ή περιορισμού της περιοχής προσαρμογής θεωρητικών καμπύλων θα πρέπει να γίνεται με προσοχή. Ενδεικτικά, το σφάλμα των θεωρητικών τιμών απόλυτης απόδοσης για βέλτιστες συνθήκες μέτρησης (πολλά πειραματικά σημεία με σχετικό σφάλμα της τάξης του 1%) είναι κατά ελάχιστο 0.5% για ενέργειες 120-1500 keV και μεγαλύτερο του 1% για ενέργειες <120 και >1500 keV.

Στις μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν στα πλαίσια της παρούσας εργασίας λαμβάνοντας υπόψη το σφάλμα των πειραματικών τιμών της απόλυτης απόδοσης, την ποιότητα προσαρμογής (τιμή χ^2) της θεωρητικής καμπύλης (3.15), την μέση αβεβαιότητα των ελεύθερων παραμέτρων, την απόκλιση από τις πειραματικές τιμές και την επαναληψιμότητα των αποτελεσμάτων προσαρμογής, η αβεβαιότητα της απόλυτης απόδοσης εκτιμήθηκε ότι κυμαίνονταν από 2-5%, ανάλογα την ενεργειακή περιοχή. Για διασφάλιση της ακρίβειας και της ομοιογένειας στην διαδικασία υπολογισμού των αποτελεσμάτων θεωρήθηκε σταθερή τιμή σχετικού σφάλματος ίση με 5% σε όλο το εύρος ενεργειών ενδιαφέροντος και για όλες τις σειρές μετρήσεων.

3.3.3.2 Πηγές βαθμονόμησης

Τα ανιχνευτικά συστήματα των εργαστηρίων του ΕΛΚΕΘΕ, ΕΜΠ και ΕΚΕΦΕ βαθμονομήθηκαν πειραματικά με σημειακές και εκτεταμένες πηγές αναφοράς και η μεθοδολογία βαθμονόμησης περιγράφεται αναλυτικά στη συνέχεια. Εξαίρεση αποτελεί το εργαστήριο φασματοσκοπίας-γ του LNGS, όπου η βαθμονόμηση της απόδοσης όλων των ανιχνευτών προσδιορίζεται με προσομοιώσεις Monte Carlo χρησιμοποιώντας τον κωδικό EGS4 (Electrons Gamma Shower) για δείγματα διαφόρων γεωμετριών και διαφορετικών υλικών. Ο κώδικας έχει προηγουμένως δοκιμαστεί με μετρήσεις βαθμονομημένων ραδιενεργών πηγών αναφοράς, σε πολλές διαφορετικές ενέργειες ακτίνων-γ (²²⁶Ra, ¹⁵²Eu για προσδιορισμό και της επίδρασης του φαινομένου αλλεπάλληλων εκπομπών (cascade effect) αλλά και ραδιονουκλίδια μονοενεργειακών ακτίνων-γ). Οι σημειακές και εκτεταμένες πηγές τοποθετήθηκαν σε διαφορετικές θέσεις στις προσόψεις και τις πλευρές του κρυστάλλου των ανιχνευτών. Η ακρίβεια του κώδικα σύμφωνα με τις μετρήσεις των βαθμονομημένων πηγών κυμαίνεται από 10-15%, ανάλογα με τη γεωμετρία, για εύρος ενεργειών φυσικής ακτινοβολίας-γ [Arpesella, 1996]. Στη συνέχεια παρατίθενται οι βαθμονομήσεις διαφόρων γεωμετριών που υλοποιήθηκαν:

- Σημειακές πηγές

Πρώτο βήμα στην βαθμονόμηση των ανιχνευτών HPGe είναι η χρήση σημειακών πηγών ακτινοβολίας-γ που καλύπτουν το ενεργειακό εύρος ενδιαφέροντος – περίπου 40-2000 keV για περιβαλλοντικά δείγματα – και πραγματοποιείται για τον έλεγχο της κατάστασης λειτουργίας του συστήματος ανίχνευσης. Τυπικά, η γεωμετρία μέτρησης των σημειακών πηγών είναι σε απόσταση 25 cm από το κέντρο της πρόσοψης του κυλινδρικού κρυστάλλου Ge, ούτως ώστε να διασφαλιστεί η ελαχιστοποίηση της επίδρασης των πεπερασμένων διαστάσεων της πηγής (μικρή στερεά γωνία) και του φαινομένου πραγματικά συμπτωτικών αθροίσεων (true coincidence summing) φωτοκορυφών σε πηγές εκπομπής αλλεπάλληλων ακτίνων-γ.

Εν προκειμένω οι πηγές αναφοράς που χρησιμοποιήθηκαν ήταν ²⁰⁷Bi (5.2±0.1 μC στις 15/2/06) και ¹⁵²Eu (2.10±0.05 μC στις 29/10/2009 με πρόσμειξη του ραδιοϊσοτόπου ¹⁵⁴Eu σε αναλογία 94% : 6%), και παρασκευάστηκαν στο Εργαστήριο Ραδιοχημείας του ΕΚΕΦΕ "Δημόκριτος" με έγχυση υγρού διαλύματος ²⁰⁷Bi και ¹⁵²Eu/¹⁵⁴Eu, αντίστοιχα, στο κέντρο πλαστικών δισκίων μικρού πάχους (2 mm), ούτως ώστε οι ενδοαπορροφήσεις να είναι αμελητέες. Στις βαθμονομήσεις αξιοποιήθηκαν οι ισχυρότερες ακτίνες-γ των πηγών αναφοράς, όσον αφορά την πιθανότητα εκπομπής τους, ώστε να καλύπτεται το επιθυμητό ενεργειακό εύρος και να παρουσιάζουν καλή στατιστική (Παράρτημα 1).



Σχήμα 3.26. Πειραματικές τιμές και καμπύλες απόλυτης απόδοσης των ανιχνευτών συστημάτων HPGe για σημειακή πηγή σε απόσταση 25 cm από την πρόσοψη του κρυστάλλου ανίχνευσης.

Από τις καμπύλες της απόλυτης απόδοσης φωτοκορυφής των τριών ανιχνευτών HPGe που χρησιμοποιήθηκαν, προκύπτει ότι ο GEMFX (50%) με το υπέρλεπτο παράθυρο C παρουσιάζει 4πλάσια απόδοση στις χαμηλές ενέργειας (<100 keV) από τον αντίστοιχο με Al που οι αποδόσεις τους συγκλίνουν μετά το 1 MeV, ενώ υπερτερεί ακόμα και από αυτόν με μεγαλύτερο όγκο (ονομαστικής σχετικής απόδοσης 80%) μέχρι τα 250 keV. Παράλληλα, για τους ανιχνευτές της Canberra που διαφέρουν μόνο ως προς τον όγκο, ο μεγαλύτερος παρουσιάζει σταθερά υψηλότερη απόδοση κατά ένα παράγοντα 0.8 και 0.5 για ενέργειας κάτω και πάνω από τα 100 keV, αντίστοιχα.





Με την ενεργειακή βαθμονόμηση ελέγχθηκε η απόκλιση των ανιχνευτικών διατάξεων από την γραμμικότητα, και πρακτικά προκύπτει από τη διαφορά των

θεωρητικών τιμών ενέργειας της καμπύλης προσαρμογής από τις τιμές των πειραματικών σημείων. Από την σύγκριση των διαγραμμάτων γραμμικότητας φαίνεται και η διαφορά στην ποιότητα των MCA μεταξύ των συστημάτων ανίχνευσης στα διαφορετικά εργαστήρια, ενώ από τα διαγράμματα εξάρτησης του FWHM από την ενέργεια προσδιορίζονται επιπλέον χαρακτηριστικά όπως ο ηλεκτρονικός θόρυβος, ο Fano-factor και η σχετική διακριτική ικανότητα στα 1332.5 keV. Τα χαρακτηριστικά των ανιχνευτών όπως προσδιορίστηκαν πειραματικά από τις βαθμονομήσεις (σημειακή πηγή στα 25 cm) και τις καμπύλες προσαρμογής (3.13) και (3.15) συνοψίζονται στο πίνακα που ακολουθεί.

Ανιχνευτής	Σχετική Απόδοση (%)	FWHM (keV) στα 1332.5 keV	Παράγοντας Fano <i>F</i>	Ηλεκτ/κός θόρυβος ε (keV)
GEM-FX8530P4, Ortec	46.5 ± 2.3	2.29 ± 0.26	0.16 ± 0.2	1.30 ± 0.07
GC5021, Canberra	47.9 ± 1.7	2.48 ± 0.43	0.18 ± 0.3	1.53 ± 0.13
GC8023, Canberra	73.4 ± 1.4	2.26 ± 0.31	0.17 ± 0.2	1.21 ± 0.11

π' 20	Π '	,	,	,	,	IIDO
Πινακάς 3.9	Πειραματικα	τεγνικα	γαρακτηριστικα	$\tau \omega v \tau \omega \omega v$	συστηματων	HP(ie.
110000000000000000000000000000000000000	110100000000000000000000000000000000000	10/ 11/01	Nop our inpro tittor	100 / <i>ip</i> 100 /	o o o unpromos r	

- Εκτεταμένες πηγές ιζήματος

Μετά την επισκόπηση των τεχνικών χαρακτηριστικών και της κατάστασης λειτουργίας των ανιχνευτικών συστημάτων HPGe, τα συστήματα βαθμονομήθηκαν ως προς την απόλυτη απόδοσή τους για τις μετρήσεις ιζήματος. Χρησιμοποιήθηκαν 2 γεωμετρίες μέτρησης, των περίπου 65 gr (65.35 cm³ όγκος, 68 mm διάμετρος, 18 mm ύψος) και, για την περίπτωση που δεν υπήρχε αρκετό διαθέσιμο δείγμα, των περίπου 5 gr (5.41 cm³ όγκος, 36.22 mm διάμετρος, 5.25 mm ύψος). Οι βαθμονομήσεις πραγματοποιούνταν εντός της θωράκισης του ανιχνευτή για να μειωθεί η επίδραση της ακτινοβολίας υποβάθρου και συνεπώς να μειωθεί και ο χρόνος καταγραφής, εφόσον είχε διαπιστωθεί ότι η συνεισφορά στα φάσματα βαθμονόμησης λόγω σκεδάσεων της ακτινοβολίας-γ της πηγής στη θωράκιση ήταν αμελητέα. Σε κάθε περίπτωση, φάσμα υποβάθρου καταγράφονταν αμέσως μετά (ή πριν) την καταγραφή του φάσματος βαθμονόμησης και ακριβώς με τις ίδιες ρυθμίσεις, έτσι ώστε να αποφευχθεί οποιαδήποτε τυχαία μετατόπιση καναλιών στα δύο φάσματα. Το φάσμα υποβάθρου ήταν για την ίδια γεωμετρία με αυτή της βαθμονόμησης συμπληρωμένης όμως με ουδέτερο υλικό μηδενικής εκπομπής ακτινοβολίας-γ (talk-powder, πυκνότητας $\rho=0.8$ gr/cm³) ώστε να μην συνεισφέρει επιπλέον στο φάσμα και παράλληλα να προσομοιάζει την απορρόφηση της ακτινοβολίας υποβάθρου από το υλικό του δείγματος. Οι βαθμονομήσεις πραγματοποιούνταν σε κάθε περίπτωση αλλαγής των ρυθμίσεων καταγραφής, μεταβολής της υψηλής τάσης ή επαναλειτουργίας ενός ανιχνευτή, αλλά και κατά τακτά διαστήματα για την ελαχιστοποίηση της αβεβαιότητας στην απόδοση του ανιχνευτή. Παράλληλα πραγματοποιούνταν ενεργειακή βαθμονόμηση και προσδιορισμός της καμπύλης του FWHM, για χρήση τους στην ανάλυση των φασμάτων βαθμονόμησης και των πειραματικών φασμάτων.

Όλες οι βαθμονομήσεις πραγματοποιήθηκαν με πηγές αναφοράς $^{152}\text{Eu}/^{154}\text{Eu}$ (αναλογίας 93% : 7%, ενεργότητας (6700±200) : (504±15) Bq στις 20/02/2001 και πυκνότητας p=0.02 g/cm³ για τη μεγάλη γεωμετρία και αναλογίας 99.4% : 0.6% ενεργότητας (1380±30) : (8.1±2) Bq στις 14/10/2009 πυκνότητας p=1.465 g/cm³ για τη μικρή γεωμετρία) κατασκευασμένες και βαθμονομημένες στο Εργαστήριο Ραδιοχημείας του ΕΚΕΦΕ "Δημόκριτος", ειδικά για την μέτρηση ιζημάτων, με τον ακόλουθο τρόπο και στις δύο περιπτώσεις:

Ποσότητα 0.5 ml πρότυπου υγρού διαλύματος 152 Eu/ 154 Eu (από την Amersham Co.) συλλέχθηκε με σύριγγα μεγάλης διαμέτρου, τοποθετείται σε απόσταση 25 cm από την επιφάνεια του ανιχνευτή HPGe και αφού μετρήθηκε, προσδιορίστηκε και πειραματικά η ενεργότητά του θεωρώντας σημειακή γεωμετρία (η διόρθωση ενεργότητας λόγω απόκλισης από τη σημειακή γεωμετρία μετά από αναλυτικούς υπολογισμούς [Gardner et al., 1980] βρέθηκε < 0.1%). Κατόπιν, το περιεχόμενο της σύριγγας εγχύθηκε σποραδικά σε μικρές ποσότητες, ώστε να διαχυθεί ομοιόμορφα, σε αδρανές μη ραδιενεργό υλικό που είχε τοποθετηθεί μέσα σε πλαστικό κοντέινερ ταυτόσημο με αυτό των δειγμάτων ιζήματος. Στη συνέχεια, η ενεργότητα του υπολείμματος που παραμένει στη σύριγγα μετρήθηκε προκειμένου να προσδιοριστεί η πραγματική ενεργότητα που εγχύθηκε μέσα στο αδρανές υλικό. Τέλος, η πηγή τοποθετήθηκε σε γεωμετρία επαφής μπροστά από τον ανιχνευτή και καταγράφηκε φάσμα (4000 s), ενώ ένα αντίστοιγο φάσμα καταγράφηκε αφού η πηγή περιστράφηκε έτσι ώστε η πίσω όψη να είναι σε επαφή με το παράθυρο του ανιγνευτή. Η διαφορά στις εντάσεις για τα δύο φάσματα ήταν μικρότερη από 5%, εξασφαλίζοντας έτσι ότι η κατανομή της ραδιενέργειας στο αδρανές υλικό ήταν σχεδόν ομογενής. Το γεγονός ότι η ενδοαπορρόφηση στο αδρανές υλικό προσεγγίζει αυτή των δειγμάτων σε συνδυασμό με την ομοιογένεια της πρότυπης πηγής και την κοινή τους γεωμετρία, εξασφαλίζει ότι η απόδοση του ανιγνευτικού συστήματος για την πηγή αναφοράς και τα δείγματα αναμένεται να είναι ίδια [Tsabaris et al., 2007].

Η πειραματική βαθμονόμηση με πηγή Ευ πρακτικά περιλαμβάνει την καταγραφή δύο φασμάτων της πηγής αναφοράς και από τις δύο όψεις (τυπικά 30 m to καθένα), την άθροιση των δύο φασμάτων και την αφαίρεση φάσματος υποβάθρου (τυπικά 24 h για αποδεκτή στατιστική) μετά από χρονική κανονικοποίηση. Η απόλυτη απόδοση ανίχνευσης ως συνάρτηση της ενέργειας προσδιορίζονταν από την ανάλυση των δέκα πιο έντονων φωτοκορυφών ακτίνων-γ που ανήκουν στο ¹⁵²Eu, καθώς ύπαρξη ¹⁵⁴Eu στην πηγή σε πολύ μικρότερη αναλογία είναι αποτέλεσμα της αδυναμίας να παραχθεί ¹⁵²Eu μεγαλύτερης καθαρότητας. Δεδομένου ότι η τυχαία άθροιση φωτοκορυφών (random summing) στα πειραματικά φάσματα βαθμονόμησης ήταν αμελητέα λόγω της σχετικά χαμηλής έντασης των πηγών αναφοράς και των κατάλληλων ρυθμίσεων στον ενισχυτή ώστε να αποφεύγεται η ταυτόχρονη καταγραφή διαδοχικών παλμών (pile-up), λαμβάνονταν υπόψη διορθώσεις της απόλυτης απόδοσης που έχουν να κάνουν μόνο με: (α) την πραγματική συμπτωτική άθροιση φωτοκορυφών και (β) την διαφορά στην ενδοαπορρόφηση μεταξύ δείγματος και πηγής βαθμονόμησης.

Η διόρθωση της πραγματικής συμπτωτικής άθροισης ήταν θεμελιώδους σημασίας στις μετρήσεις βαθμονόμησης καθώς το φαινόμενο: (α) αυξάνεται με την ελαχιστοποίηση της απόστασης μεταξύ πηγής ανιχνευτή και γίνεται μέγιστο για την γεωμετρία επαφής που χρησιμοποιήθηκε, (β) γίνεται πιο έντονο για εκτεταμένη γεωμετρία πηγής, (γ) εμφανίζεται σε ραδιονουκλίδια με πολλαπλούς τρόπους αποδιέγερσης όπως το ¹⁵²Ευ και (δ) χειροτερεύει για ανιχνευτές με λεπτό παράθυρο (όπως ο GEM-FX8030P4) καθώς περισσότερες ακτίνες-Χ που μπορούν να συμβάλουν στην άθροιση διεισδύουν στον ενεργό όγκο του ανιχνευτή. Πρέπει να σημειωθεί δε ότι το φαινόμενο είναι ανεξάρτητο του ρυθμού καταγραφής γεγονότων (counting rate) άρα της έντασης της πηγής, ενώ κατά βάση οι διορθώσεις είναι μεγαλύτερες για τις πιο έντονες φωτοκορυφές και διορθωτικοί παράγοντες της απόδοσης μεγαλύτεροι του 1 καθώς πειραματικές φωτοκορυφές είναι μικρότερες των αναμενόμενων (εξαίρεση αποτελούν φωτοκορυφές με επαυξημένη άθροιση (summing in) γεγονότων όπως η 1085.84 keV του ¹⁵²Eu). Ο πειραματικός προσδιορισμός των διορθωτικών παραγόντων πραγματικής συμπτωτικής άθροισης $f_s(E_i)$ για κάθε φωτοκορυφή i βαθμονόμησης πραγματοποιήθηκε για συγκεκριμένη γεωμετρία και ανιχνευτή με διαδοχική μέτρηση της πηγής για απόσταση μηδενικής πρακτικά συμπτωτικής άθροισης και για την γεωμετρία επαφής πηγής-παράθυρου του ανιχνευτή [Debertin and Schotzig, 1979]. Πρακτικά, με τον τρόπο αυτό προσδιορίζεται η ελάττωση της έντασης της ακτινοβολίας σύμφωνα με το νόμο του αντιστρόφου τετραγώνου (inverse square law), δεδομένου ότι η αύξηση της επιφάνειας της σφαίρας (4πr²) μέσω της οποίας διαδίδεται η ακτινοβολία είναι ανάλογη της αύξησης της απόστασης r πηγής-ανιχνευτή. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα ο ρυθμός των κρούσεων μιας μεμονωμένης ακτίνας-γ να πέφτει επί ένα παράγοντα 1/r² της αρχικής του τιμής και ακολούθως η ένταση της αθροιστικής κορυφής δύο ακτίνων να πέφτει επί ένα παράγοντα $(1/r^2) \times (1/r^2) = 1/r^4$, εφόσον η κορυφή εξαρτάται από την πιθανότητα να ανιχνευθούν ταυτόχρονα οι δύο ακτίνες. Οι διορθωτικοί παράγοντες fs υπολογίστηκαν και με καθαρά μαθηματικό τρόπο, όπως περιγράφεται αναλυτικά στο επόμενο κεφάλαιο, με χρήση κατάλληλου κώδικα και εφόσον τα αποτελέσματα είχαν ικανοποιητική απόκλιση με τις πειραματικές τιμές, υπολογίστηκαν με τον ίδιο τρόπο και οι διορθωτικοί παράγοντες για όλους τους συνδυασμούς ανιχνευτή-πηγής βαθμονόμησης.

Όσον αφορά τις διορθώσεις λόγω διαφορετικής ενδοαπορρόφησης στο υλικό της πηγής βαθμονόμησης και των δειγμάτων, η διαφορά στην πυκνότητα είναι ο μόνος ουσιαστικός παράγοντας διαφοροποίησης. Αυτό γιατί, σε κάθε περίπτωση το υπό μέτρηση υλικό είναι εξίσου κορνιοτοποιημένο, άρα δεν υπάρχει μορφολογική διαφορά, και οι διαφορές στη σύστασή επηρεάζουν ελάχιστα τον συντελεστή εξασθένησης της ακτινοβολίας-γ για ενέργειες πάνω από 100 keV [Berger and Hubell, 1995], όπως έχει διαπιστωθεί και πειραματικά [Petropoulos et al., 2002], Επιπλέον, έχει διαπιστωθεί πειραματικά ότι 0 παράγοντας διόρθωσης ενδοαπορρόφησης για δεδομένη σύσταση παρουσιάζει αρνητικά γραμμική εξάρτηση με την πυκνότητα του δείγματος και λογαριθμική εξάρτηση με την ενέργεια της εκπεμπόμενης ακτίνας-γ [Boshkova and Minev, 2001]. Συνυπολογίζοντας τα παραπάνω και δεδομένου ότι τα δείγματα ιζημάτων που μετρήθηκαν είχαν πυκνότητες μεταξύ 0.6-1.6 gr/cm³ πραγματοποιήθηκε διόρθωση των πειραματικών τιμών απόλυτης απόδοσης για πυκνότητα 1 gr/cm³, ίδια με αυτή για το φάσμα υποβάθρου, με εκτιμώμενο σφάλμα <5% για όλες τις διαφορετικές πυκνότητες και ενέργειες. Οι συντελεστές διόρθωσης f_a για τις ενέργειες *E* των φωτοκορυφών του ¹⁵²Eu που χρησιμοποιήθηκαν στην βαθμονόμηση προέκυψαν εφαρμόζοντας την εμπειρική σχέση [Ramos-Lerate et al. 1998]:

$$f_{a}(E) = a' \cdot e^{(\ln E - b')^{2}/c'} \cdot e^{-(a + b \ln E)}$$
(3.16)

με a'= 1.471, b'= 1.793, c'= -120.842, a= 0.672, b= -0.075. Όπως και στην περίπτωση του διορθωτικού παράγοντα f_s και οι παράγοντες διόρθωσης της ενδοαπορρόφησης f_a υπολογίστηκαν για όλους τους ανιχνευτές που χρησιμοποιήθηκαν και μαθηματικά με την εφαρμογή κώδικα μεταφοράς απόδοσης (efficiency transfer) δίνοντας αντίστοιχα αποτελέσματα.

Παράλληλα, χρησιμοποιήθηκαν και εκτεταμένες πηγές ⁴⁰Κ για δύο γεωμετρίες με ενεργότητα 1133.3±0.1 και 142±16 Bq για την μεγάλη και την μικρή γεωμετρία, αντίστοιγα. Δεδομένου ότι είναι μακρόβιο ραδιονουκλίδιο ($T_{1/2} = 1.28 \times 10^9$ y), με πυκνότητα περίπου ίδια με την μέση πυκνότητα των δειγμάτων (ρ=1.07 gr/cm³) η απόδοση δεν θα παρουσιάζει μεταβολές. Οι πηγές ήταν κορνιστοποιημένο άλας KCl και η ενεργότητά τους προσδιορίστηκε από την ακριβή μέτρηση του βάρους τους και την μετατροπή τους σε Bq, δεδομένου ότι το ⁴⁰Κ βρίσκεται σε η στοιγειομετρική αναλογία 0.0117% στο φυσικό κάλιο (επομένως 1 g KCl περιέχει 6.136 mg ή 16.269 Bq 40K). Τα πειραματικά φάσματα βαθμονόμησης ήταν 1 h καθώς παρείχαν ικανοποιητική στατιστική. Οι πρότυπες πηγές 40Κ προσφέρουν τόσο την δυνατότητα πειραματικού υπολογισμού της απόδοσης στην ενέργεια της εκπεμπόμενης ακτίνας-γ στα 1460.82 keV όσο και έναν επιπλέον διορθωτικό παράγοντα για τον ακριβέστερο προσδιορισμό της εμπειρικής σχέσης (3.16). Συγκεκριμένα, εφαρμόζοντας τις διορθώσεις που περιγράφηκαν προηγουμένως στις πειραματικές τιμές απόδοσης των φωτοκορυφών του ¹⁵²Eu και προσαρμόζοντας την καμπύλη της σχέσης (3.15) προκύπτει μία εκτιμούμενη τιμή απόδοσης για την 1460.82 keV φωτοκορυφή του ⁴⁰Κ. Ο λόγος της πειραματικής προς την εκτιμούμενη τιμή δίνει ένα διορθωτικό παράγοντα ⁴⁰K f_K που μπορεί να χρησιμοποιηθεί για την κατακόρυφη, ως προς την απόδοση, μετατόπιση όλης της καμπύλης βαθμονόμησης, δηλαδή την βέλτιστη προσαρμογή του συντελεστή α' της σχέσης (3.16) στα πειραματικά δεδομένα που εκφράζει και την βελτιστοποίηση της θεωρητικής προσαρμογής στα ιδιαίτερα χαρακτηριστικά του ανιχνευτικού συστήματος.

Συνδυάζοντας όλους τους διορθωτικούς παράγοντες, η τιμές της απόλυτης απόδοσης για τις i φωτοκορυφές του ¹⁵²Ευ που χρησιμοποιούνται στην βαθμονόμηση δίνονται από τη σχέση:

$$\mathcal{E}_{\exp}^{152\text{En}}(E_i) = \mathbf{f}_s(E_i) \cdot \mathbf{f}_{\mathrm{K}} \cdot \mathbf{f}_{\mathrm{a}}(E) \cdot \frac{cps}{I_{\gamma} \cdot A_{\mathrm{ref}}}$$
(3.17)

Η παραπάνω μεθοδολογία βαθμονόμησης είναι επιτυχημένη για την ενεργειακή περιοχή μετά το μέγιστο της καμπύλης απόδοσης, όμως τα αποτελέσματά της για την περιοχή της εκθετικής μείωσής της κάτω από τα 100 keV δεν μπορεί να θεωρηθεί αξιόπιστη λόγω της απουσίας πειραματικών δεδομένων. Για το λόγω αυτό χρησιμοποιήθηκε το πρότυπο δείγμα ΙΑΕΑ-385 από την Διεθνή Επιτροπή Ατομικής Ενέργειας (International Agency of Atomic Energy, IAEA) στα πλαίσια διεθνούς άσκησης αλληλοβαθμονόμησης εργαστηρίων φασματοσκοπίας [ΙΑΕΑ, 2005b]. Το πρότυπο δείγμα ήταν φυσικό ίζημα, χαμηλής ενεργότητας και ως εκ τούτου η στατιστική των πειραματικών δεδομένων ήταν χαμηλή και ο απαιτούμενος χρόνος μέτρησης ικανοποιητικός (~24 h). Πρακτικά, δημιουργήθηκαν δύο πηγές αναφοράς και αξιοποιήθηκε μόνο η φωτοκορυφή στα 46.5 keV του ²¹⁰Pb (ενεργότητας 2.74±0.33 και 0.18±0.02 Bq στις 1/1/1996 και πυκνότητας 1.18 και 0.96 g/cm³, για την μεγάλη και μικρή γεωμετρία αντίστοιχα), καθώς το ραδιονουκλίδιο αυτό είναι ιδιαίτερου περιβαλλοντικού ενδιαφέροντος και δεν μπορούσαν να αναλυθούν με αξιοπιστία φωτοκορυφές άλλων ραδιονουκλιδίων σε αυτή την ενεργειακή περιοχή (<100 keV).

Συνδυάζοντας όλες τις παραπάνω μετρήσεις και εφαρμόζοντας την εξίσωση (3.15) προσδιορίζονται οι πειραματικές καμπύλες βαθμονόμησης για την ενεργειακή περιοχή ενδιαφέροντος (45-1461 keV). Χαρακτηριστικές καμπύλες βαθμονόμησης διαφόρων γεωμετριών, ανιχνευτών και εργαστηρίων στο Σχήμα 3.28.



Σχήμα 3.28. Πειραματικές τιμές και καμπύλες απόλυτης απόδοσης των ανιχνευτών συστημάτων HPGe για μικρή και μεγάλη γεωμετρία ιζήματος σε επαφή με την πρόσοψη του κρυστάλλου.

Κατά την διάρκεια των μετρήσεων, δόθηκε η δυνατότητα της παρασκευής μιας ακόμα πηγής αναφοράς. Πρόκειται για δείγμα μεσοζωικού ιζηματογενούς πετρώματος από τεκτονισμένο πλούσιο σε οργανικό υλικό φωσφορικό ασβεστόλιθο

(tectonized/reprocessed organic-rich phosphatized limestones) $\pi o \upsilon \sigma \upsilon \lambda \lambda \epsilon \gamma \theta \eta \kappa \epsilon \alpha \pi \phi$ την περιοχή του Περίβλεπτου της Ηπείρου, ΒΔ Ελλάδα. Το παραπάνω οργανικό (πισσώδες) υλικό, που παρουσίαζε ιδιαίτερα υψηλή ραδιενεργό εκπομπή κατά την επισκόπηση του με ανιγνευτή Geiger-Muller, απομονώθηκε τμηματικά από το υπόλοιπο πέτρωμα και δειγματοποιήθηκε για περαιτέρω φασματομετρία-γ σε μεγάλη γεωμετρία ιζήματος. Το δείγμα (PER2B) που προέκυψε μετρήθηκε στον βαθμονομημένο ανιχνευτή GC5021 στο εργαστήριο του ΕΜΠ για 24 h, όπου και διαπιστώθηκε ιδιαίτερα έντονη παρουσία των ραδιονουκλιδίων των φυσικών σειρών του 238 U και 235 U, ενώ η συνεισφορά της σειράς του 235 Th και των υπόλοιπων ραδιονουκλιδίων ήταν πολύ χαμηλή. Η ενεργότητα του ²³⁸U, μετά την απαραίτητη διόρθωση πυκνότητας στα δεδομένα της βαθμονόμησης, προσδιορίστηκε στα 7700±425 Bq/kg από τις φωτοκορυφές των θυγατρικών του ραδιονουκλιδίων ^{234m}Pa στα 1001 keV, του 234 Th at 63.3 keV and 214 Bi στα 934 keV, με σύμφωνες στα όρια του σφάλματος τιμές επιβεβαιώνοντας με τον τρόπο αυτό ότι η σειρά ήταν αδιατάρακτη. Η ενεργότητα του 235 U προσδιορίστηκε στα 322 ± 24 Bq/kg από τις φωτοκορυφές του στα 143.8 keV, 163.4 keV και 205.3 keV και ακολουθούσε, όπως αναμένονταν από την ορυκτολογική φύση του δείγματος, την ραδιοϊσοτοπική αναλογία 238 U/ 235 U στο φυσικό U (99.3%:0.7%), γεγονός που επιβεβαιώθηκε και ανεξάρτητα από την ανάλυση της διπλής φωτοκορυφής του με το 226 Ra στα 186 keV θεωρώντας δεδομένη την διαρκή ραδιενεργό ισορροπία (secular equilibrium).



Σχήμα 3.29. Το πειραματικό φάσμα του δείγματος PER2B, στο οποίο βρέθηκαν υψηλές συγκεντρώσεις U και μετρήθηκαν οι χαρακτηρίστηκες φωτοκορυφές του ^{238}U (1001 keV του 234m Pa, 63.3 keV του 234 Th και 934 keV του 214 Bi) και του ^{235}U (143.8 keV και 163.4 keV).

Η περιεκτικότητα του δείγματος σε φυσικές ακτινίδες προσδιορίστηκε εναλλακτικά και με τη μέθοδο φασματομετρίας μάζας ICP-MS μετά από σύντηξη LiBO₂/LiB₄O₇ και διάλυση 0.2 g δείγματος με HNO₃. Η περιεκτικότητα σε U με τη

μέθοδο της φασματομετρίας μάζας προσδιορίστηκε στα 648 ppm και ήταν σε συμφωνία με την τιμή των 626±35 ppm από την μέθοδο της φασματοσκοπίας-γ, λαμβάνοντας υπόψη ότι 1 Bq/kg²²⁶Ra ή ²¹⁴Bi αντιστοιχούν σε 81300 ppm U [IAEA, 1989], δίνοντας με αυτό τον τρόπο μια ακόμα επιβεβαίωση της αξιοπιστίας των αποτελεσμάτων. Αξίζει να σημειωθεί ότι η τιμή αυτή είναι μία από τις μεγαλύτερες παγκοσμίως τιμές για ουρανιούχους φωσφορικούς ασβεστόλιθους ή/και ιζηματογενείς φωσφόρους [Tzifas, 2014].

Τελικά, το δείγμα PER2B χρησιμοποιήθηκε ως πηγή αναφοράς 238 U/ 235 U (ενεργότητας (897±50) : (38±3) Bq στις 6/12/2011 και πυκνότητας ρ= 1.78 g/cm³), δίνοντας την δυνατότητα για ακριβέστερο, σε σχέση με την πηγή αναφοράς 210 Pb (δείγμα IAEA-384), προσδιορισμό της καμπύλης βαθμονόμησης στις χαμηλές ενέργειες, λόγω της μεγαλύτερης ενεργότητάς του και το πλήθος των φωτοκορυφών αναφοράς για ενέργειας κάτω από τα 100 keV. Φωτοκορυφές μεγαλύτερων ενεργειών δεν αξιοποιήθηκαν στις βαθμονομήσεις λόγω φαινομένων προσθετικών αθροίσεων, ενώ πραγματοποιήθηκε και μεταφορά των πειραματικών τιμών απόδοσης για προγραφηκαν προηγουμένως.





Πρακτικά, η πηγή ²³⁸U/²³⁵U χρησιμοποιήθηκε σε μια μόνο σειρά μετρήσεων, αυτή των επιφανειακών δειγμάτων από την περιοχή του Σαρωνικού, στο ανιχνευτικό σύστημα GEM-FX8530P4 του ΕΛΚΕΘΕ υπό χαμηλότερη τάση λειτουργίας (3.8 kV αντί της ονομαστικής στα 4.8 kV) λόγω υπολειτουργίας του προενισχυτή του

ανιχνευτή. Μικρότερη τάση λειτουργίας οδηγεί σε και σε ελλιπή συλλογή ελεύθερων φορέων στις p- και n- επαφές του κρυστάλλου άρα και μικρότερη περιοχή απογύμνωσης στα άκρα του ανιχνευτή. Αυτό είχε σαν αποτέλεσμα η απόλυτη απόδοση να εμφανίζεται συστηματικά μειωμένη, με την απώλεια να αυξάνεται καθώς μειώνεται η ενέργεια της ακτινοβολίας.

Συγκρίνοντας την καμπύλη απόδοσης με αυτή κατά την λειτουργία του ανιχνευτή με πλήρη τάση αλλά και με την προσαρμοσμένη καμπύλη σε βιβλιογραφικά πειραματικά δεδομένα – μετά από μεταφορά τους στη ακριβή γεωμετρία μέτρησης με χρήση συντελεστών διόρθωσης – για πανομοιότυπο ανιχνευτή και γεωμετρία [Kayser and Twomey, 2007], παρατηρείται μείωση από 18% (στα 1461 keV) έως 60% (στα 26 keV) στην απόλυτη απόδοση. Η απόκλιση στις χαμηλές ενέργειες μεταξύ βιβλιογραφικής και πειρατικής καμπύλης για πλήρη τάση λειτουργίας οφείλεται σε πιθανή απόκλιση στην πυκνότητα του δείγματος αναφοράς, όπου δεν υπήρχε σχετική πληροφορία.

Όσον αφορά την γεωμετρία μέτρησης ¹³⁷Cs με AMP, η βαθμονόμηση πραγματοποιούνταν με πηγή αναφοράς ¹³⁴Cs. Δεδομένου ότι το ¹³⁴Cs έχει σχετικά μικρό χρόνο ημιζωής (T_{1/2}= 2.065 y) πηγές αναφοράς κατασκευάζονται ανά τακτά χρονικά διαστήματα (~1 το χρόνο) έτσι ώστε η ενεργότητά τους να μην είναι ιδιαίτερα χαμηλή τη στιγμή της βαθμονόμησης. Οι μετρήσεις πραγματοποιούνται με την πλευρά που έχει καθιζάνει το AMP να βρίσκεται σε επαφή με το παράθυρο του ανιχνευτή, τόσο στην περίπτωση της πηγής αναφοράς όσο και των προσυγκεντρωμένων δειγμάτων, λόγω της μεγαλύτερης στερεάς γωνίας αυτής της διάταξης άρα και της απόδοσης της μέτρησης. Η μέθοδος παρασκευής των πηγών είναι η ακόλουθη:

Προκατασκευασμένη δόση 1 ml διαλύματος ¹³⁴Cs ενεργότητας 2 Bq, εγχέεται στο κοντέινερ της μεγάλης γεωμετρίας μέτρησης ιζήματος που περιέχει 15 g AMP. Το φιαλίδιο της δόσης ξεπλένεται πολλές φορές με απιονισμένο νερό που επίσης εγχέεται στη γεωμετρία μέτρησης, ούτως ώστε η ποσότητα του εναπομένοντος στα τοιχώματα ¹³⁴Cs να είναι αμελητέα. Ποσότητα περίπου 33 ml είναι αρκετή, όπως διαπιστώθηκε από μέτρηση της ενεργότητας του φιαλιδίου μετά από τη δειγματοποίηση δίνοντας μη ανιχνεύσιμη ποσότητα ραδιενέργειας για γεωμετρία επαφής με το παράθυρο του HPGe. Το διάλυμα που προκύπτει αναδεύεται μαγνητικά για την πλήρη ομογενοποίησή του και κατόπιν ξηραίνεται, όπως ακριβώς και κατά την διαδικασία προσυγκέντρωσης ¹³⁷Cs στο νερό. Τέλος, στο εμπλουτισμένο με ¹³⁴Cs ίζημα AMP (πυκνότητας ρ=0.81 gr/cm³) προστίθεται talk-powder μέχρι να συμπληρωθεί πλήρως η γεωμετρία, για να προσομοιωθεί η απορρόφηση της ακτινοβολίας υποβάθρου από την πηγή. Με τον τρόπο προκύπτει πηγή αναφοράς ¹³⁴Cs σταθερής πυκνότητας και με την ραδιενεργό ουσία συγκεντρωμένη στο 1/6 του κάτω μέρος της γεωμετρίας μέτρησης (ύψος 3 mm).

Η βαθμονόμηση με πηγή ¹³⁴Cs σε AMP δίνει τη δυνατότητα (α) του προσδιορισμού της χημική απόδοσης σε κάθε δείγμα που φέρει ιχνηθέτη ¹³⁴Cs και (β) του ακριβή υπολογισμό της ενεργότητας του προσυγκεντρωμένου ¹³⁷Cs στο δείγμα.

Στην πρώτη περίπτωση, προσδιορίζεται η απόλυτη απόδοση μέτρησης για τις πιο έντονες φωτοκορυφές του 134 Cs (στα 569.3 keV, 604.7 keV και 795.8 keV), κατόπιν η ενεργότητα του ιχνηθέτη στο μετρούμενο δείγμα και από την διαφορά από την αρχική ενεργότητα του (2 Bq) υπολογίζεται η χημική απόδοση της μεθόδου ach για κάθε δείγμα ξεχωριστά. Για όλες τις μετρήσεις η χημική απόδοση ήταν Στην περίπτωση του υπολογισμού της ενεργότητας του ¹³⁷Cs, $a_{ch}=94\pm4\%$. προσδιορίζεται διορθωτικός παράγοντας της ενεργότητας για τη γεωμετρία του ΑΜΡ f_{AMP} σε σχέση με αυτή που προκύπτει από την καμπύλη βαθμονόμησης με πηγή ¹⁵²Eu/¹⁵⁴Eu για γεωμετρία ιζήματος. Δεδομένου ότι η φωτοκορυφή ανίχνευσής του 137 Cs, που είναι στα 661.7 keV, βρίσκεται ενδιάμεσα από αυτές του 134 Cs και σε αυτή την ενεργειακή περιοχή (>200 keV) η διαφορά ενδοαπορρόφησης στις δύο γεωμετρίες (ιζήματος και AMP) είναι αμελητέα, ο διορθωτικός παράγοντας εξαρτάται μόνο από την αλλαγή της στερεάς γωνίας της γεωμετρίας και συνεπώς είναι κοινός για τις φωτοκορυφές και των δύο ραδιονουκλιδίων. Πράγματι για τις φωτοκορυφές του ¹³⁴Cs διαπιστώθηκε ότι η διαφορά των πειραματικών τιμών απόδοσης – εφόσον υπολογίστηκαν οι συντελεστές διόρθωσης f_s - από τις εκτιμώμενες για γεωμετρία, είναι αυξημένη λόγω της μεγαλύτερης στερεάς γωνίας κατά περίπου 30% για όλους του ανιχνευτές. Με τον τρόπο αυτό προσδιορίζεται και ο διορθωτικός παράγοντας για το 137 Cs που βρέθηκε να είναι f_{AMP}=1.28±0.05. Τα αποτελέσματα επιβεβαιώθηκαν και μαθηματικά από την εφαρμογή κώδικα μεταφοράς απόδοσης, που εξετάζεται στο επόμενο κεφάλαιο.

Συνοψίζοντας, η κατ' όγκο ενεργότητα του 137 Cs σε δείγματα νερού με τη μέθοδο της προσυγκέντρωσης με AMP υπολογίζεται από τη σχέση:

$$A_{137Cs}(Bq/L) = \frac{cps}{a_{ch} \cdot f_{AMP} \cdot \varepsilon \cdot I_{\gamma} \cdot V}$$
(3.18)

όπου *cps* ο ρυθμός γεγονότων της φωτοκορυφής του ¹³⁷Cs στα 661.7 keV με ένταση *I*γ (85.2%), a_{ch} η χημική απόδοση της προσυγκέτρωσης, f_{AMP} διορθωτικός γεωμετρικός παράγοντας της απόδοσης ε όπως αυτή υπολογίζεται από την σχέση (3.15) για γεωμετρία ιζήματος και *V* ο όγκος του δείγματος νερού (20 L). Συνυπολογίζοντας όλα τα επιμέρους σφάλματα της σχέσεις η αβεβαιότητα στον προσδιορισμό της ενεργότητας είναι της τάξης του 10%.

- Εκτεταμένες πηγές νερού

Για καθαρά ερευνητικούς λόγους, στα πλαίσια των βαθμονομήσεων παρασκευάστηκαν και πρότυπες πηγές εκτεταμένης γεωμετρίας με σκοπό την απευθείας μέτρηση δειγμάτων νερού με φασματοσκοπία-γ, χωρίς προσυγκέντρωση ή άλλη ραδιοχημική επεξεργασία [Eleftheriou et al., 2013]. Πλεονέκτημα αυτής της μεθόδου είναι η δυνατότητα συλλογής δείγματος από συγκεκριμένο σημείο και βάθος (με τη βοήθεια δύτη) χωρίς απώλειες αέριου ραδονίου καθώς το δείγμα μπορεί να σφραγιστεί ερμητικά ενόσω βρίσκεται μέσα στο νερό. Μια τέτοια εφαρμογή απαιτεί δοχείο συλλογής – που είναι ταυτόχρονα και δοχείο μέτρησης – από υλικό ανθεκτικό στην πίεση και χαμηλής απορρόφησης ακτινοβολίας-γ. Προκειμένου να καλυφτούν αυτές οι προδιαγραφές, επιλέχθηκαν κυλινδρικά δοχεία από βοριοπυριτικό γυαλί μεγάλης ανθεκτικότητας. Χρησιμοποιήθηκαν δύο μεγέθη δοχείων, αμφότερα πάχους 7 mm και όγκου 0.615±0.01 L (διαμέτρου 86 mm, συνολικού ύψους 160 mm) και 2.256±0.001 L (διαμέτρου 126 mm, συνολικού ύψους 240 mm).

Η βαθμονόμηση των δύο δοχείων διαφορετικής χωρητικότητας πραγματοποιήθηκε με πηγές 152 Eu/ 154 Eu σε μορφή διαλύματος, Η παρασκευή των πηγών αναφοράς, κατά αναλογία με τις εκτεταμένες πηγές ιζήματος, πραγματοποιήθηκε ακολουθώντας την εξής διαδικασία:

Ποσότητα 1 ml αραιωμένου διαλύματος 152 Eu/ 154 Eu (93%:7%) αναφοράς (Amersham Co) συλλέχθηκε με σύριγγα. Η σύριγγα που περιέχει την υγρό πηγή μετρήθηκε ως προς μια σημειακή πηγή αναφοράς τοποθετημένη σε απόσταση 25 cm από το παράθυρο του ανιχνευτή HPGe. Μετά από την βαθμονόμηση του ανιχνευτή και τις απαραίτητες διορθώσεις, όπως και στην περίπτωση της κατασκευής της πρότυπης πηγής ιζήματος, υπολογίστηκε η ενεργότητα του διαλύματος στα 35.1±0.7 Bq/L. Το περιεχόμενο της σύριγγας αραιώθηκε με απιονισμένο νερό και συγκεκριμένες ποσότητες εκχύθηκαν σε δύο δοχεία που κατόπιν πληρώθηκαν με απιονισμένο νερό, ούτως ώστε να προκύψουν πηγές ίδιας κατά όγκο ενεργότητας. Στη συνέχεια μετρήθηκε η εναπομένουσα στην σύριγγα ενεργότητα, προκειμένου να προσδιοριστεί η ποσότητα πηγής που πράγματι εγχύθηκε μέσα στα δοχεία. Με τον τρόπο αυτό προέκυψαν δύο εκτεταμένες υγρές πηγές 152 Eu/ 154 Eu ενεργότητας 2.5±0.1 Bq/L με όγκους 0.6 και 2.2 L (1550±62 Bq και 5710±100 Bq στις 31/3/2010, αντίστοιχα).

Επιπλέον, παρήχθησαν και πηγές ⁴⁰Κ ενεργότητας 143.7±0.1 Bq/L και για τις δυο γεωμετρίες για τον προσδιορισμό της ενεργότητας στα 1460.8 keV, με τη διάλυση κατάλληλης ποσότητας KCl σε απιονισμένο νερό.

Μετρήσεις των πηγών πραγματοποιήθηκαν στον ανιχνευτή GEM-FX8530P4 του ΕΛΚΕΘΕ για πλήρη τάση λειτουργίας, με τον πάτο των δοχείων σε επαφή με το παράθυρο του ανιχνευτή. Οι πηγές αναδεύτηκαν μηχανικά για να ομογενοποιηθούν πριν μετρηθούν για 2 h, ενώ μετρήθηκαν και δείγματα που περιείχαν μόνο απιονισμένο νερό για να αφαιρεθεί η συνεισφορά της ακτινοβολίας υποβάθρου του εργαστηρίου από τα πειραματικά φάσματα. Λαμβάνοντας υπόψη τους διορθωτικούς παράγοντες πραγματικής συμπτωτικής άθροισης f_s, όπως υπολογίστηκαν μαθηματικά για τις εκτεταμένες γεωμετρίες, προσδιορίστηκε η απόδοση για τις φωτοκορυφές μεγαλύτερης έντασης του ¹⁵²Eu από τη σχέση (3.17) με f_K=f_a=1, ενώ η απόδοση στην φωτοκορυφή 1460.8 keV του ⁴⁰K προσδιορίστηκε από τη σχέση (3.14). Οι καμπύλες απόδοσης για τις δύο γεωμετρίες προέκυψαν από την προσαρμογή της εξίσωσης (3.15) στα πειραματικά δεδομένα και παρουσιάζονται στο γράφημα που ακολουθεί (Σχήμα 3.31).



Σχήμα 3.31. Πειραματικές τιμές και καμπύλες απόλυτης απόδοσης του ανιχνευτή GEM-FX8530P4 για μεγάλη και μικρή γεωμετρία νερού σε επαφή με την πρόσοψη του κρυστάλλου στο εργαστήριο του ΕΛΚΕΘΕ

Αξίζει να σημειωθεί επίσης ότι αν και η ενεργειακή βαθμονόμηση για τις εκτεταμένες γεωμετρίες νερού ήταν ταυτόσημη με αυτή της σημειακής πηγής, η διακριτική ικανότητα ήταν ελαφρά χειρότερη και με μικρή διαφορά μεταξύ τους (2.60 keV και 2.65 keV στα 1332.5 keV, για την μικρή και μεγάλη γεωμετρία αντίστοιγα). Η αύξηση αυτή του FWHM κατά 15% περίπου, οφείλεται στη μεγάλη ενεργότητα και γεωμετρία των πηγών που οδηγούν σε αυξημένο ρυθμό καταγραφής γεγονότων. Προκειμένου ο νεκρός χρόνος (dead time), δηλαδή ο χρόνος απόκρισης του ανιγνευτικού συστήματος μετά την πρόπτωση μίας ακτίνας-γ και κατά τον οποίο δεν καταγράφονται γεγονότα, της καταγραφής στο φάσμα να κρατηθεί σε αποδεκτά στατιστικά επίπεδα, ο χρόνος διαμόρφωσης παλμού ήταν σχετικά μικρός, με αποτέλεσμα οι φωτοκορυφές να παρουσιάζουν έντονη ασυμμετρία από την Gaussian μορφή και συνεπώς να χειροτερεύουν την διακριτική ικανότητα της μέτρησης. Μία επιπλέον μέτρηση, για επιβεβαίωση και διασταύρωση των αποτελεσμάτων της βαθμονόμησης, πραγματοποιήθηκε στην εργαστηριακή διάταξη του ΕΜΠ με πανομοιότυπο ανιχνευτή και για την γεωμετρία των 0.6 L σε οριζόντια διάταξη, δίνοντας ταυτόσημα στα όρια του σφάλματος αποτελέσματα απόδοσης. Ωστόσο, λόγω των διαστάσεων της θωράκισης, τα δοχεία των 2.2 L δεν κατέστη δυνατό να μετρηθούν.

Όλες οι πειραματικές τιμές των βαθμονομήσεων καθώς και οι συντελεστές των καμπύλων βαθμονόμησης για σημειακές πηγές και εκτεταμένες γεωμετρίες νερού και ιζήματος, ενδεικτικές των πειραματικών μετρήσεων δειγμάτων, που παρουσιάστηκαν σε αυτό το κεφάλαιο συγκεντρώνονται στο Παράρτημα 2.

3.3.4 Φασματοσκοπία-γ περιβαλλοντικών δειγμάτων

Με την βαθμονόμηση των ανιχνευτικών συστημάτων για μια συγκεκριμένη γεωμετρία είναι γνωστές όλες τις απαραίτητες πληροφορίες για την περαιτέρω ανάλυση των πειραματικών ενεργειακών φασμάτων ακτίνων-γ. Το φάσμα είναι συνεχής αντιστοιχία καταγεγραμμένων γεγονότων σε ενέργειες που παρουσιάζουν αιχμές, περιοχές σταθερότητας και αυξομειώσεις. Η φασματοσκοπία-γ είναι η ερμηνεία της μορφής των φασμάτων με την ταυτοποίηση των φωτοκορυφών που εμφανίζονται, την αντιστοίχησή τους σε συγκεκριμένα ραδιονουκλίδια, τον ποσοτικό προσδιορισμός των γεγονότων που περιλαμβάνουν και τον ακριβή υπολογισμό της ενεργότητας στην οποία αντιστοιχούν. Με εξαίρεση τον ηλεκτρονικό θόρυβο, που η συμπεριφορά του είναι ιδιαίτερα χαμηλή, όλα τα καταγεγραμμένα γεγονότα του φάσματος είναι αποτέλεσμα της αλληλεπίδρασης της ακτινοβολίας με τον κρύσταλλο του ανιχνευτή, που περιλαμβάνει κατά βάση τρεις μηχανισμούς: (α) φωτοηλεκτρικό φ αιν όμενο (photoelectric effect), (β) σκέδαση Compton (Compton scattering) και (γ) δίδυμη γένεση (pair production). Οι υπόλοιποι μηχανισμοί απορρόφησης είναι ιδιαίτερα χαμηλοί και δεν επηρεάζουν ουσιαστικά την μορφή των φασμάτων, τουλάχιστον στην φασματοσκοπία-γ.

Οι φωτοκορυφές ή φωτοηλεκτρικό μέγιστο (full energy peak) FEP αντιστοιχούν στην περίπτωση που οι ακτίνες-γ απορροφούνται πλήρως από τον κρύσταλλο μέσω του φωτοηλεκτρικού φαινομένου ή αλληλουχίας των μηχανισμών απορρόφησης γωρίς απώλειες. Στην περίπτωση που οι ακτίνες σκεδαζόμενες μέσα στον κρύσταλλο διαφύγουν παίρνοντας μαζί τους τμήμα της ενέργειας καταγράφονται στο φάσμα στην περιοχή ενεργειών που καλείται Compton συνεχές (Compton continuum). Μεταξύ του συνεχούς και του FEP υπάρχει ένα χάσμα, καθώς κάθε σκεδασμένη ακτίνα-γ που διαφεύγει από τον ανιχνευτή παίρνει μαζί της το λιγότερο τόση ενέργεια, όση είναι η ελάχιστη ενέργεια ενός οπισθοσκεδαζόμενου στις 180° φωτονίου (~250 keV για ακτίνες-γ υψηλής ενέργειας). Στην πραγματικότητα όμως, το φάσμα μεταξύ του FEP και του Compton συνεχούς δεν είναι μηδενικό, γιατί εκεί καταγράφονται γεγονότα που οφείλονται σε πολλαπλές σκεδάσεις στον ανιχνευτή και σε συνδυασμούς αλληλεπιδράσεων τις οποίες ο ανιχνευτής δε διακρίνει χρονικά. Το συνεχές Compton εμφανίζει ένα μέγιστο για ενέργειες μεταξύ του FEP και του ελαχίστου που ονομάζεται κορυφή Compton (Compton edge) και ένα εκεί που τελειώνει το συνεχές που ονομάζεται κορυφή οπισθοσκέδασης (backscatter edge). Το άκρο αυτό εμφανίζεται γιατί οι ακτίνες-γ μπορούν να αλληλεπιδράσουν όχι μόνο με τον ανιχνευτή, αλλά και με τα υλικά γύρω από τον κρύσταλλο. Οι ακτίνες που οπισθοσκεδάζονται εξωτερικά έχουν την πιο μικρή ενέργεια και δημιουργούν στο φάσμα μια κορυφή στην ελάχιστη ενέργεια οπισθοσκέδασης, ενώ για εξωτερικές σκεδάσεις σε γωνίες μικρότερες από 180°, το συνεχές φάσμα οπισθοσκέδασης προς τις μεγαλύτερες ενέργειες αθροίζεται στο συνεγές Compton.



Σχήμα 3.32. Απεικόνιση πειραματικού φάσματος ακτίνων-γ, ραδιενεργής πηγή που διασπάται με εκπομπή ποζιτρονίου και ακολουθείται από εκπομπή δύο ακτίνων-γ διαφορετικών ενεργειών. Τα κύρια χαρακτηριστικά του φάσματος είναι (a) η αθροιστική κορυφή ακτινοβολίας-γ ενέργειας 2.4 MeV, (b) το FEP της ακτίνας-γ ενέργειας 2.1 MeV, (c) η πρώτη και (d) η δεύτερη κορυφή διαφυγής από την ακτίνα-γ ενεργείας 2.1 MeV, (e) η κορυφή εξαύλωσης στα 0.511 MeV από αλληλεπιδράσεις ποζιτρονίων έζω από τον ανιχνευτή, (f) το FEP ακτίνων-γ ενέργειας 0.30 MeV, (i) η κορυφή οπισθοσκέδασης 180° από εζωτερική σκέδαση των ακτίνων-γ ενέργειας 2.1 MeV, (g) το άκρο Compton για ακτίνες-γ ενέργειας 2.1 MeV (το άκρο Compton για τις ακτίνες-γ ενέργειας 0.30 MeV επικαλύπτεται από την ακτινοβολία οπισθοσκέδασης) και (h) οι ακτίνες-Χ προερχόμενες από αλληλεπιδράσεις φθορισμού με την εξωτερική μολύβδινη θωράκιση [Ehmann and Vance, 1991].

Όσον αφορά την δίδυμη γένεση, που πραγματοποιείται για φωτόνια ενέργειας >1.02 MeV, το φωτόνιο καταγράφεται στην FEP στην περίπτωση όπου όλη η ενέργεια του ζεύγους ηλεκτρονίου-ποζιτρονίου συν εκείνης των δύο φωτονίων εξαΰλωσης εναποτίθενται στον ανιχνευτή. Σε αντίθετη περίπτωση, αν δηλαδή ένα από τα φωτόνια εξαύλωσης διαφύγει από τον κρύσταλλο έχουμε στο φάσμα την καταγραφή μίας κορυφής σε ενέργεια 511 keV κάτω από το FEP που ονομάζεται κορυφή μονής διαφυγής (single escape peak), ενώ αν διαφύγουν και τα δύο φωτόνια της εξαύλωσης παίρνουν μαζί τους ενέργεια 1.02 MeV και το γεγονός καταγράφεται σε κορυφή στο φάσμα ενέργειας 1.02 MeV κάτω από το FEP, που είναι η κορυφή διπλής διαφυγής (double escape peak). Επιπλέον, οι ακτίνες-γ μπορούν να αλληλεπιδράσουν μέσω παραγωγής ζεύγους και με τη θωράκιση του ανιγνευτή και έτσι φωτόνια εξαΰλωσης να εισέλθουν στον ανιχνευτή, δημιουργώντας κορυφή στο φάσμα στα 511 keV. Χαρακτηριστικές κορυφές σε όλα τα φάσματα ακτινοβολίας-γ εμφανίζονται τόσο στις χαμηλές ενέργειες, από τις ακτίνες-Χ των υλικών που υπάρχουν στην ανιχνευτική διάταξη, όσο και στις υψηλές ενέργειες από αθροιστικές κορυφές (sum peaks) λόγω της αθροιστικής καταγραφής δύο ακτίνων-γ που προσπίπτουν ταυτόχρονα στον ανιχνευτή.

Κάθε πειραματικό φάσμα είναι η υπέρθεση μοναδιαίων φασμάτων, σαν αυτό που περιγράφηκε, μιας σειράς από χαρακτηριστικές ακτίνες-γ και -Χ. Ακόμα και
χωρίς την τοποθέτηση κάποιου δείγματος ή πρότυπης πηγής στον ανιχνευτή, καταγράφονται φωτόνια που προέρχονται από διαφορετικές φυσικές πηγές δημιουργώντας το φάσμα υποβάθρου. Οι φωτοκορυφές που εμφανίζονται σε ένα τυπικό φάσμα υποβάθρου HPGe μπορούν να προέρχονται, κωδικοποιημένα, από [Bossew, 2005; Gehrke and Davidson, 2005]:

- Πρωτογενή (primordial) ραδιονουκλίδια: 235 U, 238 U και 232 Th με τα θυγατρικά της σειράς τους, και το 40 K, που υπάρχουν μέσα στα υλικά του ανιχνευτή και του περιβάλλοντα χώρου.

- Ανθρωπογενή (anthropogenic) ραδιονουκλίδια: κυρίως το ¹³⁷Cs από τις πυρηνικές δοκιμές και το ατύχημα του Chernobyl και το ⁶⁰Co από την κατασκευή των χαλύβδινων μερών της ανιχνευτικής διάταξης και του εργαστηρίου, ενώ σε συγκεκριμένες περιπτώσεις (π.χ. εργαστήρια επιταχυντών ή πυρηνικών αντιδραστήρων) μπορούν να ανιχνεύονται και ραδιενεργά προϊόντα σχάσης.

- Αέριο *ραδόνιο* (radon) και *θορόνιο* (thoron): το ραδόνιο ²²²Rn και το θορόνιο ²²⁰Rn, θυγατρικά του ²³⁸U και του ²³²Th αντίστοιχα, είναι τα μόνα ραδιενεργά (ευγενή) αέρια που βρίσκονται στην ατμόσφαιρα του περιβάλλοντα χώρου και είναι εμφανίζονται ανεξάρτητα από τα υπόλοιπα της σειράς τους.

- Προσμείζεις (impurities): ραδιονουκλίδια στα υλικά του ανιχνευτή, της θωράκισης, των ηλεκτρονικών κυκλωμάτων και το Dewar (όταν αυτό βρίσκεται μέσα στην θωράκιση).

- Προϊόντα ενεργοποίησης (activation): ραδιονουκλίδια που παράγονται από φυσικής προέλευσης νετρόνια (που παράχθηκαν στην ατμόσφαιρα ή από αντιδράσεις κοσμικών μιονίων με τη θωράκιση του ανιχνευτή) που ενεργοποιούν τον ίδιο τον κρύσταλλο Ge του ανιχνευτή και τα υλικά που τον περιβάλλουν μέσω (n,γ), (n, α), (n, p) και (n, 2n) αντιδράσεων: ²⁷Mg, ⁵⁶Fe, ⁶⁰Co, ⁶³Cu, ⁶⁵Cu, ^{71m}Ge, ^{73m}Ge, ^{75m}Ge, ^{77m}Ge, ¹¹³Cd, ^{115m}Cd, ^{116m}In και ενδεχομένως και άλλα. Αξίζει να σημειωθεί ότι όλες οι κορυφές αναδράσεων εμφανίζονται διευρυμένες ενεργειακά λόγω του φαινομένου Doppler στην παραγόμενη ακτινοβολία-γ, ενώ για τις αντιδράσεις με τα ισότοπα του Ge επειδή όλη η ενέργεια της αντίδρασης συμπεριλαμβανομένης και της ανάκρουσης συλλέγεται από τον ενεργό όγκο του κρυστάλλου οι αντίστοιχες κορυφές εμφανίζουν ασύμμετρη διεύρυνση-Doppler μόνο προς τις υψηλότερες ενέργειες της αιχμής.

- Σύλληψη νετρονίων (neutron capture): από τα υλικά του ανιχνευτή και της θωράκισης: 64 *Cu, 114 *Cd.

- Διέγερση (excitation) σταθερών ισοτόπων, με την αλληλεπίδρασή τους με τις ιοντίζουσες ακτινοβολίες, του ανιχνευτή και της θωράκισης: 63 *Cu, 65 *Cu, 72 *Ge, 73 *Ge, 74 *Ge, 76 *Ge, 206 *Pb και 207 * Pb.

- Ραδιονουκλίδια προερχόμενα από την αλληλεπίδραση της κοσμικής ακτινοβολίας (cosmic-ray) με την ατμόσφαιρα: ⁷Be.

- Κορυφές μονής και διπλής διαφυγής ακτίνων-γ: εμφανίζονται για όλες της ακτίνες-γ με ενέργεια >1022 keV, όπως περιγράφηκε προηγουμένως, με τις κορυφές μονής διαφυγής να έχουν διεύρυνση-Doppler.

Η κορυφή εξαΰλωσης (annihilation peak) στα 511 keV που παράγεται από εξαΰλωση των προϊόντων της δίδυμης γένεσης στο περιβάλλον του ανιχνευτή από ακτίνες-γ υψηλής ενέργειας (>1022 keV) και την κοσμική ακτινοβολία. Επίσης διευρυμένη λόγω φαινομένου Doppler.

- Κορυφές διαφυγής ακτίνων-Χ (X-ray escape peak): δημιουργούνται όταν φωτόνια χαμηλής ενέργειας (<80 keV) αλληλεπιδρούν κοντά στην επιφάνια του κρυστάλλου, προκαλώντας την εκπομπή μίας K ακτίνες-X (Ge μέσω φθορισμού), που κατόπιν διαφεύγει από τον όγκο του κρυστάλλου. Το αποτέλεσμα είναι η δημιουργία μιας φωτοκορυφής στα 9.9 (για K_α ακτίνα-X) ή 11 keV (για K_β ακτίνα-X) κάτω από τη FEP του προσπίπτοντος φωτονίου. Το φαινόμενο είναι αντιστρόφως ανάλογο της ενέργειας και ανάλογο της έντασης της προσπίπτουσας ακτινοβολίας (π.χ. ~1% απώλεια για την 46.5 keV κορυφή του ²¹⁰Pb).

- Κορυφές φθορισμού ακτίνων-Χ (X-ray fluorescence peaks): προέρχονται από τον φθορισμό ατόμων των υλικών της θωράκισης και του ανιχνευτή λόγω της αλληλεπίδρασής τους με την ακτινοβολία υποβάθρου: Cu, Cd, In, Sn, W, Pb. Ποιο έντονες είναι οι K ακτίνες-X του Pb (46 keV K_α και 10 keV K_β), ενώ συχνά εμφανίζονται και αυτές του In (24 keV K_α και 27 keV K_β) που χρησιμοποιείται ως ηλεκτρική επαφή με το κρύσταλλο του ανιχνευτή.

- Τεχνητές κορυφές (artificial peaks): πρόκειται για αθροιστικές κορυφές στην περίπτωση υψηλού ρυθμού καταγραφής όταν παλμοί του προενιχυτή επικάθονται στην ουρά τον προηγούμενων παλμών. Οι κορυφές αυτές εμφανίζονται αμέσως μετά από τις εντονότερες φωτοκορυφές του φάσματος και δημιουργούνται όταν δεν έχει πραγματοποιηθεί η κατάλληλη ρύθμιση ακύρωσης της υποτίναξης των ηλεκτρικών παλμών στον ενισχυτή (pole-zero cancellation). Οι κορυφές αυτές δεν πρέπει να συγχέονται με της κορυφές πραγματικής άθροισης λόγω αλλεπάλληλης εκπομπής ακτίνων-γ από ορισμένους ραδιενεργούς πυρήνες (π.χ. ¹⁵²Eu), που δεν αναμένονται σε φάσματα υποβάθρου.

Όλες οι κορυφές του φάσματος επικάθονται σε ένα συνεχές υπόβαθρο που οφείλεται στη σκέδαση Compton των ακτίνων-γ, καθώς και στην οπισθοσκέδαση και την ακτινοβολία πέδησης (bremmstrahlung radiation) της άμεσης αλληλεπίδρασης κοσμικών σωματιδίων με τον ανιχνευτή. Επιπλέον συνεισφορά στο υπόβαθρο μπορεί να προκληθεί από συσσώρευση παλμών (pulse pileup) κατά την επεξεργασία τους στον ενισχυτή ή και λόγω κακής καλωδίωσης (μεγάλου μήκος, λανθασμένων συνδέσεων, προβληματικών επαφών) ή ηλεκτρομαγνητικής αλληλεπίδρασης (Electromagnetic Interference, EMI) τους με εξωτερικές πηγές ακτινοβολίας. Στην περίπτωση μέτρησης πηγών εντός της θωράκισης του ανιχνευτή το συνεχές του φάσματος ενισχύεται σημαντικά λόγω της σκέδασης Compton και των σωματιδίων β. Για το λόγω αυτό οι πηγές δεν πρέπει να τοποθετούνται κοντά στα τοιχώματα της

θωράκισης. Απόσταση 15 cm από το πλησιέστερη πλευρά θεωρείται ενδεδειγμένη. Σε κάθε περίπτωση στις εκτεταμένες πηγές, όπως τα δείγματα ιζήματος και ακόμα περισσότερο στα δείγματα νερού, η οπισθοσκέδαση της ακτινοβολίας-γ και -β οφείλεται στον μεγάλο όγκο τους, γεγονός που δεν μπορεί εύκολα να αποφευχθεί.

Η φασματοσκοπία-γ, λαμβάνοντας υπόψη όλα τα φαινόμενα που αναφέρθηκαν, πραγματοποιεί ουσιαστικά την εμβαδομέτρηση των φωτοκορυφών του πειραματικού φάσματος, δηλαδή τον προσδιορισμό των πραγματικών γεγονότων της κάθε φωτοκορυφής στο γρόνο της μέτρησης έγοντας προηγουμένως αφαιρέσει τα γεγονότα που δεν ανήκουν πραγματικά σε αυτή. Η αναγωγή των γεγονότων αυτών σε αριθμητικά αποτελέσματα αντιστοιχισμένα στις φωτοκορυφές συγκεκριμένων ακτίνων-γ επιτρέπει τον απόλυτο προσδιορισμό του ρυθμού εκπομπής των ακτίνων του δείγματος. Οι παραπάνω διαδικασίες περιλαμβάνουν μια σειρά από μαθηματικούς χειρισμούς, υπολογιστικής φύσεως κυρίως, που υλοποιούνται με κατάλληλους κώδικες ή ολοκληρωμένα υπολογιστικά προγράμματα για: (α) την ποιοτική ανίχνευση των κορυφών του φάσματος, (β) την προσαρμογή καμπύλης κατανομής στα δεδομένα των φωτοκορυφών, (γ) τον προσδιορισμό και τη μαθηματική μοντελοποίηση του υποβάθρου τους, (δ) τον υπολογισμό των γεγονότων και του FWHM τους, (ε) καθώς και την συσχέτιση των παραπάνω αποτελεσμάτων με φυσικά δεδομένα (αντιστοίγηση φωτοκορυφών σε συγκεκριμένα ραδιονουκλίδια και μετατροπή των γεγονότων σε ενεργότητα).

Η ανάλυση των φασμάτων στην παρούσα εργασία πραγματοποιήθηκε με το ολοκληρωμένο πρόγραμμα φασματοσκοπίας SPECTRW [Kalfas, 2011]. Το λογισμικό πακέτο (για Windows 98 και νεότερη έκδοση) εκτός από το πρόγραμμα ανάλυσης φασμάτων περιλαμβάνει και ένα σύνολο βοηθητικών υποπρογραμμάτων για το χειρισμό δεδομένων, όπως τροποποιήσεις φασμάτων (αλλαγή πλήθους καναλιών, χρονική κανονικοποίηση, μαθηματικές πράξεις), διορθώσεις (ενέργεια, αθροιστικών φωτοκορυφών), βαθμονομήσεις (ενέργειας, διακριτικής ικανότητας, απόδοσης), και τον προσδιορισμό της ενεργότητας ραδιονουκλιδίων του δείγματος. Ο εντοπισμός του κεντροϊδή των φωτοκορυφών γίνεται με την μέθοδο της διπλής διαφόρισης του φάσματος και τον εντοπισμό των αρνητικών ακρότατων, ενώ υπάρχει η δυνατότητα επιλογής μεταξύ πολλών εξισώσεων προσδιορισμού του υποβάθρου (πολυωνυμικές, σιγμοειδής, μηδενικό κ.α.). Η προσαρμογή των γεγονότων της φωτοκορυφής πραγματοποιείται με την αριθμητική μέθοδο Levenberg-Marquardt [Pujol, 2007], μέσω ελαχιστοποίησης του χ^2 για τον υπολογισμό των τριών παραμέτρων της Gaussian κατανομής (ύψος φωτοκορυφής, FWHM και θέση κεντροειδούς), δίνοντας και την δυνατότητα εισαγωγής ασυμμετρίας στην κατανομή. Τα γεγονότα της φωτοκορυφής υπολογίζονται από την ολοκλήρωση ως προς το ύψος της Gaussian κατανομής στην περιοχή της φωτοκορυφής πάνω από την γραμμή του υποβάθρου, ενώ το σφάλμα από την ολοκλήρωση του σφάλματος, που για κάθε κανάλι στην περιοχή της φωτοκορυφής, δίνεται από την σχέση [Press et al., 1992]:

$$NYNER(i) = \sqrt{NY(i) + NYBG(i)}$$
(3.19)

όπου NY(i) είναι τα συνολικά γεγονότα κάθε καναλιού i και NYBG(i) είναι τα

γεγονότα υποβάθρου του ίδιου καναλιού. Για μη συμμετρική Gaussian κατανομή υπάρχει και ένας επί πλέον διορθωτικός παράγοντας που εξαρτάται από τον βαθμό ασυμμετρίας, ενώ στην περίπτωση απλής άθροισης των γεγονότων της φωτοκορυφής, το σφάλμα υπολογίζεται από την άθροιση των NYNER(*i*) για όλα τα κανάλια που ελήφθησαν υπ' όψη σαν φωτοκορυφή. Για το λόγω αυτό η επιλογή καναλιών δεξιά και αριστερά της φωτοκορυφής πρέπει να γίνεται με προσοχή και σε περιορισμένη περιοχή.

Για τα πειραματικά φάσματα δειγμάτων ιζήματος, χρόνος μέτρησης 24 h ήταν συνήθως ικανοποιητικός για την επίτευξη αποδεκτής στατιστικής. Πριν από τις μετρήσεις οι κλωβοί των δειγμάτων φυλάσσονταν σφραγισμένοι προκειμένου να επέλθει ραδιενεργός ισορροπία μεταξύ των ραδιονουκλιδίων των σειρών των αέριων ραδιονουκλιδίων ραδονίου ²²²Rn ($T_{1/2}$ = 3.82 d) και ²²⁰Rn ($T_{1/2}$ = 5.4 s) που διαφεύγουν κατά την δειγματοποίηση. Χρόνος φύλαξης ίσος με 6 φορές το χρόνο ημιζωής τους (περίπου 23 d για το 222 Rn) θεωρείται αρκετός [Ligero et al. 2001].Για κάθε σειρά μετρήσεων πραγματοποιούνταν και καταγραφή φάσματος υποβάθρου ίδιου χρόνου και γεωμετρίας, όπως και στην περίπτωση των βαθμονομήσεων, που κατόπιν αφαιρούνταν από το πειραματικό φάσμα. Η ανάλυση σε όλα τα φάσματα ιζήματος έγινε για το 137 Cs, το 40 K και τα ραδιονουκλίδια των φυσικών ραδιενεργών σειρών που εκπέμπουν ακτινοβολία-γ που δεν είναι πολύ ασθενής (όπως του ²²⁰Rn) ή σε πολύ χαμηλές ενέργειες που η απόδοση του ανιγνευτή είναι ιδιαίτερα χαμηλή (όπως του ²²⁸Ra) ή όλες οι κορυφές τους είναι έντονα αλληλοεπικαλυπτόμενες με άλλες ισχυρότερες και σε κάθε περίπτωση προκύπτουν με πολύ μεγάλο σφάλμα (όπως το ²²³Ra). Αφού υπολογίστηκαν τα γεγονότα των εντονότερων φωτοκορυφών των ραδιονουκλιδίων που διακρίνονταν, η ενεργότητα τους δίνεται από τη σγέση:

$$A(Bq/kgr) = \frac{cps}{\varepsilon \cdot I_{\gamma} \cdot M}$$
(3.20)

όπου *cps* ο ρυθμός γεγονότων της φωτοκορυφής, ε η απόλυτη απόδοση για την ενέργεια της ακτίνας-γ σύμφωνα με τη σχέση (3.15) όπως προσδιορίζεται μετά από την πειραματική βαθμονόμηση του συστήματος, *Iy* η με πιθανότητα εκπομπής της συγκεκριμένης ακτίνας-γ και *M* η μάζα του ξηρού δείγματος.

Στην περίπτωση που αντιστοιχούν περισσότερα από μία φωτοκορυφές σε ένα ραδιονουκλίδιο η ενεργότητα προσδιορίζεται από τον σταθμισμένο, ως προς το σφάλμα, μέσο όρο (weighted average) των επιμέρους τιμών. Ο υπολογισμός της ενεργότητας γίνεται κατά προτίμηση σε μεμονωμένες ευδιάκριτες φωτοκορυφές ενώ στην περίπτωση συμβαλλόμενων κορυφών είναι απαραίτητη η αποσυνέλιζη (deconvolution) τους με υπολογιστικό τρόπο λαμβάνοντας υπόψη το αναμενόμενο FWHM και τα κεντροϊδή των φωτοκορυφών [Garcia-Talavera and Ulicny, 2003]. Κάτι τέτοιο βέβαια σε πολλές περιπτώσεις δίνει ιδιαίτερα επισφαλή αποτελέσματα λόγω του βαθμού επικάλυψης και του πλήθους των συμβαλλόμενων κορυφών. Αξίζει να σημειωθεί ότι έχει γίνει προσπάθεια για την επίλυση τέτοιων περίπλοκων περιπτώσεων μέσω κατάλληλων αλγόριθμων με ικανοποιητικά αποτελέσματα, όπως η περίπτωση των πολλαπλών φωτοκορυφών του ²³⁸U μεταξύ 92-96 keV [Garcia-Talavera, 2003] και της διπλής κορυφής στα 186 keV [Petropoulos et al., 2001]. Εναλλακτικά, σε πολλές περιπτώσεις είναι δυνατός ο έμμεσος διαχωρισμός των γεγονότων που αντιστοιχούν στις επιμέρους φωτοκορυφές.

Χαρακτηριστικό παράδειγμα είναι η περίπτωση της κορυφής στα 186 keV, όπως αναφέρθηκε και προηγουμένως, που είναι η συνέλιξη των φωτοκορυφών του ²²⁶Ra στα 186.2 keV (I_{ν} =3.6%) και του ²³⁵U στα 185.7 keV (I_{ν} =57.2%) – η επιπλέον συνεισφορά της 186.1 keV (I_{2} =0.009%) του ²³⁰Th είναι πρακτικά αμελητέα. Σε αυτή την περίπτωση η κορυφή μπορεί να αναλυθεί ως μονή και κατόπιν να προσδιοριστούν τα γεγονότα που αντιστοιχούν σε κάθε ραδιονουκλίδιο είτε: (α) θεωρώντας ότι υπάρχει ραδιενεργός ισορροπία μεταξύ ²³⁸U και του θυγατρικού του ²²⁶Ra, δεδομένης της αναλογία 238 U/ 235 U στο φυσικό U (99.3% : 0.7%) και της πιθανότητας εκπομπής των φωτοκορυφών 186.2 keV/185.7 keV (3.6% : 57.2%), ο λόγος γεγονότων 226 Ra/ 235 U της κορυφής 186 keV υπολογίζεται ότι είναι 0.57 : 0.43, είτε (b) θεωρώντας ότι το ²²⁶Ra βρίσκεται σε ισορροπία με τα θυγατρικά του ²¹⁴Pb και ²¹⁴Bi, εφόσον το δείγμα έχει παραμείνει αεροστεγώς σφραγισμένο για αρκετό χρόνο (~ 23 d), η ενεργότητά του στο δείγμα προκύπτει από το μέσο όρο των ενεργοτήτων τους (όπως αυτός έχει υπολογιστεί από τις αντίστοιχες φωτοκορυφές τους) και συνεπώς τα γεγονότα που αναμένονται στην φωτοκορυφή 186.2 keV προκύπτουν από την σχέση (3.20), ενώ αυτά που αντιστοιχούν στο 235U προκύπτουν από την αφαίρεσής τους από τα συνολικά γεγονότα της 186 keV. Επειδή σε παράκτιες περιοχές ή εκβολές ποταμών η χημική ή ισοτοπική σύσταση των ιζημάτων είναι ενδεχομένως διαταραγμένη, στην περίπτωση δειγμάτων ιζήματος πυθμένα εφαρμόζεται η δεύτερη μέθοδος. Αντίστοιχα και η κορυφή στα 241 keV αποτελείται από την 242 keV (I_ν=7.3%) του ²¹⁴Pb, την 238.6 keV (I_ν=43.6%) του ²¹²Pb και την 241 keV (I_y =4.1%) του ²²⁴Ra. Εν προκειμένω, επειδή ο ²¹⁴Pb που έχει πιο έντονες φωτοκορυφές από τη συγκεκριμένη, από τον μέσο όρο της ενεργότητας που προκύπτει από αυτές υπολογίζονται και τα αναμενόμενα γεγονότα στην 242 keV και δεδομένου ότι 224 Ra και 212 Pb ανήκουν στην ίδια ραδιενεργό σειρά και βρίσκονται σε ισορροπία, τα υπολειπόμενα γεγονότα της κοινής φωτοκορυφής διαμοιράζονται στις κορυφές τους αντίστοιχα με την πιθανότητα εκπομπής.

Επίσης σε πολλές περιπτώσεις στις μοναδικές αναλύσιμες πρακτικά κορυφές – λόγω πιθανότητας εκπομπής – ορισμένων ραδιονουκλιδίων είναι απαραίτητη η διόρθωση των γεγονότων λόγω της συνεισφοράς από χαμηλής έντασης φωτοκορυφές του ²²⁸Ac. Οι κορυφές στα 727.3 keV του ²¹²Bi, 1460.8 keV του ⁴⁰K και 510.7 keV του ²⁰⁸Tl συμβάλλουν με τις μικρές κορυφές 726.9 keV(I_{γ} =0.6%), 1459.1 keV (I_{γ} =0.8%) και 509 keV (I_{γ} =0.5%) του ²²⁸Ac, αντίστοιχα. Εφόσον η ενεργότητα του ²²⁸Ac μπορεί να προσδιοριστεί ικανοποιητικά από την 911.2 keV (I_{γ} =25.8%) και την 969 keV (I_{γ} =15.8%), χωρίς κάποια παρεμβολή άλλης φωτοκορυφής, είναι δυνατό να υπολογιστούν και τα γεγονότα που αντιστοιχούν και στις παραπάνω κορυφές και κατόπιν να αφαιρεθεί η συνεισφορά τους. Ειδικά στην περίπτωση της 510.7 keV υπάρχει και κυρίως η συμβολή της κορυφής εξαΰλωσης 511 keV, που όμως η συνεισφορά της εξαλείφεται κατά την αφαίρεση των φασμάτων. Αντίθετα, για την περίπτωση του ²³⁸U, που ανιχνεύεται έμμεσα είτε από την φωτοκορυφή 1001 keV (I_{γ} =0.6%) του ^{234m}Pa που όμως είναι πολύ μικρής έντασης, είτε τη 63.3 keV (I_{γ} =3.8%) του ²³⁴Th που βρίσκεται σε ενεργειακή περιοχή χαμηλής απόλυτης απόδοσης των ανιχνευτών HPGe, είτε από τη διπλή φωτοκορυφή των 92.4 keV (I_{γ} =2.7%) και 92.8 keV (I_{γ} =2.7%), επίσης του ²³⁴Th, που μπορεί να αναλυθεί σαν μία με αθροιστική ένταση [Anagnostakis et al., 2001].

Τέλος, πρέπει να σημειωθεί ότι λόγω της γεωμετρίας μέτρησης των δειγμάτων ιζήματος σε επαφή με τον κρύσταλλο και των πολύπλοκων τρόπων αποδιέγερσης ορισμένων ραδιονουκλιδίων, σε πολλά από αυτά των φυσικών ραδιενεργών σειρών εμφανίζεται το φαινόμενο της πραγματικής συμπτωτικής άθροισης των φωτοκορυφών τους. Το φαινόμενο υπό περιπτώσεις είναι ιδιαίτερα έντονο και πρέπει να λαμβάνεται υπόψη μετά την ανάλυση των φασμάτων με διόρθωση των καταγεγραμμένων γεγονότων των φωτοκορυφών και κατ' επέκταση και της υπολογιζόμενης ενεργότητας. Οι διορθώσεις πραγματοποιούνται πρακτικά με υπολογιστικούς ή ημιεμπειρικούς τρόπους με βάση το σχεδιάγραμμα αποδιέγερσης των ραδιονουκλιδίων και μπορεί να είναι αρκετά μεγάλες (π.χ. της τάξης του 13 και 18% για την κορυφές 609.3 και 583.3 keV του ²¹⁴Bi και ²⁰⁸Tl, αντίστοιχα [García-Talavera et al., 2001]). Αν και οι διορθώσεις αυτές μπορούν να είναι ικανοποιητικές, σε κάθε περίπτωση εισάγουν επιπλέον σφάλμα στον προσδιορισμό της ενεργότητας. Για το λόγω αυτό προτιμάται η ανάλυση μικρού αριθμού φωτοκορυφών του ίδιου ραδιονουκλιδίου που απαιτούν μικρή ή καθόλου διόρθωση πραγματικής άθροισης κορυφών ακόμα και αν είναι μικρότερης έντασης σε σχέση με εντονότερες ή ακόμα και καθαρότερες, με την έννοια της επικάλυψης με άλλες, φωτοκορυφές που απαιτούν μεγάλη διόρθωση.

3.3.5 Μέτρηση ²¹⁰Pb στο ίζημα με φασματοσκοπία-α

Μέχρι τώρα περιγράφηκε ο τρόπος ανίχνευσης ραδιονουκλιδίων σε δείγματα ιζήματος με ανίχνευση ακτινοβολίας-γ. Στην περίπτωση του ²¹⁰Pb όμως κάτι τέτοιο δεν είναι πάντα εφικτό. Ο κύριος λόγος είναι ότι η χαρακτηριστική ακτίνα-γ του ²¹⁰Pb στα 46.5 keV είναι χαμηλής έντασης (I_{γ} =4.3%) και βρίσκεται στην ενεργειακή περιοχή που αθροίζονται κορυφές της οπισθοσκέδασης Compton των φωτοκορυφών όλου του φάσματος δημιουργώντας ένα πολύ υψηλό υπόβαθρο πάνω στο οποίο επικάθεται. Επιπλέον, η απόδοση των ανιχνευτών HPGe σε αυτές τις ενέργειες είναι σημαντικά μειωμένη, που στην περίπτωση των ανιχνευτών με παράθυρο Al φτάνει τις πολλές τάξεις μεγέθους. Ιδιαίτερα στην περίπτωση μικρής ποσότητας δείγματος (μικρή γεωμετρία) η ανίχνευσή του γίνεται απαγορευτική.

Για τους παραπάνω λόγους και επειδή ο ²¹⁰Pb είναι ιδιαίτερα σημαντικός ιχνηθέτης μόλυνσης αλλά και ραδιοχρονολόγησης σε πυρήνες ιζήματος, όπου ήταν απαραίτητο εφαρμόστηκε η ραδιοχημική μέθοδος της μέτρησης του θυγατρικού του ²¹⁰Po με φασματοσκοπία-α, θεωρώντας ραδιενεργό ισορροπία μεταξύ τους [Sanchez-Cabeza et al., 1998]. Η διαδικασία που ακολουθήθηκε είναι συνοπτικά η εξής:

Ποσότητα 0.1 g δείγματος ιζήματος αποξηραίνεται και κατόπιν διυλίζεται με την διαδοχική διάλυσή του από οξέα HNO₃:HF:HCl:H₂O (5:2:3:10 ml). Μετά την μετατροπή του Fe³⁺ σε Fe²⁺ με προσθήκη ασκορβικού οξέος (C₆H₈O₆) και την περαιτέρω διάλυση του δείγματος σε 1N HCl, τα ραδιονουκλίδια του ²¹⁰Po εναποτίθενται σε ασημένιο (Ag) δισκίο καθώς το διάλυμα αναδεύεται για 8 h στους 60-70°C. Το δισκίο κατόπιν τοποθετείται μεταξύ φωσφορικών δίσκων ZnS (Ag) και μετράται σε επαφή με φωτοπολλαπλασιαστές καταμέτρησης (ORTEC EG&C) και από τις δύο πλευρές [Radakovitch, 1995].

Για κάθε σειρά δειγμάτων, προσδιορίζεται το υπόβαθρο των μετρήσεων – που οφείλεται κυρίως στο αέριο 222 Rn στο χώρο της τοποθέτησης των δειγμάτων με την επακόλουθη εναπόθεση των θυγατρικών του 209,210 Ρο στο παράθυρο του ανιχνευτή με την ανάλυση ενός κενού αντιδραστηρίων δείγματος, που κατόπιν αφαιρείται από τα γεγονότα μέτρησης των δειγμάτων για τον προσδιορισμό του πραγματικού ρυθμού αυτοδιεγέρσεων ανά λεπτό (degradations per minutes, dpm). Η συγκέντρωση ενεργότητας του ²¹⁰Pb στο δείγμα ιζήματος (dpm/g) προκύπτει από τον λόγο του ρυθμού γεγονότων (εκπομπές σωματιδίων-α ανά λεπτό του ²¹⁰Pb), με διόρθωση τιμής στην ημερομηνία δειγματοληψίας λόγω ραδιενεργού εξασθένησης. Η αξιοπιστία και η επαναληψιμότητα της μεθόδου διασφαλίστηκε μέσω της συμμετοχής σε μια διεργαστηριακή αλληλοβαθμονόμηση χρησιμοποιώντας πρότυπα δείγματα (IAEA-414) [Voitsekhovitch et al., 1999], ενώ για τα δείγματα της παρούσας εργασίας ελέγχθηκε περαιτέρω με μετρήσεις δείγματος αναφοράς (IAEA-300). Το διάστημα εμπιστοσύνης των τιμών αναφοράς ήταν 338.3-395.0 Bg/kg, ενώ η διακύμανση στην μετρούμενη τιμή (για 20 μετρήσεις) ήταν 373.3-486.6 Bq/kg. Επαναλαμβανόμενες μετρήσεις ενός αριθμού δειγμάτων ιζημάτων έδειξε αναλυτική ακρίβεια μεγαλύτερη από 5%.

Με τον παραπάνω τρόπο προσδιορίζεται ο συνολικός ²¹⁰Pb που υπάρχει σε ένα δείγμα ιζήματος. Από αυτό, το ²¹⁰Pb υποβάθρου (supported, ²¹⁰Pb_{sup}), δηλαδή αυτό που προέρχεται από την ισορροπία του με το πατρικό του ²²⁶Ra, προσδιορίζεται είτε από τη μέση τιμή της ενερότητας των θυγατρικών ραδιονουκλιδίων του ²²²Rn μέσω φασματοσκοπίας-γ (²¹⁴Pb στα 295.2 keV, 351 keV και ²¹⁴Bi στα 609 keV) είτε εναλλακτικά, μόνο για την περίπτωση των πυρήνων ιζήματος μεγάλου μήκους, ισούται απλά με την σταθεροποιημένη τιμή του ²¹⁰Pb σε μεγάλο βάθος. Η ενεργότητα του επιπλέον ²¹⁰Pb (unsupported ή excess, ²¹⁰Pb_{ex}), υπολογίζεται από την αφαίρεση της ενεργότητας του ²¹⁰Pb_{sup} από την συνολική ενεργότητα του ²¹⁰Pb στο δείγμα.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 4

ΘΕΩΡΗΤΙΚΟΙ ΥΠΟΛΟΓΙΣΜΟΙ

4.1 Διορθώσεις απόλυτης απόδοσης

Πέρα από τις πειραματικές διαδικασίες βαθμονόμησης, που περιγράφηκαν αναλυτικά στο προηγούμενο κεφάλαιο, αναπόσπαστο κομμάτι της μεθοδολογίας μετρήσεων δειγμάτων ιζήματος και νερού με φασματοσκοπία-γ είναι και οι διορθώσεις της απόλυτης απόδοσης με αναλυτικό τρόπο. Η αναγκαιότητα αυτή προκύπτει τόσο από το γεγονός της εκτεταμένης μη σημειακής γεωμετρίας μέτρησης περιβαλλοντικών δειγμάτων κάθε αυτής και της συνεπακόλουθης ενδοαπορρόφησης των ακτίνων-γ μέσα σε δείγματα εκτεταμένης γεωμετρίας, όσο και από το φαινόμενο της πραγματικής συμπτωτικής άθροισης φωτονίων σε ραδιονουκλίδια με πολλαπλούς τρόπους αποδιέγερσης, όπως το ¹⁵²Ευ των πηγών βαθμονόμησης.

Όσον αφορά στη γεωμετρία μέτρησης η δυσκολία έγκειται στην μεταβαλλόμενη, στις εκτεταμένες πηγές, στερεά γωνία μεταξύ εκπεμπόμενων ακτίνων-γ και ανιχνευτή, ενώ ο βαθμός ενδοαπορρόφησης εξαρτάται πρωτίστως από την πυκνότητα του δείγματος και σε μικρότερο βαθμό από την σύστασή του. Εξαιτίας των παραγόντων αυτών, είναι απαραίτητο τα δείγματα να συγκρίνονται άμεσα, μέσω βαθμονόμησης, με πηγές αναφοράς ακριβώς ίδιας γεωμετρίας μέτρησης, πυκνότητας και σύστασης. Κάτι τέτοιο πρακτικά θα σήμαινε ότι για κάθε δείγμα ή σειρά δειγμάτων με συγγενή χαρακτηριστικά θα έπρεπε να παράγεται εκ νέου πηγή αναφοράς, γεγονός απαγορευτικό. Για το λόγω αυτό μπορούν να εφαρμοστούν εμπειρικές, αναλυτικές ή προσεγγιστικές μαθηματικές διορθώσεις στις πειραματικές τιμές απόλυτης απόδοσης που προκύπτουν από την μέτρηση μίας μόνο πηγής βαθμονόμησης. Στην περίπτωση των ιζημάτων κύριο πρόβλημα είναι η διαφορά στην πυκνότητα μεταξύ του δείγματος αναφοράς και του υπό μέτρηση δείγματος.

Μια καθαρά εμπειρική μέθοδος είναι η χρήση ενός ουδέτερου ραδιενεργά υλικού χαμηλής πυκνότητας ώστε να συνεισφέρει ελάχιστα στην απορρόφηση της ακτινοβολίας, όπως π.χ. η κυτταρίνη, που αναμειγνύεται με το δείγμα έως ότου φτάσει την πυκνότητα της πηγής αναφοράς. Ιδιαίτερη φροντίδα πρέπει να δοθεί ώστε η κοκκομετρία του αραιωτή και του δείγματος να είναι κοινή προκειμένου να διασφαλιστεί η ραδιολογική ομοιογένεια του δείγματος και η κατά τόπους διαφορά στην πυκνότητα να είναι πρακτικά αμελητέα. Μια τέτοια μέθοδος βέβαια απαιτεί παρασκευή πηγής αναφοράς μεγάλης πυκνότητας ούτως ώστε να καλύπτονται όσο το δυνατόν περισσότερες περιπτώσεις πυκνότητας, που όμως δεν είναι τεχνικά εύκολο ιδιαίτερα για μεγάλες γεωμετρίες ιζήματος.

Η παραπάνω μέθοδος δεν λαμβάνει καθόλου υπόψη της την σύσταση του δείγματος, άρα και την επίδραση που αυτή έχει στον συντελεστή εξασθένησης (attenuation coefficient) που στις χαμηλές ενέργειες μπορεί να γίνει ιδιαίτερα σημαντική. Συγκεκριμένα, η εξάρτηση της εξασθένησης μιας ακτίνας-γ ενέργειας *Ε* από την σύσταση του δείγματος διαφαίνεται από την διόρθωση του ρυθμού γεγονότων που καταγράφονται στην αντίστοιχη φασματική φωτοκορυφή, που εκφράζεται μαθηματικά από τον τύπο:

$$cps = cps_{\exp} \cdot \frac{\mu \cdot t}{(1 - e^{-\mu t})}$$
(4.1)

όπου cps_{exp} ο πειραματικά καταγεγραμμένος ρυθμός γεγονότων φωτοκορυφής, μ ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης του υλικού του δείγματος στην συγκεκριμένη ενέργεια και t το ύψος του δείγματος. Στην παραπάνω σχέση ο συντελεστής μ αναφέρεται στο σύνολο των υλικών του δείγματος και μπορεί είτε να προσεγγιστεί με αυτό ενός αντιπροσωπευτικού στοιχείου (μέσου ατομικού αριθμού Z) είτε να προσδιοριστεί πειραματικά για συγκεκριμένη κάθε φορά φωτοκορυφή με την χρήση σημειακής πηγής αναφοράς και εφαρμογή κατάλληλης πειραματικής διαδικασίας [Gilmore, 2008]. Σύμφωνα με τη μεθοδολογία αυτή πραγματοποιούνται μετρήσεις της φωτοκορυφής σημειακή πηγής σε απόσταση από την πρόσοψη του ανιχνευτή αρχικά χωρίς και κατόπιν με την παρεμβολή του υπό μελέτη δείγματος, και από την διαφορά του καταγεγραμμένου ρυθμού γεγονότων στις δύο περιπτώσεις προκύπτει ο συντελεστής εξασθένησης από την σχέση:

$$\left(cps_{+} - cps_{-}\right) = cps_{+} \cdot e^{-\mu t} \Longrightarrow \mu = -\ln\left(\frac{cps_{+} - cps_{-}}{cps_{+}}\right) / t \tag{4.2}$$

Μια πιο αναλυτική προσέγγιση προϋποθέτει γνώση της σύστασης του δείγματος πυκνότητας ρ και κατόπιν την αντικατάσταση στην σχέση (4.1) του συντελεστή εξασθένησης του υλικού μ με το σχετικό άθροισμα των συντελεστών ενδοαπορρόφησης (μ/ρ) των επιμέρους στοιχείων [Oresugun et al., 1993]:

$$\mu = \rho \cdot \sum_{i} \left(\frac{\mu_i}{\rho_i} \right) \tag{4.3}$$

Αντίστοιχα, στην περίπτωση αλλαγής της γεωμετρίας μέτρησης ο διορθωτικός παράγοντας βαθμονόμησης μπορεί να προκύψει από αναλυτικό μαθηματικό υπολογισμό της στερεάς γωνίας μέτρησης του δείγματος και αυτής της πηγής αναφοράς, αν και η επίλυση τέτοιων προβλημάτων παρουσιάζει μεγάλο βαθμό πολυπλοκότητας [Abbas, 2006; Badawi et al. 2012].

Εναλλακτικά, όλες οι παραπάνω διορθώσεις μπορούν να προσδιοριστούν συνδυαστικά με την υπολογιστική μέθοδο της μεταφοράς απόδοσης (efficiency transfer). Πρόκειται για μια δημοφιλή μέθοδο υπολογισμού της απόλυτης απόδοσης φωτοκορυφής ενός δείγματος ενδιαφέροντος με βάση την αντίστοιχη πειραματική τιμή απόδοσης μετρημένη στο ίδιο ανιχνευτή, αλλά με πηγή αναφοράς διαφορετικού μεγέθους, γεωμετρίας, πυκνότητας ή και σύνθεσης [Moens et al., 1981]. Η μέθοδος βασίζεται στον υπολογισμό της αναλογίας της απόλυτης απόδοσης του δείγματος ενδιαφέροντος ε_x προς αυτή του δείγματος βαθμονόμησης ε_{ref}., πολλαπλασιασμένη με τη μετρούμενη απόλυτη απόδοση του τελευταίου. Βασικό πλεονέκτημα που επισημάνθηκε και επαληθεύτηκε πειραματικά από τους εμπνευστές της, είναι ότι στην υπολογιζόμενη αναλογία πολλές ανακρίβειες στο μοντέλο του ανιχνευτή σε μεγάλο βαθμό αναιρούνται, καθιστώντας δυνατή την απευθείας χρήση μη βελτιστοποιημένων δεδομένων του ανιχνευτή, όπως δηλαδή αυτά παρέχονται από του κατασκευαστή. Η ακύρωση των διαφορών ισχύει και για τα δεδομένα των ενεργών διατομών αλληλεπίδρασης ή τα μοντέλα αλληλεπίδρασης και παρακολούθησης των παραγόμενων σωματιδίων, που χρησιμοποιούνται κατά την υπολογιστική διαδικασία. Η διαδικασία αυτή μπορεί να πραγματοποιηθεί με τον υπολογισμό της αναλογίας είτε της πραγματικής απόλυτης απόδοσης φωτοκορυφής είτε της λεγόμενης εικονικής συνολικής απόδοσης (virtual total efficiency) $ε_{\rm T}$ ή αλλιώς αποτελεσματικής στερεάς γωνίας (effective solid angle) $\overline{\Omega}$:

$$\mathcal{E}_{x} = \left(\frac{\mathcal{E}_{\mathrm{T}x}}{\mathcal{E}_{\mathrm{T}ref}}\right) \cdot \mathcal{E}_{ref} = \left(\frac{\overline{\Omega}_{x}}{\overline{\Omega}_{ref}}\right) \cdot \mathcal{E}_{ref}$$
(4.4)

Στην δεύτερη περίπτωση, η μέθοδος βασίζεται στην υπόθεση της ανεξαρτησίας της αναλογίας εικονικής ολικής απόδοσης προς εικονική απόδοση φωτοκορυφής σε κάθε ενέργεια από τη θέση, το μέγεθος, την πυκνότητα και τη σύνθεση του δείγματος, δηλαδή αποτελεί ενδογενές χαρακτηριστικό κάθε ανιχνευτή. Ο όρος εικονική αναφέρεται στη απόδοση που υπολογίζεται χωρίς να ληφθεί υπόψη οποιαδήποτε διασπορά στο ίδιο το δείγμα ή τα ανενεργά τμήματα του ανιχνευτή. Ως εκ τούτου, η εικονική απόδοση φωτοκορυφής έχει ίδια τιμή με το πραγματικό αντίστοιχό της (εκτός από τις επιπτώσεις της σκέδασης Rayleigh), ενώ η συνολική εικονική απόδοση μπορεί μόνο να υπολογιστεί και όχι να μετρηθεί πειραματικά.

Οι παραπάνω υπολογισμοί μπορούν να γίνουν είτε με ημι-εμπειρικό τρόπο, είτε με την μέθοδο της Monte Carlo προσομοίωσης, που εξετάζεται αναλυτικά στην συνέχεια, είτε με συνδυαστικές μεθόδους των δύο προηγούμενων τεχνικών. Για τον σκοπό αυτό έχουν χρησιμοποιηθεί διάφοροι Monte Carlo κώδικες (GEANT, MCNP, EGS4) ενώ έχουν αναπτυχθεί και ειδικευμένα προγράμματα υπολογισμού τιμών απόλυτης απόδοσης με την μέθοδο μεταφοράς (ANGLE, DETEFF, GESPECOR, ETNA, EFFTRAN). Η σύγκριση των τεχνικών αυτών με πειραματικά δεδομένα για διάφορες γεωμετρίες έχει δείξει αποκλίσεις της τάξης του 5-10% [Lépy et al., 2001], ενώ η αλληλοσύγκριση μεταξύ των αποτελεσμάτων τους καταδεικνύει ικανοποιητική συνάφεια (αποκλίσεις <2%) [Vidmar et al., 2010].

Στην περίπτωση της διόρθωσης της πραγματικής συμπτωτικής άθροισης φωτονίων, το φαινόμενο παρουσιάζεται όταν φωτόνια που εκπέμπονται ταυτόχρονο, μετά από άμεση διαδοχική μετάπτωση ενός διεγερμένου πυρήνα από δύο ή και περισσότερες ενεργειακές στάθμες, εισέρχονται στον ανιχνευτή και καταφέρνουν να απορροφηθούν πλήρως ή εν μέρει από τον κρύσταλλο σαν ένα γεγονός. Αυτό έχει ως συνέπεια τα φωτόνια να μην καταγραφούν στις αντίστοιχες ενεργειακές φωτοκορυφές αλλά σε ενέργειες μεγαλύτερες από αυτές, δημιουργώντας ενδεχομένως μια αθροιστική όταν αυτές απορροφούνται πλήρως. Έτσι ο ρυθμός γεγονότων που καταγράφονται στην φωτοκορυφή προερχόμενα από φωτόνια γ_i που εκπέμπει ένα ραδιονουκλίδιο δίδονται από τη σχέση:

$$cps_i = A \cdot I_{\gamma_i} \cdot \varepsilon_i \cdot C_i \tag{4.5}$$

όπου A η ενεργότητα του ραδιονουκλιδίου, I_{γ_i} η πιθανότητα εκπομπής της ακτίνας-γ, ε_i η απόλυτη απόδοση φωτοκορυφής και C_i ο διορθωτικός παράγοντας λόγω πραγματικής συμπτωτικής άθροισης.

Η πιθανότητα να συμβεί το φαινόμενο αυτό, δεδομένου του ισοτροπικού τρόπου εκπομπής των φωτονίων από ραδιενεργούς πυρήνες, είναι άμεσα συνδεδεμένη με την στερεά γωνία πηγής-ανιχνευτή και προφανώς είναι ιδιαίτερα σπάνιο για πάνω από δύο αλλεπάλληλα εκπεμπόμενα φωτόνια. Εφόσον η πιθανότητα ένα φωτόνιο να εισέλθει από τον ανιχνευτή είναι ο λόγος της στερεάς γωνίας πηγήςανιχνευτή προς τη συνολική επιφάνεια της σφαίρας εντός της οποίας εκπέμπει η πηγή, η αντίστοιχη πιθανότητα δύο φωτόνια που εκπέμπονται ταυτόχρονα να εισέλθουν στον ανιχνευτή είναι η πιθανότητα αυτή στο τετράγωνο. Μία γρήγορη εκτίμηση λοιπόν της πιθανότητας άθροισης P δύο φωτονίων που εκπέμπονται ταυτόχρονα, δίδεται από την εξίσωση:

$$P = \frac{\left(R - D\right)^2}{2R^2}, \ R = \sqrt{r^2 + D^2}$$
(4.6)

όπου R είναι η ακτίνα της σφαίρας εντός της οποίας εκπέμπει η πηγή, D η απόσταση της πηγής από την επιφάνεια της πρόσοψης του κρυστάλλου ανίχνευσης και r η ακτίνα του κυλινδρικού κρυστάλλου. Αξίζει δε να σημειωθεί ότι, για δεδομένη στερεά γωνία, ο αριθμός πραγματικών συμπωτικών αθροίσεων ανά δευτερόλεπτο είναι ανάλογος της ενεργότητας του δείγματος, ενώ ο αριθμός των τυχαίων συμπωτικών αθροίσεων είναι ανάλογος πάντα του τετραγώνου της ενεργότητας του δείγματος. Έτσι για γεωμετρία επαφής, που η στερεά γωνία αυξάνει κατά πολύ, προφανώς το φαινόμενο της πραγματικής άθροισης επικρατεί κατά πολύ της τυχαίας.

Πέραν όμως από την στερεά γωνία ανίχνευσης και την ενεργότητα της πηγής, η πιθανότητα πραγματικής συμπτωτικής άθροισης εξαρτάται και από την πιθανότητα εκπομπής των αλλεπάλληλων φωτονίων, δηλαδή συνδέεται άμεσα με τους τρόπους αποδιέγερσης του ραδιονουκλιδίου. Εφόσον, όπως ήδη ειπώθηκε, η άθροιση των ακτίνων-γ μπορεί να είναι και ημιτελής η καταγραφή της σε ένα πειραματικό φάσμα μπορεί να γίνει οπουδήποτε στο φάσμα. Για το λόγω αυτό ο μαθηματικός υπολογισμός της συνεισφοράς της πραγματικής συμπτωτικής άθροισης σε μία φωτοκορυφή απαιτεί πρακτικά την πλήρη γνώση τόσο της απόλυτης όσο και της συνολικής απόδοσης του ανιχνευτή. Στην απλούστερη περίπτωση ενεργειακού διαγράμματος διαδοχικής αποδιέγερσης πυρήνα με δύο διεγερμένες στάθμες και για σημειακή πηγή οι διορθωτικοί παράγοντας πραγματικής συμπτωτικής άθροισης των φωτοκορυφών ενέργειας E_1 , E_2 και E_3 είναι αντίστοιχα [Andreev et al.,1972; 1973]:



όπου $P_{i,j}$ είναι πιθανότητα ταυτόχρονης διαδοχικής εκπομπής της γ_j μετά την γ_i , ε_i και $\varepsilon_{\text{T}i}$ η απόλυτη απόδοση φωτοκορυφής και συνολική απόδοση αντίστοιχα και I_{γ_i} η πιθανότητα εκπομπής της ακτίνας- γ .

Πιο ρεαλιστικά μαθηματικά μοντέλα καλύπτουν την περίπτωση ραδιενεργών πυρήνων που παρουσιάζουν πραγματική συμπτωτική άθροιση φωτοκορυφών, περιλαμβάνουν την προσθήκη επιπλέον φυσικών διαδικασιών που λαμβάνων χώρα κατά την αλληλεπίδραση της ακτινοβολίας με τον κρύσταλλο όπως εξαΰλωση φωτονίου, σύλληψη ηλεκτρονίου, διάσπαση β⁺, εκπομπή ακτίνων-Χ, αλλά και ποιο περίπλοκα ενεργειακά διαγράμματα αποδιέγερσης. Η μαθηματική επίλυση γίνεται ακόμα πιο περίπλοκη αν αναλογιστούμε δείγματα εκτεταμένης γεωμετρίας και σύνθεσης τέτοιας ώστε να λαμβάνει χώρα σημαντική ενδοαπορρόφηση, καθώς οι ακτίνες-Χ και ακτίνες-γ χαμηλής ενέργειας απορροφούνται εντονότερα και η στερεά γωνία αλλάζει ανάλογα με το σημείο εκπομπής της ακτινοβολίας αλλάζοντας συνεπακόλουθα και τους συντελεστές διόρθωσης.

Η υλοποίηση της επίλυσης των παραπάνω συνδυαστικών μαθηματικών μοντέλων για τον προσδιορισμό των διορθωτικών παραγόντων γίνεται με διαφορετικές αριθμητικές προσεγγίσεις που εκτείνονται από πλήρεις Monte Carlo προσομοιώσεις (GEANT4, GEANT3, PENELOPE, MCNPX, MCNP5, EGS4, EGSnrc), ειδικευμένους κώδικες (KORSUM, CORCO, COINCIG, CSCOR, ETNA, EFFTRAN, VGSL, LABSOCS), αναδρομικούς GESPECOR, TRUECOINC, αλγορίθμους [Kanisch et al., 2009], ημι-εμπειρικές και απλοποιημένες μεθόδους [Wang et al., 1996; De Felice, 2000; Garcia-Torano et al., 2005] έως και συνδυαστικές μεθόδους καμπυλών διόρθωσης πραγματικής συμπτωτικής άθροισηςενδοαπορρόφησης [Haase et al., 1993; Ramos-Lerate et al., 1997; Daza et al., 2001]. Από την σύγκριση του μεγαλύτερου μέρους αυτών των τεχνικών, όσον αφορά τον υπολογισμό των συντελεστών διόρθωσης συμπτωτικής άθροισης για σημειακές πηγές, παρατηρήθηκαν σε ορισμένες μόνο περιπτώσεις σημαντικές αποκλίσεις από τα πειραματικά αποτελέσματα [Lépy et al., 2008], ενώ για εκτεταμένες γεωμετρίες οι διορθώσεις έφταναν έως 35% και η απόκλιση από τα πειραματικά δεδομένα ήταν ως επί το πλείστον <7% [Lépy et al., 2012]. Η εφαρμογή των δημοφιλέστερων κωδίκων για διάφορα είδη περιβαλλοντικών δειγμάτων (κοντέινερ ιζήματος, μπουκάλι νερού και φίλτρα αέρα) σε p-τύπου HPGe ανιχνευτή έδειξε ικανοποιητική συμφωνία στους υπολογιζόμενους συντελεστές διόρθωσης [Vidmar et al., 2014].

4.1.1 Ο κώδικας EFFTRAN

Στην παρούσα εργασία πέρα από τις καθαρά πειραματικές-εμπειρικές μεθόδους που εφαρμόστηκαν για την διόρθωση της απόλυτης απόδοσης στις πηγές αναφοράς, όπως περιγράφηκαν αναλυτικά στο κομμάτι της μεθοδολογίας, πραγματοποιήθηκαν και θεωρητικοί υπολογισμοί για την επιβεβαίωση και σύγκριση των διορθώσεων αυτών. Για τον σκοπό αυτό επιλέχθηκε η υπολογιστική προσέγγιση με εφαρμογή του κώδικα EFFTRAN [Vidmar, 2005], δεδομένης της διαπιστωμένης αξιοπιστίας του, της ευκολίας εφαρμογής του και της ελεύθερης διάθεσής του. Επιπλέον το γεγονός ότι πρόκειται για συνδυαστικό κώδικα τόσο μεταφοράς απόδοσης όσο και διόρθωσης της πραγματικής συμπτωτικής άθροισης, με εφαρμογή σε εκτεταμένες γεωμετρίες ιζήματος και νερού με σφάλμα της τάξης του 3% [Vidmar et al., 2011], τον καθιστούν κατάλληλο για της ανάγκες της παρούσας εργασίας.

Ο κώδικας EFFTRAN αρχικά αναπτύχθηκε αποκλειστικά ως κώδικας μεταφοράς απόδοσης φωτοκορυφής για p-τύπου HPGe ανιχνευτές, σύμφωνα με την εξίσωση (4.4) του Moens, που απαιτεί πειραματικές τιμές απόδοσης φωτοκορυφής για μια δεδομένη γεωμετρία, περιγραφή της γεωμετρίας αυτής και την γεωμετρία για την οποία ζητείται η ενεργότητα, ενώ υπολογίζει το λόγω εικονικής ολικής απόδοσης των δύο γεωμετριών. Για τον υπολογισμό της εικονικής ολικής απόδοσης, σε αντίθεση με τον παραδοσιακή Gaussian ολοκλήρωση, εφαρμόζεται η Monte Carlo ολοκλήρωση με τέτοιο τρόπο ώστε να συμπεριλαμβάνονται ως αναπόσπαστο μέρος των υπολογισμών τα φαινόμενα της ενδοαπορρόφησης στο δείγμα και της εξασθένησης της εκπεμπόμενης ακτινοβολίας στα ανενεργά μέρη του ανιχνευτή.



Σχήμα 4.1. Τα μέρη του μοντέλου προσομοίωσης της ανιχνευτικής διάταζης με το EFFTRAN: 1 – κρύσταλλος HPGe, 2 – εσωτερική οπή, 3 – εσωτερική ανενεργή περιοχή (n-επαφή), 4 – πλάγια ανενεργή περιοχή, 5 – ανενεργή περιοχή παραθύρου, 6 – στήριζη κρυστάλλου, 7 – περίβλημα ανιχνευτή, 8 – παράθυρο ανιχνευτή, 9 – δείγμα, 10 – δοχείο δείγματος, a, b, c, d, f – εικονικοί όγκοι (οι διαστάσεις δεν είναι υπό κλίμακα, ενώ ο χώρος γύρο από τον ανιχνευτή θεωρείται ότι είναι γεμάτος με αέρα).

Αυτό επιτυγχάνεται με την αναπαράσταση της ανιχνευτικής διάταξης σε ένα γενικό μοντέλο με βάση τις πληροφορίες για τα χαρακτηριστικά του ανιχνευτή, από τον κατασκευαστή (διαστάσεις, πυκνότητα και σύσταση), ενώ στο προτύπο περιλαμβάνονται και εικονικά στοιχεία που δεν αντιστοιχούν σε πραγματικά τμήματα του ανιχνευτή και χρησιμοποιούνται για τον υπολογισμό της εξασθένησης και ενδοαπορρόφησης. Το πλεονέκτημα του προτύπου είναι η απλότητά του, καθώς μπορεί να κατασκευαστεί αποκλειστικά από κυλίνδρους. Για τον υπολογισμό της πιθανότητας αλληλεπίδρασης των μεμονωμένων ακτίνων-γ με τον κρύσταλλο, πρέπει να είναι γνωστό το μήκος της διαδρομής l_i που διανύει μέσα σε αυτόν, καθώς και τα μήκη των διαδρομών διαμέσου των στρωμάτων απορρόφησης. Λόγω κυλινδρικής συμμετρίας, η μόνη περίπλοκη διαδικασία που απαιτείται είναι ο υπολογισμός του μήκους διαδρομής μίας ακτίνας-γ που διασχίζει ένα κύλινδρο δεδομένων διαστάσεων και που προέρχεται από την σχέση:

$$P = \left[1 - \exp(-\mu l_i)\right] \cdot F, F = \prod_j \exp(-\mu_j l_{ij})$$
(4.8)

όπου μ ο συντελεστής εξασθένησης του Ge, F ο παράγοντας εξασθένησης που εξαρτάται από τον συντελεστή εξασθένησης μ_j του j-οστού υλικού που η ακτίνα-γ συναντά στο δρόμο της προς τον ανιχνευτή και l_{ij} η διαδρομή διάσχισης μέσα στο υλικό αυτό. Προφανώς το l_i προσδιορίζεται από το συνολικό μήκος της διαδρομής της ακτίνας-γ μείον τη συνολική διαδρομή στα ανενεργά μέρη του μοντέλου, που πρακτικά εκφράζει την εξασθένηση της ακτινοβολίας στα υπόλοιπα υλικά της ανιχνευτικής διάταξης.

Η προέλευση των ακτίνων-γ επιλέγεται με τυχαία δειγματοληψία από μια ομοιόμορφη κατανομή στον όγκο του δείγματος. Η κάθε μία από αυτές εκπέμπεται τυχαία και ισοτροπικά μέσα στη στερεά γωνία Ω_i, που ορίζει το σημείο εκπομπής της *i*-στής ακτίνας-γ ως προς τον κρύσταλλο του ανιχνευτή. Η Monte Carlo ολοκλήρωση έγκειται τελικά στην επιλογή πολλών τέτοιων ακτίνων-γ, σταθμίζοντας τις πιθανότητές τους να αλληλεπιδράσουν με τον κρύσταλλο μέσα στις επιτρεπόμενες γωνίες εκπομπής και αθροίζοντας τα αποτελέσματα, καταλήγοντας με αυτόν τον τρόπο στον υπολογισμό της ολικής απόδοσης. Για Ν επαναλήψεις (παραγωγή ακτίνων-γ τυχαία μέσα στο δείγμα), η ολική απόδοση δίνεται από την εξίσωση :

$$\varepsilon_{\rm T} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} w_i P_i, \ w_i = \Omega_i / 4\pi$$
 (4.9)

Στην παραπάνω σχέση απαραίτητη διόρθωση που λαμβάνεται επιπρόσθετα υπόψη είναι και η συνεισφορά από τα σκεδαζόμενα φωτόνια στο ανενεργό στρώμα του κρυστάλλου, στο περίβλημα του ανιχνευτή ή μέσα στο ίδιο το δείγμα και καταγράφονται από τον κρύσταλλο, που υπολογιστικά θεωρείται ότι όλα αποκτούν την μέση ενέργεια μετά από σκέδαση Compton, εκπέμπονται ισοτροπικά και κατανέμονται ομοιόμορφα μέσα στο δείγμα [Vidmar and Likar, 2005]. Με εφαρμογή της μεθόδου αυτής για τις δύο γεωμετρίες (αναφοράς και ζητούμενης) και την σχέση (4.4), από τις τιμές της απόδοσης φωτοκορυφής αναφοράς προκύπτει και η απόδοση φωτοκορυφής για κάθε ενέργεια της ζητούμενης γεωμετρίας. Από σύγκριση δε των αποτελεσμάτων του κώδικα με πειραματικά αποτελέσματα εκτεταμένων γεωμετριών σε κάθε περίπτωση προέκυψε συμφωνία μεγαλύτερη του 93%, ενώ για επιλογή εκτεταμένων γεωμετριών αναφοράς συγγενή στην ζητούμενη γεωμετρία οι αποκλίσεις έπεφταν στο 2%, καθιστώντας την επιλογή αυτή ενδεδειγμένη για την εφαρμογή της μεθόδου μεταφοράς απόδοσης φωτοκορυφής σε εκτεταμένα δείγματα [Vidmar et al., 2010b].

Ο προσδιορισμός των διορθωτικών παραγόντων πραγματικής συμπτωτικής άθροισης για πλήθος ραδιονουκλιδίων ακόμα και για εκτεταμένες γεωμετρίες είναι ένα πιο περίπλοκο πρόβλημα και προέκυψε σαν επιπλέον εφαρμογή σε πρόσφατη έκδοση του κώδικα. Αυτό γιατί οι υπολογισμοί απαιτούν την ακριβή γνώση της ολικής απόδοσης, όπως φαίνεται και από τη σχέση (4.7), σε κάθε ενέργεια που αθροίζεται καθώς δεν έχουμε να κάνουμε πλέον με λόγους ολικών αποδόσεων. Επιπλέον, οι μέτριου μεγέθους γεωμετρίες, όπου είναι και τα περισσότερα περιβαλλοντικά δείγματα, δεν μπορούν να θεωρηθούν κατά τον υπολογισμό των πραγματικών συμπωτικών αθροίσεων ως σημειακές πηγές [Debertin and Schotzig, 1979], τεχνική που εφαρμόζεται με επιτυχία για μικρές [Andreev et al.,1972]και πολύ μεγάλες εκτεταμένες γεωμετρίες [Wang et al., 1996].

Η προσέγγιση που ακολουθεί ο κώδικας βασίζεται στην διόρθωση της απόδοσης (ολικής και φωτοκορυφής) λαμβάνοντας υπόψη την κατά τόπους διακύμανσή της μέσα στο δείγμα, θεωρώντας (εικονικές) σημειακές πηγές ενσωματωμένες και διεσπαρμένες σε ολόκληρο τον όγκο του δείγματος με εφαρμογής της αποκαλούμενης LS-καμπύλης ή "τρίτης" καμπύλης της φασματοσκοπίας-γ [Gelsema, 2001; Blaaw and Gelsema, 2003]. Σύμφωνα με αυτή την υπολογιστική τεχνική οι τιμές της μέσης απόλυτης απόδοσης (ολικής και φωτοκορυφής) που εκφράζουν όλο το δείγμα πρέπει να αντικατασταθούν με τα επιμέρους γινόμενα ($\varepsilon_i \cdot l_i$) των σημειακών αποδόσεων με τους αντίστοιχους συντελεστές συνεισφοράς LS, όπως αυτά προκύπτουν από την LS-καμπύλη. Στην πρωτότυπη μέθοδο οι καμπύλες αυτές προκύπτουν πειραματικά ενώ στην περίπτωση του EFFTRAN εφαρμόζεται καθαρά υπολογιστική Monte Carlo μέθοδος με πολύ καλή συμφωνία με τα πειραματικά δεδομένα (απόκλιση <6% για όλα τα είδη εκτεταμένων γεωμετριών) [Vidmar and Korum, 2006]. Εδώ πρέπει να επισημανθεί ότι για τον υπολογισμό των διορθωτικών παραγόντων πραγματικής συμπτωτικής άθροισης πρέπει να είναι γνωστές πέρα από την ολική απόδοση και οι τιμές της απόδοσης φωτοκορυφής για την δεδομένη γεωμετρία.

Οι αποδόσεις φωτοκορυφής είναι απαραίτητες για τον υπολογισμό των αθροιστικών φωτοκορυφών, που όμως είναι σχετικά σπάνιες και συνήθως δεν χρησιμοποιούνται για τον προσδιορισμό της ενεργότητας, και συνεπώς δεν απαιτείται μεγάλη ακρίβεια στις τιμές τους. Ένας επιπλέον λόγος για αυτό είναι ότι σε γενικές γραμμές τα σφάλματα της απόδοσης, είτε ολικής είτε φωτοκορυφής, δεν διαδίδονται γραμμικά στην αβεβαιότητα του συντελεστή διόρθωσης της πραγματικής συμπτωτικής άθροισης, αλλά μάλλον υποβαθμίζονται από τη μη γραμμικότητα των σχετικών εκφράσεων υπολογισμού του. Η συνήθης ακρίβεια της μεθόδου μεταφοράς απόδοσης που χρησιμοποιείται για τον υπολογισμό της από τον κώδικα (της τάξης του 5%) είναι επομένως ικανοποιητική.

Κατόπιν, με γνωστές τις απόλυτες τιμές της απόδοσης (ολικής και φωτοκορυφής) για μια δεδομένη εκτεταμένη γεωμετρία, ο υπολογισμός των συντελεστών διόρθωσης των πραγματικών αθροιστικών συμπτώσεων μπορεί να πραγματοποιηθεί όπως και στην περίπτωση των σημειακών πηγών. Ο κώδικας EFFTRAN χρησιμοποιεί ένα αναδρομικό ντετερμινιστικό αλγόριθμο που αναζητά με φυσικό τρόπο όλες τις πιθανές διαδρομές σε ένα διάγραμμα αποδιέγερσης με διαδοχικές επαναλύψεις, ενώ δεν απαιτείται κανενός είδους στοχαστικός Monte Carlo υπολογισμός [Vidmar and Kanisch, 2012]. Η μέθοδος είναι εξίσου γρήγορη όσο και η αντίστοιγη μέθοδος-πίνακα [Semkow et al., 1990] αλλά απλούστερη, δεδομένου ότι δεν απαιτεί την επεξεργασία συμβόλων, όπως ανάλογες προσεγγίσεις [Novkovic et al., 2007]. Τα διαγράμματα πυρηνικής αποδιέγερσης που χρησιμοποιούνται για τον υπολογισμό των διορθώσεων των πραγματικών συμπωτικών αθροίσεων φωτοκορυφών προέργονται από τη βάση δεδομένων KORDATEN [Sima and Arnold, 2008], που βασίζεται σε αυτή του Decay Data Evaluation Project [Nucleide, 2009]. Αξίζει δε να σημειωθεί ότι η σύγκριση του κώδικα ως προς τον υπολογισμό διορθωτικών παραγόντων για εκτεταμένες γεωμετρίες με τους αντίστοιγους ευρύτατα διαδεδομένους GEANT [Vidmar and Likar, 2005] και GESPECOR [Vidmar et al., 2011], έδειξε πολύ καλή συμφωνία μεταξύ τους (<2% για ενέργειες >100keV), καθιστώντας τον αξιόπιστο και κατάλληλο για τις ανάγκες της παρούσας εργασίας.

Τελικά, η συνολική μεθοδολογία διόρθωσης (μεταφορά απόδοσης και πραγματικής συμπτωτικής άθροισης) της απόλυτης απόδοσης φωτοκορυφής για εκτεταμένες γεωμετρίες όπως υλοποιείται με τον κώδικα EFFTRAN, και εφαρμόστηκε και στην παρούσα εργασία για τις βαθμονομήσεις δειγμάτων ιζήματος και νερού, περιλαμβάνει τα παρακάτω βήματα:

1. Ο HPGe ανιχνευτής βαθμονομείται με βάση ένα πρότυπο δείγμα αναφοράς που δεν πρέπει να διαφέρει πολύ από το μετρούμενο δείγμα ως προς τα χαρακτηριστικά του.

2. Εφαρμόζεται από τον κώδικα η μέθοδος μεταφοράς απόδοσης για να προσδιοριστούν οι απόλυτες αποδόσεις φωτοκορυφής του μετρούμενου δείγματος.

3. Η συνολική απόδοση, χωρίς τη σκέδαση στο ίδιο το δείγμα, παρέχεται ως τμήμα του υπολογισμού. Το τμήμα σκεδάσεως στο ίδιο το δείγμα προστίθεται κατόπιν ώστε να προκύψει η πλήρης συνολική απόδοση. Επιπλέον υπολογίζεται η αντίστοιχη LSκαμπύλη με γρήγορο υπολογισμό χωρίς αναφορά σε πειραματικά δεδομένα.

4. Προσδιορίζονται οι συντελεστές διόρθωσης της πραγματικής συμπτωτικής άθροισης, που υπολογίζονται με εφαρμογή κατάλληλου και σωστά τροποποιημένου μαθηματικού αλγόριθμου για σημειακές πηγές.

4.1.2 Μεταφορά απόδοσης

Κατά την διαδικασία της βαθμονόμησης, όπως ήδη αναφέρθηκε στο προηγούμενο κεφάλαιο, η πυκνότητα και η σύσταση μεταξύ των πηγών αναφοράς και των μετρούμενων δειγμάτων ιζήματος ήταν διαφορετική, ενώ σε κάθε περίπτωση διασφαλίστηκε κοινή γεωμετρία και κοκκομετρία (εξαίρεση αποτελεί η εκτεταμένη πηγή ¹⁵²Eu/¹⁵⁴Eu μεγάλης γεωμετρίας, στο εσωτερικό της οποίας τοποθετήθηκε πορώδες υλικό (σφουγγάρι), ώστε να διασφαλιστεί η ομοιογενής διάχυσης του υγρού διαλύματος των ραδιονουκλιδίων, ενώ περιβάλλονταν από λεπτό στρώμα ταλκ ώστε να προσομοιωθεί η ενδοαπορρόφηση των χαμηλοενεργειακών ακτίνων-γ). Λόγω των διαφορών αυτών ήταν απαραίτητη η διόρθωση των τιμών απόδοσης φωτοκορυφής της πειραματικής βαθμονόμησης ώστε να αναχθούν σε αυτές που αντιστοιχούν στα μετρούμενα δείγματα. Για το λόγω αυτό εφαρμόστηκε η μέθοδος της μεταφοράς απόδοσης φωτοκορυφής με την χρήση του κώδικα EFFTRAN για τον προσδιορισμό των διορθωτικών παραγόντων της απόλυτης απόδοσης

Ως παράμετροι εισόδου στο πρόγραμμα δόθηκαν οι γεωμετρίες και τα υλικά των ανιχνευτών, των δειγμάτων και των πηγών αναφοράς καθώς και οι αντίστοιχες πειραματικές τιμές απόδοσης φωτοκορυφών. Δεδομένου ότι όλα τα δείγματα ήταν ιζηματογενή παράκτιων περιοχών με πυκνότητες που κυμαίνονταν από 0.6 έως 1.3 gr/cm³, θεωρήθηκε αντιπροσωπευτικό δείγμα μέτρησης με σύσταση χαρακτηριστική των παράκτιων ιζημάτων [Li and Schoonmaker, 2014] και για πιθανές πυκνότητες 0.5, 0.8, 1, 1.2 και 1.5 gr/cm³ ως προς τις οποίες και πραγματοποιήθηκε η μεταφορά απόδοσης για όλες τις πηγές αναφοράς (Παράρτημα 3). Από το λόγο υπολογιζόμενης προς πειραματική τιμή απόδοσης προσδιορίστηκαν οι συντελεστές διόρθωσης ενδοαπορρόφησης f_a στις ενέργειες των φωτοκορυφών που χρησιμοποιήθηκαν στις βαθμονομήσεις, για όλες τις πηγές αναφοράς και τις γεωμετρίες ανίχνευσης (μικρή και μεγάλη) ιζήματος (Πίνακας 4.1). Οι τιμές των συντελεστών ήταν κοινές για όλους τους ανιχνευτές, καθώς η μέση στερεά γωνία είναι πρακτικά ίδια, ενώ η απορρόφηση μέσα στο δείγμα.

Από τα αποτελέσματα των υπολογισμών προκύπτει ότι για ενέργειες κάτω των 100 keV η διόρθωση της απόδοσης ήταν της τάξης του 30%, με εξαίρεση την πολύ χαμηλή ενέργεια των 25 keV, μεταξύ 100-1000 keV είναι 3-30% ανάλογα με την πηγή και την πυκνότητα του μετρούμενου δείγματος και για πάνω από 1000 keV η διόρθωση γίνεται αμελητέα. Για το λόγω αυτό, δεν απαιτείται διόρθωση για την πηγή αναφοράς ⁴⁰K λόγω της ελάχιστης ενδοαπορρόφησης της 1460.8 keV στο δείγμα. Δεδομένου ότι το σφάλμα υπολογισμού κυμαίνοταν από 3-13%, με τις μεγαλύτερες τιμές στις μικρότερες ενέργειες, και η μέση απόκλιση του f_a από την κεντρική τιμή για πυκνότητα ρ=1 gr/cm³ ήταν <6% για ενέργειες >100keV, επιλέχθηκε αυτή η τιμή πυκνότητας ως τιμή αναφοράς που κατόπιν χρησιμοποιήθηκε για όλες τις πειραματικές αναλύσεις ποσοτικοποίησης.

Πηγή αναφοράς/	Ενέργεια	Συν	Συντελεστής διόρθωσης f _a				Σχετικό	Μέση
ι εωμετρια - Πυκνότητα (gr/cm³)	(keV)	0.5	0.8	1	1.2	1.5	σφα λμα (%)	αποκλιση (%)
PER2B/ Μεγ1.78	25.64	4.52	3.17	2.62	2.22	1.80	13	26
	63.29	1.63	1.49	1.41	1.34	1.23	13	9
	92.50	1.38	1.30	1.25	1.20	1.13	10	7
	143.76	1.28	1.22	1.18	1.14	1.09	3	5
	163.33	1.26	1.20	1.17	1.13	1.09	3	5
	185.72	1.24	1.19	1.16	1.13	1.08	3	5
	205.31	1.23	1.18	1.15	1.12	1.08	3	5
	236.00	1.22	1.17	1.14	1.11	1.07	3	4
	256.25	1.21	1.17	1.14	1.11	1.07	4	4
ΙΑΕΑ-384 /Μεγ1.18	46.54	1.35	1.18	1.08	1.00	0.89	6	13
^{152/154} Eu /Μεγ0.02	121.78	0.92	0.87	0.84	0.81	0.77	9	6
	244.70	0.94	0.90	0.88	0.86	0.83	9	4
	344.28	0.95	0.91	0.89	0.87	0.85	9	4
	443.96	0.95	0.92	0.90	0.89	0.86	10	3
	778.92	0.96	0.94	0.92	0.91	0.89	11	3
	867.39	0.96	0.94	0.93	0.91	0.89	12	3
	964.05	0.97	0.94	0.93	0.92	0.90	10	2
	1112.09	0.98	0.96	0.95	0.94	0.92	10	2
	1408.02	1.00	0.98	0.97	0.96	0.95	9	2
ΙΑΕΑ-384/Μικ0.96	46.54	1.09	1.03	1.03	0.97	0.93	6	6
^{152/154} Eu /Μικ1.47	121.78	1.06	1.04	1.03	1.02	1.00	7	2
	244.70	1.05	1.03	1.03	1.02	1.00	7	2
	344.28	1.04	1.03	1.02	1.02	1.00	7	1
	443.96	1.04	1.03	1.02	1.01	1.00	7	1
	778.92	1.03	1.02	1.02	1.01	1.00	7	1
	867.39	1.03	1.02	1.02	1.01	1.00	7	1
	964.05	1.03	1.02	1.01	1.01	1.00	7	1
	1112.09	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	7	0
	1408.02	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	7	0

Πίνακας 4.1. Συντελεστές διόρθωσης f_a απόδοσης πηγών αναφοράς μεγάλης και μικρής γεωμετρίας για 5 διαφορετικές τιμές πυκνότητας ρ μετρούμενου δείγματος, με το σχετικό σφάλμα υπολογισμού και την μέση απόκλιση των f_a από την κεντρική τιμή για p=1 gr/cm³.

Ακραία περίπτωση απόκλισης στην τιμή της διόρθωσης, λόγω διαφορετικής πυκνότητας του μετρούμενου από το αντιπροσωπευτικό δείγμα (με ρ=1 gr/cm³), παρατηρείται για τις χαμηλές ενέργειες στη μεγαλύτερη γεωμετρία μέτρησης, που όμως πρακτικά δεν χρησιμοποιήθηκαν στις αναλύσεις. Αξίζει δε να σημειωθεί ότι η απόκλιση του διορθωτικού παράγοντα για το αντιπροσωπευτικό δείγμα στην περίπτωση της εκτεταμένης γεωμετρίας της πηγής ^{152/154}Eu από αυτόν που υπολογίζεται με την εμπειρική σχέση (3.16) ήταν μικρότερη του 3% για όλες τις ενέργειες βαθμονόμησης.

Με τη μέθοδο της μεταφοράς απόδοσης υπολογίστηκε και η απόκλιση της καμπύλης απόδοσης της γεωμετρίας ιζήματος από αυτή του AMP. Και για τις τρείς φωτοκορυφές του ¹³⁴Cs που χρησιμοποιήθηκαν στην βαθμονόμηση (569.3 keV, 604.7 keV και 795.8 keV) ο συντελεστής διόρθωσης f_{AMP} υπολογίστηκε στα 1.32±0.07 για όλους τους ανιχνευτές αποκλίνοντας κατά 3% από την πειραματική διόρθωση των 1.27±0.05, τιμή εντός των επιμέρους σχετικών σφαλμάτων (5 και 3.9% αντίστοιχα).

Τέλος, είναι προφανές ότι η μέθοδος της μεταφοράς απόδοσης δεν εφαρμόστηκε στην περίπτωση των εκτεταμένων δειγμάτων νερού καθώς οι πηγές αναφοράς και μέτρησης ήταν πανομοιότυπες σε γεωμετρία, σύσταση και πυκνότητα.

4.1.3 Πραγματική συμπτωτική άθροιση

Σύμφωνα με την μεθοδολογία προσδιορισμού της πραγματικής απόδοσης με τον κώδικα EFFTRAN μετά την διόρθωση λόγω ενδοαπορρόφησης εφαρμόστηκε η διόρθωση που αφορά την πραγματική συμπτωτική άθροιση φωτοκορυφών, όπου αυτή είναι απαραίτητη. Τα ραδιονουκλίδια που εμφανίζουν σημαντική συμπτωτική άθροιση φωτοκορυφών αποδιεγίρονται με πολλαπλούς τρόπους μέσω των διεγερμένων ενεργειακών σταθμών των θυγατρικών τους ραδιονουκλιδίων με σύντομο χρόνο ζωής, μικρότερο της χρονικής διακριτικής ικανότητας του ανιχνευτή. Εν προκειμένω, ραδιενεργός πυρήνας με περίπλοκο ενεργειακό διάγραμμα αποδιέγερσης είναι το ¹⁵²Eu που και χρησιμοποιήθηκε στις βαθμονομήσεις. Εμφανίζει δύο κανάλια αποδιέγερσης με β⁻ αποδιέγερση προς το θυγατρικό ¹⁵²Sm (με πιθανότητα 27.92%) ή με την επικρατέστερη σύλληψη ηλεκτρονίου (electron capture) EC (72.08%) προς ¹⁵²Gd. Όποιο και να είναι το κανάλι της αποδιέγερσης παράγεται ένα πλήθος αλλεπάλληλων ακτίνων-γ κατά την αποδιέγερση των θυγατρικών πυρήνων, ενώ η EC είναι πιθανό να συνοδεύεται και με εκπομπή ακτίνων-Χ του Sm.





Σχήμα 4.2. Ενεργειακά διαγράμματα αποδιέγερσης (β- διάσπασης και σύλληψη ηλεκτρονίου EC) του ¹⁵²Eu. Οι ενεργειακές στάθμες πάνω από τα 1371.7 keV μαζί με τις αντίστοιχες ακτίνες-γ, χάριν απλότητας, δεν συμπεριλαμβάνονται στο κανάλι αποδιέγερσης σύλληψης ηλεκτρονίου.

Αντίστοιχα, αν και με πολύ απλούστερο ενεργειακό διάγραμμα αποδιέγερσης, το 134 C επίσης παρουσιάζει πραγματική συμπτωτική άθροιση φωτοκορυφών που είναι ιδιαίτερα σημαντική στην περίπτωση των εντονότερων του ακτίνων-γ (569.34, 604.62 και 795.83 keV) που και χρησιμοποιήθηκαν κατά την βαθμονόμηση του δείγματος AMP για την μέτρηση του 137 Cs.



Σχήμα 4.3. Το ενεργειακά διαγράμματα αποδιέγερσης (β- διάσπαση) του 134Cs. Το κανάλι αποδιέγερσης σύλληψης ηλεκτρονίου EC δεν συμπεριλαμβάνεται λόγω της πολύ μικρής του πιθανότητας.

Για να ελεγχθεί η αποτελεσματικότητα του κώδικα, αρχικά συγκρίθηκαν τα αποτελέσματα υπολογισμού με εμπειρικές τιμές διόρθωσης που προέκυψαν μετά από πειραματικές μετρήσεις για μία περίπτωση γεωμετρίας-ανιχνευτή. Συγκεκριμένα πραγματοποιήθηκαν μετρήσεις με τον ανιχνευτή GC5021 για την μεγάλη γεωμετρία ιζήματος με την πηγή του ¹⁵²Eu/¹⁵⁴Eu σε 10 αποστάσεις μέτρησης πηγής-παραθύρου ανιχνευτή, από απόσταση αναφοράς των 25 cm με μηδενική πρακτικά πραγματική συμπτωτική άθροιση έως την γεωμετρία επαφής, που είναι και η γεωμετρία μέτρησης δειγμάτων. Από την εκθετική συμπεριφορά της σχετικής ολικής απόδοσης φωτοκορυφής ως προς την απόσταση αναφοράς ($\mathcal{E}_{T}/\mathcal{E}_{Tref}$) και την συνεπακόλουθη εκθετική συμπεριφορά του διορθωτικού παράγοντα πραγματικής συμπτωτικής άθροισης ($f_{s} = (cps_{ref}/cps) \cdot (\mathcal{E}_{T}/\mathcal{E}_{Tref})$), προσδιορίστηκε με ακρίβεια η τιμή του f_{s} για κάθε ενέργεια στην γεωμετρία επαφής [Ramos-Lerate et al. 1997]. Προκειμένου να εισαχθούν στον κώδικα όσο το δυνατόν πιο ακριβή δεδομένα ώστε να συγκριθούν με τα πειραματικά αποτελέσματα, πραγματοποιήθηκε ακτινογραφία του ανιχνευτή και προσδιορίστηκαν κρίσιμοι γεωμετρικοί παράγοντες (πάχος περιβλήματος, απόσταση παραθύρου-ανιχνευτή, καμπύλωση κρυστάλλου).



Σχήμα 4.4. Ακτινογραφία του ανιχνευτή HPGe μοντέλου GC5021, Canberra του ΕΜΠ για τον ακριβή προσδιορισμό των γεωμετρικών χαρακτηριστικών.

Στις πειραματικές διορθώσεις πέρα από τις εντονότερες φωτοκορυφές του ¹⁵²Eu κατέστη δυνατό να προσδιοριστούν και οι διορθωτικοί παράγοντες για τις τρείς ισχυρότερες κορυφές του ¹⁵⁴Eu που παρουσίαζαν καλή στατιστική μέτρησης, καλύπτοντας όλο το ενεργειακό εύρος ενδιαφέροντος. Από την σύγκριση των αποτελεσμάτων (Πίνακας 4.2) προέκυψε ότι η μέση απόκλιση μεταξύ θεωρητικών και πειραματικών αποτελεσμάτων ήταν κάτω από 1%, ενώ σε όλες τις περιπτώσεις δεν ξεπέρασε το 7%. Δεδομένου ότι το σχετικό σφάλμα των υπολογισμών του κώδικα λαμβάνεται ως 5% και το αντίστοιχο των πειραματικών ήταν της τάξης του 2%, η συμφωνία στα αποτελέσματα κρίνεται ικανοποιητική.

Πίνακας 4.2. Σύγκριση πειραματικών τιμών και θεωρητικών υπολογισμών του EFFTRAN του συντελεστή διόρθωσης πραγματικής συμπτωτικής άθροισης για τις εντονότερες φωτοκορυφές της εκτεταμένης πηγής¹⁵²Eu/¹⁵⁴Eu μεγάλης γεωμετρίας ιζήματος σε επαφή με το παράθυρο του HPGe ανιχνευτή GC5021.

Ενέργεια (keV)	Πειραματικό f _s	Σχ. Σφάλμα (%)	EFFTRAN f _s	Απόκλιση (%)
¹⁵² Eu				
45.50 [*]	1.350	2.2	1.361	0.8
121.78	1.048	1.1	1.122	7.1
244.70	1.110	2.6	1.168	5.1
344.28	1.023	1.4	1.081	5.6
443.96	1.150	2.6	1.151	0.1
778.92	1.100	3.0	1.112	1.0
867.39	1.188	6.1	1.189	0.1
964.05	1.061	3.0	1.074	1.2
1085.84	0.955	3.3	0.948	-0.7
1112.09	1.036	3.2	1.035	-0.1
1408.02	1.045	2.8	1.052	0.6
¹⁵⁴ Eu				
123.07	1.024	1.2	1.093	6.7
247.97	1.130	2.6	1.202	6.3
1274.54	1.076	3.1	1.055	-2.0

* φαινόμενη ενέργεια συμβαλλόμενων ακτίνων-Χ του Sm

Με δεδομένο την ικανοποιητική ακρίβεια των υπολογισμών του κώδικα, υπολογίστηκαν HPGe οι διορθωτικοί παράγοντες fs των φωτοκορυφών του ¹⁵²Eu για τους τρείς ανιγγευτές και γρησιμοποιήθηκαν στις βαθμονομήσεις για τις γεωμετρίες μέτρησης ιζήματος αναφοράς με πυκνότητα ρ=1 gr/cm³ και νερού. Επίσης, προσδιορίστηκαν και οι διορθωτικοί παράγοντες για τις εντονότερες κορυφές του 134 Cs για την γεωμετρία μέτρησης 137 Cs με AMP. Οι διορθώσεις αυτές, που σε ορισμένες περιπτώσεις έφταναν μέχρι και το 100%, ήταν μεγαλύτερες για τις μικρότερες γεωμετρίες. Αυτή η τάση ερμηνεύεται από το γεγονός ότι οι μικρότερες γεωμετρίες ιζήματος παρουσιάζουν μεγαλύτερη συνολική στερεάς γωνίας, η οποία σύμφωνα με τη σχέση (4.6) είναι ανάλογη της πιθανότητας να πραγματοποιηθεί πραγματική συμπτωτική άθροιση φωτοκορυφών. Επιπλέον οι διορθώσεις ήταν μεγαλύτερες για τον ανιγνευτή με το υπέρλεπτο παράθυρο C (GEM-FX 8530P4) καθώς οι απορροφήσεις στο παράθυρο του ανιχνευτή ήταν αμελητέες, η απόσταση από παραθύρου-κρυστάλλου (5 mm) και η νεκρή ζώνη του Ge ήταν η μικρότερη (0.01 mm) και η διάμετρος του κρυστάλλου μεγαλύτερη (84.8 mm) με αποτέλεσμα η στερεά γωνία να είναι μεγαλύτερη σε σχέσεις με τους άλλους δύο ανιχνευτές. Αντίστοιγα και ο GC8023 (σχετικής απόδοσης 80%) παρουσίασε μεγαλύτερο βαθμό διορθώσεων από τον GC5021 (σχετικής απόδοσης 50%) λόγω των διαστάσεών του που ευνοούν την αύξηση της πιθανότητας πραγματοποίησης ταυτόχρονης καταγραφής αλλεπάλληλα εκπεμπόμενων ακτίνων-γ.

Πίνακας 4.3. Συντελεστές διόρθωσης πραγματικής συμπτωτικής άθροισης f_s των εντονότερων φωτοκορυφών (α) του ¹⁵²Eu και για την μικρή και μεγάλη γεωμετρία (5.4 cm³ και 65.4 cm³, αντίστοιχα) ιζήματος αναφοράς (ρ =1 gr/cm³) και νερού (0.6 L και 2.2 L, αντίστοιχα) και (β) του ¹³⁴Cs για γεωμετρία φίλτρου (3 mm) AMP, σε επαφή με το παράθυρο των ανιχνευτών HPGe που χρησιμοποιήθηκαν, όπως υπολογίστηκαν από το EFFTRAN.

Ενέργεια	Γεωμετρία				
(keV)	5.4 cm ³	65.4 cm ³	0.6 L	2.2 L	
GEM-FX8530P4					
121.78	1.631	1.372	1.140	1.135	
244.70	2.037	1.587	1.202	1.197	
344.28	1.190	1.138	1.068	1.068	
443.96	1.866	1.498	1.175	1.176	
778.92	1.316	1.220	1.093	1.091	
867.39	2.262	1.701	1.210	1.197	
964.05	1.694	1.381	1.105	1.096	
1085.84	1.103	1.034	0.991	0.989	
1112.09	1.560	1.302	1.077	1.068	
1408.02	1.607	1.329	1.085	1.076	
GC5021					
121.78	1.197	1.134	1.079	1.081	
244.70	1.278	1.182	1.106	1.112	
344.28	1.130	1.089	1.050	1.050	
443.96	1.249	1.163	1.098	1.101	
778.92	1.190	1.126	1.060	1.059	
867.39	1.327	1.207	1.096	1.094	
964.05	1.122	1.079	1.040	1.039	
1085.84	0.918	0.956	0.985	0.986	
1112.09	1.058	1.041	1.021	1.021	
1408.02	1.085	1.055	1.027	1.026	
GC8023					
121.78	1.253	1.171	1.097	1.098	
244.70	1.343	1.226	1.121	1.128	
344.28	1.168	1.114	1.061	1.061	
443.96	1.312	1.206	1.110	1.119	
778.92	1.247	1.161	1.074	1.072	
867.39	1.399	1.255	1.113	1.111	
964.05	1.136	1.091	1.043	1.043	
1085.84	0.916	0.950	0.981	0.982	
1112.09	1.060	1.043	1.022	1.021	
1408.02	1.090	1.060	1.029	1.028	

Πίνακας 4.4. Συντελεστές διόρθωσης πραγματικής συμπτωτικής άθροισης f _s των εντονότερων
φωτοκορυφών του ¹³⁴ Cs για γεωμετρία φίλτρου (3 mm) AMP, σε επαφή με το παράθυρο των
ανιχνευτών HPGe που χρησιμοποιήθηκαν, όπως υπολογίστηκαν από το EFFTRAN.

Ενέργεια	Ανιχνευτής				
(keV)	GEM-FX 8530P4	GC5021	GC8023		
569.33	1.544	1.329	1.439		
604.72	1.296	1.188	1.246		
795.83	1.300	1.186	1.243		

4.2 Monte Carlo προσομοιώσεις

Από την μεθοδολογία βαθμονόμησης που έχει παρουσιαστεί μέχρι τώρα, είναι σαφές ότι η καλή γνώση της απόδοσης της ανιχνευτικής διάταξης είναι προαπαιτούμενη ποιοτικών μετρήσεων ενεργότητας ραδιονουκλιδίων. Η απόδοση εξαρτάται από τη γεωμετρία ανίχνευσης και τα χαρακτηριστικών της ανιχνευτικής διάταξης και του δείγματος. Βασιζόμενοι στην ακριβή γνώση των παραπάνω πληροφοριών, πέρα από την πειραματική μεθοδολογία της βαθμονόμησης με τις απαραίτητες συνεπακόλουθες διορθώσεις για την εκτίμηση της απόδοσης, εναλλακτικά/συμπληρωματικά εφαρμόζεται και η μαθηματική μεθοδολογία υπολογισμού που στηρίζεται στην τεχνική της Monte Carlo προσομοίωσης.

Η τεχνική αυτή είναι ένα ισχυρό εργαλείο μοντελοποίησης, ιδιαίτερα αποτελεσματική στην ανάλυση πολύπλοκων συστημάτων μέσω μιας ρεαλιστικής απόδοση της πραγματικότητας. Γενικά μπορεί να ορίζεται ως μια μεθοδολογία για την εκτίμηση της λύσης μαθηματικών προβλημάτων με τη βοήθεια τυχαίων αριθμών. Πρακτικά με την τεχνική αυτή επαναλαμβάνεται θεωρητικά μια στατιστική διαδικασία (όπως η αλληλεπίδραση των πυρηνικών σωματιδίων με την ύλη) και είναι ιδιαίτερα χρήσιμη για σύνθετα προβλήματα που δεν μπορούν να επιλυθούν με αναλυτικούς υπολογισμούς που χρησιμοποιούν προσδιοριστικές μεθόδους (τεχνικές αριθμητικής ανάλυσης). Τα διαδοχικά επιμέρους πιθανά γεγονότα συνθέτουν τελικά τη διαδικασία της προσομοίωσης ενός φαινομένου, ενώ οι κατανομές πιθανοτήτων που διέπουν αυτά τα γεγονότα επιλέγονται τυχαία για να περιγράψουν το συνολικό φαινόμενο.

Στην περίπτωση της περιγραφής κινούμενων σωματιδίων όπως τα φωτόνια, η τεχνική Monte Carlo αυτή είναι κατ 'εξοχήν ρεαλιστική, δηλαδή αποτελεί ένα θεωρητικό πείραμα, σε αντίθεση με υπολογιστικές διαδικασίες που χρησιμοποιούν ντετερμινιστικές μεθόδους και αναλυτικές σχέσεις. Αποτελείται από την πραγματική παρακολούθηση της πορείας κάθε ενός από πολλά σωματίδια (π.χ. φωτόνια), μετά την δημιουργία τους από μια πηγή έως τον εξαφάνισή του σε κάποια κατηγορία τερματισμού (απορρόφηση, σκέδαση, διαφυγή κ.λ.π.). Προκαθορισμένες κατανομές πυκνότητας πιθανότητας (probability distribution functions) επιλέγονται με τυχαίο τρόπο από τα δεδομένα της μεταφορικής κίνησης, ώστε να καθορίσουν το αποτέλεσμα σε κάθε βήμα της ζωής του σωματιδίου. Έτσι επιτυγχάνεται η θεωρητική επανάληψη μιας στατιστικής διαδικασίας για ένα προκαθορισμένο πλήθος γεγονότων.

Ο αριθμός των δοκιμών που απαιτούνται για να περιγράψει επαρκώς ένα περίπλοκο φυσικό φαινόμενο είναι αρκετά μεγάλο και αντιστρόφως ανάλογο του στατιστικού σφάλματος του τελικού υπολογισμού, για το λόγω αυτό η προσομοίωση εκτελείται από ηλεκτρονικό υπολογιστή. Τελικά, η μέθοδος καταγράφει τη "μέση συμπεριφορά" των προσομοιωμένων σωματιδίων και κατ' επέκταση, με βάση το κεντρικό οριακό θεώρημα (central limit theorem), προσδιορίζεται η μέση τιμή της εξεταζόμενης ποσότητας των σωματιδίων σε ένα φυσικό σύστημα.

Η τεχνική Monte Carlo είναι ιδανική για την επίλυση πολύπλοκων, τρισδιάστατων προβλημάτων και χρησιμοποιείται ευρέως για την ανάλυση σύνθετων φυσικών φαινομένων σε πολλά πεδία της έρευνας και της τεχνολογίας, όπως για υπολογισμούς ανιχνευτικών συστημάτων, δοσιμετρίας, βαθμονομήσεων, θωρακίσεων κ.ά. Για το λόγω αυτό, πληθώρα κωδίκων βασισμένων στη μέθοδο Monte Carlo, έχουν αναπτυχθεί ήδη από τα μέσα της δεκαετίας του '80, που συνεχώς αναβαθμίζονται όπως τα EGS4 [Nelson et al., 1985], EGSnrc [Kawrakow and Rogers, 2006], GEANT4 [Agostinelli et al., 2003], GEANT3 [Brun et al., 1987], CYLTRAN [Ludington and Helmer, 2000], ETRAN [Seltzer, 1991], ITS3 [Halbleib et al., 1992], PENELOPE [Salvat et al., 2006], MCNPX [McKinney et al., 2006], MCNP [Briesmeister, 1991], FLUKA [Ferrari, 2005], GESPECOR [Sima et al., 2001], VGL [Plenteda and De Geer, 2002], TRIPOLI-4 [Both et al., 2003], DETEFF [Diaz and Vargas, 2008] κ.ά. Μεγάλο πλήθος εφαρμογών των μεθόδων προσομοίωσης Monte Carlo αφορά και στη βαθμονόμηση ανιχνευτικών διατάξεων και ιδιαίτερα τον προσδιορισμό της καμπύλης απόδοσης ανιχνευτών Ge, με χρήση ορισμένων από τους παραπάνω κώδικες. Τα τελευταία χρόνια σειρά δημοσιεύσεων και εργασιών αναφέρονται σε βαθμονομήσεις ανιχνευτών HPGe [Rodenas et al., 2000; Hardy et al., 2002; Helmer et al., 2003; Karamanis, 2003] και συγκεκριμένα για περιβαλλοντικά δειγμάτων [Hernandez and El-Daoushy, 2003; Saegusa et al. 2004; Vargas and Guerra, 2006], δείχνοντας την ευρύτερη αποδοχή και την συστηματική εφαρμογή της μεθόδου στον τομέα της ραδιενέργειας περιβάλλοντος, ενώ η εφαρμογή τους σε εκτεταμένες γεωμετρίες έχει δώσει διακύμανση αποτελεσμάτων της τάξης του 2% με εξαίρεση στις γαμηλές ενέργειες που οι αποκλίσεις φτάνουν μέγρι και 10% [Vidmar et al., 2008].

4.2.1 Ο κώδικας ΜCNP

Ο κώδικας προσομοίωσης που χρησιμοποιήθηκε ήταν ο Monte Carlo N-Particles (MCNP) που αναπτύχθηκε στο Los Alamos National Laboratory [MCNP, 2014]. Πρόκειται για Monte Carlo κώδικα μεταφοράς γενικής χρήσης και γεωμετρίας, συνεχούς ενεργειακού φάσματος και χρονικής εξάρτισης. Τα σωματίδια που παρακολουθεί είναι νετρόνια, φωτόνια και ηλεκτρόνια. Μπορεί να χρησιμοποιηθεί για ένα ή οποιονδήποτε συνδυασμό των παραπάνω σωματιδίων και για ενέργειες από 10⁻¹¹ MeV μέχρι 20 MeV για τα νετρόνια και από 1 keV έως 1000 MeV για τα φωτόνια και ηλεκτρόνια και ατομικά δεδομένα συνεχούς ενεργειακού φάσματος από τις βιβλιοθήκες δεδομένων Evaluated Nuclear Data File (ENDF), Evaluated Nuclear Data Library (ENDL), Activation Library (ACTL) και

Applied Nuclear Science Group of Los Alamos (T–2). Πρακτικά, ο χρήστης δημιουργεί ένα αρχείο εισόδου, που εν συνεχεία εκτελείται από το MCNP, με πληροφορίες που: (α) προσδιορίζουν επακριβώς την γεωμετρία, (β) περιγράφουν τα υλικά και τις φυσικές τους ιδιότητες, (γ) την θέση και τα χαρακτηριστικά της πηγής των νετρονίων, φωτονίων ή ηλεκτρονίων, (δ) το είδος των απαντήσεων ή επιθυμητών ιδιοτήτων προς διερεύνηση, και (ε) τυχόν τεχνικές μείωσης διακύμανσης των αποτελεσμάτων, για τη βελτίωση της στατιστικής. Ένα τέτοιο αρχείο αποτελείται αρχικά από ένα μέρος δεδομένων, ή αλλιώς κάρτα (card), που περιγράφουν τα αντικείμενα που δημιουργούνται στο χώρο και έχουν συγκεκριμένη γεωμετρία, σύσταση και θέση στο χώρο (cells card), μια κάρτα που περιγράφει τα γεωμετρικά σχήματα και τις επιφάνειες που εμφανίζονται στον προσομοιωμένο χώρο (surface card) και τέλος μία κάρτα που περιέχει τα υπόλοιπα απαιτούμενα δεδομένα και προσδοκώμενα αποτελέσματα (data card).

Στην παρούσα διατριβή, χρησιμοποιήθηκε η έκδοση MCNP5 [X-5 Monte Carlo Team, 2003] με σκοπό την προσομοίωση της απόλυτης απόδοσης για δείγματα νερού και ακολούθως την σύγκριση των αποτελεσμάτων με αυτά της πειραματικής βαθμονόμησης. Πρόσφατα έχουν υλοποιηθεί με τον κώδικα MCNP5 βαθμονομήσεις ανιχνευτών p-τύπου HPGe για σημειακές πηγές [Helmer et al., 2004; Dryak and Kovar, 2006; Boson et al., 2008; Tzika et al., 2010; Agarwal et al., 2011] και εκτεταμένες πηγές περιβαλλοντικών δειγμάτων [Ródenas et al., 2007; Huy et al., 2012, 2013; Conti et al., 2013], ενώ ανάλογες εργασίες έχουν πραγματοποιηθεί και για το συγκεκριμένο τύπο ανιχνευτών (GEM-FX της ORTEC) που προσομοιώθηκε εδώ [Keyser and Hensley, 2005; 2007; Maurotto et al. 2009].

4.2.2 Προσομοιώσεις μετρήσεων

Στο πλαίσιο της διερεύνησης της ακρίβειας των βαθμονομήσεων που πραγματοποιήθηκαν με πειραματικό-εμπειρικό τρόπο, υλοποιήθηκαν και καθαρά θεωρητικοί υπολογισμοί με τον κώδικα MCNP5 για ορισμένες περιπτώσεις

μετρήσεων. Συγκεκριμένα, παίρνοντας σαν έναυσμα την έλλειψη πειραματικών σημείων απόλυτης απόδοσης στις χαμηλές ενέργειες (<120 keV) για την περίπτωση υγρών δειγμάτων και δεδομένης της δυσκολίας δημιουργίας τέτοιων πηγών αναφοράς ικανής ενεργότητας, θεωρήθηκε σκόπιμο να προσδιοριστεί με αξιοπιστία σε μεγαλύτερο εύρος ενεργειών η απόλυτη απόδοση φωτοκορυφής με



Σχήμα 4.5. Γεωμετρικό διάγραμμα του ανιχνευτή HPGe.

Monte Carlo προσομοίωση για της εκτεταμένες γεωμετρίες νερού 0.6 και 2.2 L στον HPGe GEM-FX 8530P4 στην ανιχνευτική διάταξη του ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε [Eleftheriou et al., 2014].

Πρώτο και σημαντικότερο κομμάτι για την σωστή εφαρμογή του κώδικα είναι η ακριβής περιγραφή της ανιχνευτικής διάταξης. Ιδιαίτερη προσοχή δόθηκε στην περιγραφή του κρυστάλλου του ανιχνευτή, καθώς αποτελεί τον ενεργό όγκο καταγραφής των ανιχνεύσιμων δεδομένων, για αυτό και συλλέχτηκαν επιπλέον κατασκευαστικές λεπτομέρειες (Σχήμα 4.5). Εκτός όμως των δεδομένων που προέρχονται από την κατασκευάστρια εταιρία και αφορούν στον ανιχνευτή καθεαυτό, έγιναν μετρήσεις με τη μεγαλύτερη δυνατή ακρίβεια και των υπολοίπων στοιχείων και διαστάσεων που περνούν μέρος στην διαδικασία μέτρησης και κρίθηκαν απαραίτητες (Σχήμα 4.6). Μέτρηση πραγματοποιήθηκε και για τον ακριβή προσδιορισμό της πυκνότητας του υλικού των μπουκαλιών τοποθέτησης του δείγματος. Για την θωράκιση, το προστατευτικό κάλυμμα, το παράθυρο και το εξωτερικό κάλυμμα του ανιχνευτή χρησιμοποιήθηκαν οι τιμές αναφοράς του κατασκευαστή και του MCNP5.





Με βάση τα παραπάνω δεδομένα αναπτύχθηκε κατάλληλο μοντέλο προσομοίωσης της πειραματικής διάταξης για τα δύο μπουκάλια νερού, έτσι ώστε να περιλαμβάνονται τα σημαντικά από φυσικής άποψης αντικείμενα και να περιοριστούν οι περιττές λεπτομέρειες, που θα είχαν ως αποτέλεσμα την άσκοπη από πλευράς ακρίβειας, πολυπλοκότητα του κώδικα. Οι απλουστεύσεις που πραγματοποιήθηκαν περιλαμβάνουν τα ηλεκτρονικά του ανιχνευτή, τα αντικείμενα του περιβάλλοντα

χώρου, ενώ οι διαστάσεις του δωματίου, της θωράκισης του ανιχνευτή και των μπουκαλιών, διατηρήθηκαν ακριβείς. Η γεωμετρία του μοντέλου ελέγχθηκε με την βοήθεια του συμπεριλαμβανομένου με τον κώδικα MCNP5, πρόγραμμα γραφικών VisEd (Σχήμα 4.7). Για το μοντέλο ανιχνευτή που προέκυψε προσομοιώθηκαν τα ενεργειακά φάσματα βαθμονόμησης ¹⁵²Eu/¹⁵⁴Eu και η απόλυτη απόδοση φωτοκορυφής για τις ενέργειες των 10 εντονότερων ακτίνων-γ του ¹⁵²Eu και κατόπιν συγκρίθηκαν με τα αντίστοιχα πειραματικά αποτελέσματα.



Σχήμα 4.7. Σχηματική αναπαράσταση της προσομοιωμένης ανιχνευτικής διάταζης HPGe για τις γεωμετρίες μεγάλου και μικρού μπουκαλιού σε επαφή, με το πρόγραμμα γραφικών VisED.

Περαιτέρω βελτιστοποίηση του μοντέλου περιλαμβάνει τον προσδιορισμό του ενεργού όγκου του κρυστάλλου του ανιχνευτή. Ο ενεργός όγκος του κρυστάλλου προσδιορίστηκε υποθέτοντας ένα ανενεργό νεκρό στρώμα (dead layer) Ge στις άκρες του κρυστάλλου λόγω της ύπαρξης μιας μεταβατικής ζώνης μεταξύ του αδρανούς στρώματος στα σημεία επαφής με τα ηλεκτρόδια του ανιχνευτή και του φωτοηλεκτρικά ενεργού Ge στο κρυσταλλικό πλέγμα. Η ζώνη αυτή πρακτικά είναι πολύ δύσκολο να εκτιμηθεί με ακρίβεια, ενώ οι τιμές που δίδονται από τον κατασκευαστεί δεν μπορούν παρά να θεωρηθούν ενδεικτικές. Το πάχος ανενεργού και

προσομοιωμένων φασμάτων ¹⁵²Eu/¹⁵⁴Eu για την γεωμετρία σημειακής πηγής (25 cm απόσταση από το κρύσταλλο) μετά από διαδοχικές τροποποιήσεις του μοντέλου, ενώ τελικά η βέλτιστη συμφωνία (απόκλιση <5%) μεταξύ πειραματικού και προσομοιωμένου φάσματος επιτεύχθηκε για τιμές νεκρούς στρώματος 12 και 600 μm, για την μπροστινή και τις πλάγιες πλευρές του κρυστάλλου, αντιστοίχως.

Όσον αφορά τα φυσικά φαινόμενα αλληλεπίδρασης ακτινοβολίας-ύλης που λαμβάνονται υπόψη κατά την προσομοίωση, επιλέχθηκε το απλό φυσικό μοντέλο που προβλέπεται από τον κώδικα – που συμπεριλαμβάνει το φωτοηλεκτρικό φαινόμενο με παραγωγή φθορισμού, τη σκέδαση (coherent, incoherent) και την παραγωγή ζεύγος – στο οποίο καταγράφονται οι τροχιές των δευτερογενών σωματιδίων με όριο ενέργεια 1 keV για ηλεκτρόνια και φωτόνια. Οι φωτοκορυφές του ¹⁵²Eu και ¹⁵⁴Eu με εντάσεις άνω του 1% συμπεριλήφθησαν στο μοντέλο με πιθανότητα εκπομπής κανονικοποιημένη στη μονάδα, λαμβάνοντας υπόψη την πιθανότητα εκπομπής κανουιωμένα φάσματα η ενεργειακή διακριτοποίηση ορίστηκε στα 4096 κανάλια, ενώ η διακριτική ικανότητα του ανιχνευτή αναπαράχθηκε χρησιμοποιώντας την επιλογή Gaussian ενεργειακής διεύρυνσης (Gaussian Energy Broadening, GEB) του κώδικα, με αναφορά στις πειραματικές τιμές βαθμονόμησης. Ο συνολικός αριθμός των παραγόμενων γεγονότων ορίστηκε να είναι 10⁷, αποδίδοντας ένα σχετικό σφάλμα μικρότερο από 1% για το κεντροειδές κάθε φωτοκορυφής (Παράρτημα 4).

Η ποιότητα των προσομοιωμένων φασμάτων ήταν σε όλες τις περιπτώσεις ικανοποιητική ενώ η επιφάνεια των προσομοιωμένων φωτοκορυφών στην περίπτωση των εκτεταμένων γεωμετριών απέκλινε λιγότερο από 20% από αυτή των πειραματικών, καθώς ο κώδικας κάθε αυτός δεν περιλαμβάνει πραγματική συμπτωτική άθροιση. (Το φαινόμενο μπορεί να συμπεριληφθεί με την χρήση του επιπρόσθετου κώδικα αποδιέγερσης ραδιονουκλιδίων MCNP-CP [Berlizov, 2006], που έχει εφαρμοστεί με επιτυχία σε αρκετές περιπτώσεις [Szentmiklósi and Berlizov, 2009; Berlizov and Mayer, 2010; Vidmar and Vodenik, 2010; Berlizov et al., 2011] αλλά στην παρούσα εργασία δεν εφαρμόστηκε). Η ασυμπτωτική μορφή των πειραματικών φωτοκορυφών που εμφανίζεται κυρίως στις υψηλότερες ενέργειες και οφείλεται στην διαμόρφωση μορφής των ηλεκτρικών παλμών από τις ρυθμίσεις του ενισχυτή δεν περιλήφθηκε στο μοντέλο προσομοίωσης. Στην συνέχεια ακολουθεί παράδειγμα προσομοιωμένου χαρακτηριστικό uε πειραματικού φάσματος 152 Eu/ 154 Eu.

Παρά την ικανοποιητική αναπαραγωγή των πειραματικών φασμάτων, ένας αριθμός φωτοκορυφών δεν εμφανίζονται στο προσομοιωμένο φάσμα (Σχήμα 4.8, λεζάντες a-f): (α) η κορυφή στα 32 keV υπάρχει μόνο στο πειραματικό φάσμα δεδομένου ότι πρόκειται για επικαλυπτόμενες ακτίνες-X του La το οποίο χρησιμοποιείται για τη χημική διαχωρισμό του ¹⁵²Eu και ίχνη του συναντώνται στο τελικό διάλυμα πηγής αναφοράς, (β) οι φωτοκορυφές στα 33 και 48 keV που οφείλονται στην υπέρθεση ακτίνων-X και χαμηλής έντασης (<1%) ακτίνων-γ και δεν



Σχήμα 4.8. Πειραματικό (μαύρη γραμμή, μπροστά) και προσομοιωμένο (γκρι γραμμή, στο φόντο) φάσμα ενεργειακής βαθμονόμησης με¹⁵²Eu και ¹⁵⁴Eu για μπουκάλι 2.2 L σε επαφή με τον ανιχνευτή.

συμπεριλήφθηκαν στα φάσματα προσομοίωσης και (γ) η φωτοκορυφή στα 1447.8 keV που προέρχεται από τη πραγματική συμπτωτική άθροιση φωτονίων διαφορετικών ενεργειών που δεν συμπεριλαμβάνονται σους υπολογισμούς του κώδικα MCNP5. Για τον ίδιο λόγω, οι φωτοκορυφές των ακτίνων-X του Pb στην περιοχή της ενέργειας μεταξύ 65 και 85 keV έχουν υποεκτιμηθεί ελαφρά κατά τη προσομοίωση. Σε αυτή την περίπτωση, αλλά και γενικότερα για τις εντονότερες αποκλίσεις στις χαμηλότερες ενέργειες, ένας επιπλέον λόγος, των Monte Carlo αλγορίθμων εν γένει, είναι οι προεπιλεγμένες τιμές των παραμέτρων μοντελοποίησης που επηρεάζουν έντονα τη συμπεριφορά των προσομοιώσεων και οδηγούν συχνά σε υποεκτιμήσεις [Karfopoulos and Anagnostakis, 2010].

Μετά την ανάλυση των προσομοιωμένων φασμάτων, με τον ίδιο ακριβώς τρόπο όπως και τα αντίστοιχα πειραματικά, προέκυψε η εκτιμώμενη από το μοντέλο απόλυτη απόδοση των δέκα κυριότερων φωτοκορυφών για το ¹⁵²Eu για την σημειακή πηγή σε απόσταση 25 cm από τον κρύσταλλο και τις πηγές εκτεταμένης γεωμετρίας των 0.6 και 2.2 L, ενώ με βάση τα πειραματικά αποτελέσματα υπολογίστηκε και η σχετική απόκλιση μεταξύ προσομοιωμένων και πειραματικών τιμών.

_ /	MCNP5		Πειρο			
ένεργεία (keV)	Απόλυτη απόδοση	Σχ. Σφάλμα (%)	Απόλυτη απόδοση	Σχ. Σφάλμα (%)	Απόκλιση (%)	
Σημειακή πηγή στα 25 cm						
121.78	0.00459	1.4	0.00423	3.2	8.5	
244.70	0.00271	1.6	0.00265	4.6	2.3	
344.28	0.00193	1.5	0.00186	3.6	3.8	
443.96	0.00149	2.1	0.00147	1.8	1.4	
778.92	0.00086	1.7	0.00085	1.8	1.7	
867.39	0.00076	2.5	0.00079	2.5	-3.0	
964.05	0.00070	1.6	0.00071	1.5	-1.3	
1085.84	0.00063	1.7	0.00065	2.1	-3.1	
1112.09	0.00061	1.7	0.00062	1.7	-2.4	
1408.02	0.00048	1.6	0.00051	1.6	-4.7	
Μικρή πηγή (0.6 L) νερού						
121.78	0.01620	0.4	0.01770	4	8.4	
244.70	0.01170	0.9	0.01160	4.2	-1.1	
344.28	0.00896	0.6	0.00935	4.1	4.2	
443.96	0.00659	0.9	0.00664	5.4	0.8	
778.92	0.00478	1.2	0.00488	4.2	1.8	
867.39	0.00442	2.2	0.00445	3.1	0.7	
964.05	0.00413	1.3	0.00410	4.2	-0.6	
1085.84	0.00382	1.7	0.00384	4.4	0.5	
1112.09	0.00376	1.5	0.00373	4.3	-0.8	
1408.02	0.00319	1.4	0.00316	4.1	-0.9	

Πίνακας 4.5. Σύγκριση μεταζύ προσομοιωμένων και πειραματικών αποδόσεων φωτοκορυφών για τις δέκα εντονότερες ακτίνες-γ του ¹⁵²Eu.

Μενάλη πηνή (2.2 L) νερού						
121.78	0.00997	0.4	0.01010	2	0.9	
244.70	0.00725	0.4	0.00672	2.2	-7.9	
344.28	0.00513	0.5	0.00516	2	0.6	
443.96	0.00450	0.5	0.00449	2.9	-0.3	
778.92	0.00299	0.7	0.00292	2.2	-2.3	
867.39	0.00287	0.7	0.00276	3.1	-4.2	
964.05	0.00259	0.7	0.00260	2.2	0.3	
1085.84	0.00241	0.7	0.00250	2.3	3.3	
1112.09	0.00236	0.7	0.00234	2.2	-1	
1408.02	0.00198	0.8	0.00200	2.1	1.1	

Από τα αποτελέσματα της σύγκρισης προέκυψε αποδεκτή συμφωνία μεταξύ πειραματικών και θεωρητικών εκτιμήσεων. Η απόκλιση (απόλυτες τιμές) κυμαίνονταν από 0.4 έως 8.4%, ενώ θετικά κρίνεται το γεγονός ότι δεν υπήρξε κάποια σαφής τάση υπερεκτίμησης ή υποεκτίμησης της απόλυτης απόδοσης ως προς την ενέργεια. Μεγαλύτερη διαφωνία παρατηρείται στις χαμηλές ενέργειες γεγονός που οφείλεται στην αδυναμία του κώδικα να αναπαράγει με ακρίβεια την ενδοαπορρόφηση των χαμηλοενεργειακών ακτίνων-γ σε εκτεταμένες γεωμετρίες πηγών [Hardy et al., 2002; Vargas και Guerra, 2006]. Η τάση αυτή θα μπορούσε να σε αβεβαιότητες στην παραμετροποίηση των δεδομένων του αποδοθεί φωτοηλεκτρικό φαινόμενο στον κώδικα MCNP και στη χρήση γραμμικής παρεμβολής των λογαριθμικών δεδομένων της ενεργού διατομής των φωτονίων, ακόμη και για ενέργειες κάτω από το άκρο απορρόφησης της Κ-στοιβάδας στα 109.7 keV [Karamanis et al., 2002; Karamanis, 2003]. Αναμενόμενο επίσης θεωρείται και το γεγονός ότι το σφάλμα στην περίπτωση της πειραματικής διαδικασίας είναι κατά πολύ μεγαλύτερο από το σφάλμα εκτίμησης στο κεντροεϊδές των προσομοιωμένων φωτοκορυφών.

Εφόσον ελέγχθηκε η αξιοπιστία των μοντέλων προσομοίωσης και προσδιορίστηκε ο βαθμός εμπιστοσύνης των προσομοιωμένων τιμών, είναι δυνατός ο υπολογισμός της απόδοσης φωτοκορυφής σε οποιαδήποτε ενέργεια, ακόμα και για διαφορετικές γεωμετρίες μέτρησης. Η προσομοίωση της διαδικασίας βαθμονόμησης με αυτή την έννοια είναι ένα χρήσιμο βοηθητικό εργαλείο για τα εργαστήρια ραδιενέργειας περιβάλλοντος, δεδομένου ότι μπορούν να εξεταστούν μια σειρά από περιβαλλοντικών εκτεταμένες γεωμετρίες δειγμάτων. Тα διαφορετικές προσομοιωμένα μοντέλα που δοκιμάστηκαν εδώ αποδείχθηκαν ικανοποιητικά για τις ανάγκες της μετρήσεων ρουτίνας ραδιενέργειας περιβαλλοντικών δειγμάτων, δεδομένου ότι η μέση αβεβαιότητα της διακύμανσης μεταξύ πειραματικών και προσομοιωμένων απόλυτης απόδοσης φωτοκορυφής είναι 5%. Για πιο ακριβείς μετρήσεις σε χαμηλότερες ενέργειες, απαιτείται λεπτομερέστερη διερεύνηση των παραμέτρων που χρησιμοποιούνται στην προσομοίωση για τη βελτιστοποίηση των γεωμετρικών χαρακτηριστικών του συστήματος (π.χ. απόσταση μεταξύ κρυστάλλου και παράθυρου Al, διάμετρος και πάχος των νεκρού στρώματος του κρυστάλλου) με

πρόσθετες πειραματικές μεθόδους, όπως ακτινογραφία [Dryak and Kovak, 2006] και σάρωση του ανιχνευτή με ευθυγραμμισμένες πηγές ακτίνων-γ [Keyser, 2004].

Εν προκειμένω, ένας επιπλέον στόχος των προσομοιώσεων ήταν ο προσδιορισμό της ενεργότητας σε μεγαλύτερο ενεργειακό εύρος. Κάτι τέτοιο δίνει την δυνατότητα σύγκρισης, για καθαρά ερευνητικούς λόγους, της απευθείας συλλογής νερού με τα μπουκάλια δειγματοληψίας στο σημείο ενδιαφέροντος (on-site) και την άμεση εργαστηριακή τους μέτρηση, με την απευθείας επιτόπια μέτρηση (insitu) με φασματοσκοπία-γ. Η σύγκριση πραγματοποιήθηκε μεταξύ της απόδοσης ανίχνευσης των εκτεταμένων δειγμάτων νερού 0.6 και 2.2 L με ανιχνευτή HPGe GEM-FX 8530P4 και του υποθαλάσσιου φασματόμετρου NaI, KATERINA. Για τον λόγο αυτό προσδιορίστηκαν θεωρητικά οι τιμές απόλυτης απόδοσης φωτοκορυφής των δύο εκτεταμένων γεωμετριών μέτρησης για ενέργειες μεταξύ 90 και 2200 keV, που καλύπτουν το ενεργειακό εύρος των ακτίνων-γ των κυρίαρχων ραδιοϊσοτόπων στο υδάτινο περιβάλλον. Επιπλέον, η ενέργεια των 90 keV μπορεί να θεωρηθεί το εφικτό κατώτερο όριο φασματομετρίας-γ για ανιχνευτές NaI και συνεπώς για την επιτόπια μέθοδο που αναφέρεται εδώ. Βασιζόμενοι στα αντίστοιχα αποτελέσματα για το φασματόμετρο KATERINA (Σχήμα 3.10) προσδιορίστηκαν οι καμπύλες ογκομετρικής απόδοσης (volumetric efficiency) για τις τρείς ανιχνευτικές διατάξεις.



Σχήμα 4.9. Καμπύλες ογκομετρικής απόδοσης (εV) του εργαστηριακού ανιχνευτικού συστήματος για γεωμετρίες 0.6 και 2.2 L μέτρησης νερού και του επιτόπιου υποβρύχιου φασματόμερου-γ ΚΑΤΕRINA.

Παράμετροι εξίσωσης προσαρμογής $\mathcal{E}(E) = aE^b \cdot \left(\frac{1}{10^3 c + E^d}\right)$						
а	b	С	d			
	MCNI	P5 0.6 L HPGe				
(9.43±0.11)×10 ⁻³	10.64±0.39	(3.4±9.6)×10 ²³	11.5±10.77	0.981		
MCNP5 2.2 L HPGe						
(2.11±0.05)×10 ⁻³	11.66±0.01	(5.17±0.93)×10 ²⁵	12.53±0.01	0.977		
GEANT4 KATERINA						
(1.58±0.44)×10 ⁻³	3.83±0.33	(3.2±5.7)×10 ⁸	4.17±0.42	0.982		

Πίνακας 4.6. Συντελεστές της σχέσης προσαρμογής (3.15) και του δείκτες ποιότητας R² των καμπύλων ογκομετρικής απόδοσης. Το σφάλμα της απόδοσης με βάση την καμπύλη προσαρμογής σε όλες τις περιπτώσεις προσδιορίζεται στο 5%.

Η ογκομετρική απόδοση (ε·V), δηλαδή το γινόμενο της απόδοσης με τον όγκο του δείγματος, μπορεί να οριστεί ως ο λόγος των ανιχνευόμενων φωτονίων προς αυτά που εκπέμπονται συνολικά σε ένα συγκεκριμένο όγκο νερού [Tsabaris et al., 2008] και είναι ισοδύναμη με την υδάτινη απόδοση ε_m , όπως αυτή περιγράφεται από τη σχέση (3.2) στο Κεφάλαιο 3.1.3.2. Η ποσότητα αυτή έχει διαστάσεις όγκου και είναι χαρακτηριστικό της μεθόδου μέτρησης, παρέχοντας ένα κοινό μέτρο σύγκρισης τους. Εξαρτάται από την ενέργεια των ακτίνων-γ και σε συνδυασμό με την πιθανότητα εκπομπής της ανιχνευόμενης ακτίνας-γ παρέχει ποσοτικά αποτελέσματα (σε Bq/m³ ή Bq/L) των ραδιονουκλιδίων στο δείγμα.

Οι καμπύλες απόδοσης για τις δύο εκτεταμένες γεωμετρίες, όπως φαίνεται στο Σχήμα 3.31 του προηγούμενου κεφαλαίου, δείχνουν ότι η απόδοση φωτοκορυφής στην περίπτωση της μικρής γεωμετρίας εμφανίζει υψηλότερες τιμές. Αυτό είναι αναμενόμενο κυρίως λόγω της διαφοράς των στερεών γωνιών, αλλά και στο γεγονός ότι στη μικρή γεωμετρία η πορεία μιας ακτίνας-γ στο εσωτερικό του δείγματος είναι μικρότερη, μειώνοντας έτσι το φαινόμενο της ενδοαπορρόφησης. Αντίθετα, οι καμπύλες της ογκομετρικής απόδοσης για τις δύο αυτές γεωμετρίας παρουσιάζουν αντίστροφη συμπεριφορά, με αυτή της μεγάλης γεωμετρίας (2.2 L) να είναι σχεδόν διπλάσια σε σχέση με την μικρή (0.6 L). Η επίδραση της ποσότητας του ανιχνευόμενου όγκου στην ογκομετρική απόδοση γίνεται ακόμα εντονότερη στην περίπτωση της μεθόδου επιτόπιας μέτρησης, καθώς σε αυτή την περίπτωση ο ανιχνευτής καταγράφει γεγονότα από ένα μεγαλύτερο όγκο νερού (ενεργός όγκος) σε σύγκριση με τον ανιχνευτή στο εργαστήριο.

4.3 Ελάχιστη Ανιχνεύσιμη Ενεργότητα (MDA)

Σημαντικό στοιχείο των μετρήσεων με κάθε αναλυτική μέθοδο είναι και ο προσδιορισμός του ορίου ανίχνευσής της. Στην περίπτωση της φασματοσκοπίας-γ ραδιονουκλιδίων, η ανιχνευτική ικανότητα άρα και το όριο ανίχνευσης, δεν εξαρτάται μόνο από το πλήθος των καταγεγραμμένων δεδομένων, αλλά και την ποιότητά τους, δηλαδή το σχήμα των φωτοκορυφών και τον λόγο σήματος προς θόρυβο σε αυτές. Το μέγεθος που εκφράζει το μικρότερο ποσό ενεργότητας ραδιονουκλιδίου που μπορεί να ανιχνευθεί αξιόπιστα σε ένα δείγμα λαμβάνοντας υπόψη τις συνθήκες μέτρησης είναι η

ελάχιστη ανιχνεύσιμη ενεργότητα (minimum detectable activity, MDA) που ποιοτικά εξαρτάται από την διακριτική ικανότητα, το υπόβαθρο και την ενεργειακή απόδοση του συστήματος ανίχνευσης [Cooper, 1970]:

$$MDA(E) \propto \frac{\sqrt{R(E)B(E)}}{\varepsilon(E)}$$
 (4.10)

όπου R(E) είναι η διακριτική ικανότητα του ανιχνευτή και εξαρτάται από το FWHM σε κάθε ενέργεια, B(E) τα γεγονότα υποβάθρου ανά μονάδα ενέργειας keV και $\varepsilon(E)$ η ενεργειακή απόδοση του συστήματος για κάθε ενέργεια φωτονίου.

Στην παραπάνω σχέση περιλαμβάνονται μόνο τα χαρακτηριστικά του ανιχνευτικού συστήματος που επηρεάζουν την MDA, ενώ είναι προφανής και η εξάρτηση από την ενέργεια των ανιχνευόμενων φωτονίων. Ο αριθμός των φωτονίων ανά ραδιενεργό διάσπαση, ο χρόνος μέτρησης του δείγματος και η θωράκιση του συστήματος είναι παράγοντες που επίσης επηρεάζουν την MDA, αλλά είναι ίδιοι για κάθε ανιχνευτή. Οι παράγοντες αυτοί στη φασματοσκοπία-γ αποτυπώνονται στη μορφή του πειραματικού φάσματος, που από την ανάλυση του υπολογίζεται ποσοτικά το MDA. Για τον υπολογισμό της ελάχιστης ανιχνεύσιμης ενεργότητας έχουν αναπτυχθεί διάφορες μέθοδοι [Currie, 1968; Anicin and Yap 1987; Shi et al. 2005] που έχουν επεκταθεί και στην περίπτωση της επιτόπιας φασματομετρίας-γ [Nir-El and Haquin 2001; Weise et al., 2006; Bagatelas et al., 2010].

Σύμφωνα με την ευρέως αποδεκτή μεθοδολογία Currie [Currie, 1995], το όριο ανίχνευσης εξαρτάται από τον καταγεγραμμένο ρυθμό γεγονότων στην φωτοκορυφή του υπό μέτρηση ραδιονουκλιδίου του πειραματικού φάσματος μέτρησης. Τα γεγονότα όμως που οφείλονται στο μετρούμενο δείγμα επικάθονται πάντα πάνω σε ένα κυμαινόμενο στατιστικά υπόβαθρο που ορίζουν και το κατώτατο όριο πραγματικών γεγονότων που τελικά μπορούν να ανιχνευθούν. Ο ελάχιστος αριθμός γεγονότων για τον οποίο μπορεί να γίνει αποδεκτή, ως ένα ποσοστό, η ανίχνευση ενός ραδιονουκλιδίου σε ένα πειραματικό φάσμα ορίζεται ως *όριο ανίχνευσης* (detection limit) L_D . Το ποσοστό με το οποίο θεωρείται μια ανίχνευση στατιστικά αποδεχτή ονομάζεται βαθμός εμπιστοσύνης (confidence level) α και από αυτή καθορίζεται και ο προκαθορισμένος στατιστικός παράγοντας k_a . Ο παράγοντας αυτός σε συνδυασμό με την τυπική απόκλιση $σ_o$ της κατανομής της τυχαίας καταγραφής μια μέτρησης, μας δίνει ανά πάσα στιγμή την πληροφορία του αν μια μέτρηση είναι στατιστικά αποδεκτή. Με στατιστικούς όρους, ο τύπος που δίνει μαθηματικά το όριο ανίχνευσης είναι:

$$L_D = k_\alpha^2 + 2k_\alpha \sigma_o \tag{4.11}$$

Η τυπική απόκλιση της κατανομής του υποβάθρου σχετίζεται άμεσα με τον αριθμός των γεγονότων του υποβάθρου *B* στην περιοχή ενδιαφέροντος (region of interest, ROI). Σε κάθε περίπτωση όταν αναφερόμαστε σε όριο ανίχνευσης είναι σαφές ότι μιλάμε για αριθμό γεγονότων σε διάφορες ενεργειακές περιοχές του φάσματος. Είναι προφανές λοιπόν ότι υπάρχουν τοπικά μέγιστα που εκφράζουν την επιλεκτική

καταγραφή γεγονότων και παρουσιάζουν Gaussian διασπορά γεγονότων γύρο από την φωτοκορυφής τους, ενώ στην περίπτωση του κοινού υποβάθρου η κατανομή αυτή είναι τυχαία. Δεδομένης της διαφορετικής μορφής λοιπόν της τυπικής απόκλισης σ_o ανάλογα του "είδους" της φασματικής περιοχής υποβάθρου και για τυπικό βαθμό εμπιστοσύνης α ίσο με 95% (k_a = 1.645), το όριο ανίχνευσης L_D παίρνει τελικά την μορφή:

$$L_{\rm D}({\rm peak}) = 2.71 + 4.65 B^{1/2}$$
 στη φωτοκορυφή και

L_D(bgr) = 2.71+13.29
$$\left(\frac{B(2m+N)}{2m}\right)^{1/2}$$
 στο υπόβαθρο (4.12)

όπου *B* είναι ο αριθμός των γεγονότων του υποβάθρου στη περιοχή ενδιαφέροντος (ROI) στην περίπτωση που μελετάτε φασματική περιοχή υποβάθρου ή το άθροισμα των γεγονότων υποβάθρου από m κανάλια αριστερά και δεξιά της περιοχής ενδιαφέροντος (ROI) και *N* ο αριθμός των καναλιών της περιοχής ενδιαφέροντος (ROI), στην περίπτωση φασματικής περιοχής φωτοκορυφής. Στην περίπτωση θεώρησης γραμμικού υπόβαθρου κάτω από την περιοχή της φωτοκορυφής ο αριθμός των γεγονότων είναι $B = (B_1+B_2)N/2m$.

Τελικά, η ελάχιστα ανιχνεύσιμη ενεργότητα ραδιονουκλιδίου προσδιορίζεται από μια φωτοκορυφή του ακτίνας-γ στο πειραματικό φάσμα από τη σχέση:

$$MDA \cdot = \frac{L_D}{\varepsilon \cdot I_{\gamma} \cdot T}$$
(4.13)

όπου MDA η ελάχιστα ανιχνεύσιμη ενεργότητα του ραδιονουκλιδίου σε Bq, L_D το όριο ανίχνευσης όπως προκύπτει από τα γεγονότα υποβάθρου της φωτοκορυφής, ε η απόλυτη απόδοση του συστήματος ανίχνευσης για τη συγκεκριμένη γεωμετρία μέτρησης, I_γ η ένταση της φωτοκορυφής και T ο χρόνος καταγραφής του φάσματος.

4.3.1 Αλγόριθμος υπολογισμού MDA

Για τον μαθηματικό υπολογισμό του ελάχιστου ορίου ανίχνευσης σε όλο το εύρος του πειραματικού ενεργειακού φάσματος έχουν αναπτυχθεί διάφοροι μαθηματικοί αλγόριθμοι [Covell, 1959; Sterlinski 1968, 1970]. Στην παρούσα μελέτη, εφαρμόστηκε η διαδικασία υπολογισμού που αναπτύχθηκε για τον προσδιορισμό του MDA στο νερό με το επιτόπιο NaI φασματόμετρο KATERINA [Bagatelas et al., 2010]. Σύμφωνα με την προτεινόμενη εκεί μεθοδολογία ο αριθμός των γεγονότων του υποβάθρου *B* ορίζεται ως το άθροισμα του αριθμού των γεγονότων στο κανάλι που βρίσκεται αριστερά B_L και δεξιά B_R του καναλιού στο οποίο υπολογίζεται το όριο ανίχνευσης L_D για κάθε σημείο του φάσματος (υπόβαθρο και φωτοκορυφές). Η επιλογή αυτή έγκειται στο ότι το υπόβαθρο στο φάσμα που καταγράφεται από τον ανιχνευτή δεν είναι γραμμικό λόγο τον αθροιστικών "ουρών" Compton από ακτίνες-γ μεγαλύτερων ενεργειών αλλά στο μεγαλύτερο μέρος του παρουσίαζε βηματική μορφή (step function), ενώ παράλληλα παρουσιάζει έντονες στατιστικές διακυμάνσεις και πολλές έντονες φωτοκορυφές σε όλο το ενεργειακό εύρος. Για να ανιχνευθεί επιπλέον
ποσότητα ραδιονουκλιδίου από αυτή του υποβάθρου θα πρέπει η τιμή του MDA να παρουσιάζει μέγιστη τιμή στην κορυφή της φωτοκορυφής. Από τη σχέση (4.12) το όριο ανίχνευσης σε κάθε κανάλι *c* του ενεργειακού φάσματος παίρνει την μορφή:

$$L_{D} = 2.71 + 4.65 \sqrt{N\left(\frac{B_{R} + B_{L}}{2}\right)} \Longrightarrow L_{D}(c) = 2.71 + 4.65 \sqrt{N\left(\frac{B(c-1) + B(c+1)}{2}\right)}$$
(4.14)

Στην παραπάνω σχέση το N εκφράζει το σύνολο των καναλιών από την αρχή μέχρι το τέλος κάθε φωτοκορυφής στο ενεργειακό φάσμα. Δεδομένου ότι οι φωτοκορυφές στα φάσματα ακτινοβολίας-γ προκύπτουν για καταγεγραμμένα γεγονότα που ακολουθούν Gaussian κατανομή με τυπική απόκλιση σ και που εφόσον είναι κανονικοποιημένη ισχύουν οι πιθανότητες p(-σ,+σ)=0.68, p(-2σ,+2σ)=0.95, p(-3σ,+3σ)=0,997 και p($-\infty$,+ ∞)=1, προκύπτει με καλή ακρίβεια ότι N=6σ. Αλλά εξ ορισμού ισχύει ότι FWHM = 2.355·σ, οπότε προκύπτει η σχέση υπολογισμού N = 2.55·FWHM και σε συνδυασμό με την σχέση (4.13) τελικά έχουμε:

$$MDA(E) \cdot I_{\gamma} = \left(2.71 + 4.65\sqrt{2.55 \cdot \frac{B(c(E) - 1) + B(c(E) + 1)}{2}}\right) \frac{\sqrt{FWHM(E)}}{\varepsilon(E) \cdot T \cdot V}$$
(4.15)

όπου V είναι ο όγκος του δείγματος και B ο αριθμός των γεγονότων στο φάσμα υποβάθρου στο συγκεκριμένο κανάλι c. Οι υπόλοιπες μεταβλητές υπολογίζονται από τις εξισώσεις ενεργειακής βαθμονόμησης c(E), διακριτικής ικανότητας FWHM(E) και ενεργειακής απόδοσης ε(E), όπως αυτές προκύπτουν από τις πειραματικές βαθμονομήσεις.

Με βάση την παραπάνω σχέση τροποποιήθηκε κατάλληλα κώδικας σε γλώσσα προγραμματισμού C++ [Μπακατέλας, 2008], για τον αυτόματο υπολογισμό του γινομένου MDA(E) · I_{ν} σε όλο το ενεργειακό εύρος ανίχνευσης, για τις δύο διατάξεις δειγμάτων νερού σε μπουκάλι 0.6 και 2 L και ιζήματος για γεωμετρίες των 5.4 και 65.5 cm³ (Παράρτημα 5). Ο κώδικας δέχεται σαν είσοδο το πειραματικό φάσμα υποβάθρου οποιασδήποτε γεωμετρίας όπως αυτό καταγράφηκε από τον ανιγνευτή και υπολογίζει για κάθε ενέργεια του φάσματος την αντίστοιχη ελάχιστη ανιχνευόμενη ενεργότητα σε Bq/m^3 ή ισοδύναμα σε Bq/kgr για τις γεωμετρίες ιζήματος θεωρώντας πυκνότητα δείγματος ίση με την μονάδα. Αναλυτικά οι υπολογισμοί απαιτούν εκτός του φάσματος υποβάθρου, το χρόνο μέτρησης και τους παραμέτρους ενεργειακής βαθμονόμησης του φάσματος εισόδου. Έπειτα ο αλγόριθμος για κάθε μία ενέργεια (για 100 keV $\leq E \leq$ 1600 keV, εφόσον μόνο σε αυτή την περιοχή θεωρείται αξιόπιστη η καμπύλη ενεργειακής απόδοσης) υπολογίζει την αντίστοιχη απόδοση ε, το αντίστοιχο FWHM και προσδιορίζει τις παραμέτρους Β που αντιστοιχούν στη περιοχή πιθανής φωτοκορυφής της ενέργειας. Ως έξοδος του προγράμματος δίνεται το γινομένου $MDA(E) \cdot I_{x}$ συναρτήσει της ενέργειας των ακτίνων-γ. Έτσι γίνεται αυτοματοποιημένα ο υπολογισμός της MDA συναρτήσει της ενέργειας των ακτίνων-γ, χωρίς να χρειάζεται να ελέγχεται μία-μία περιοχή σε κάθε φάσμα.

4.3.2 MDA μετρήσεων δειγμάτων

Με χρήση του κώδικα υπολογισμού του MDA προσδιορίστηκαν τα ενεργειακά διαγράμματα του MDA(E)· I_{γ} για όλους τους συνδυασμούς ανιχνευτή-δείγματος των μετρήσεων που πραγματοποιήθηκαν στην παρούσα εργασία. Αναλύθηκαν σειρά φασμάτων υποβάθρου 24 h, που ήταν και ο χρόνος μέτρησης των δειγμάτων, ενώ σε κάθε περίπτωση στη διάρκεια των μετρήσεων χρησιμοποιούνταν και αντίστοιχο δείγμα μηδενικής εκπομπής ακτινοβολίας-γ ίδιας γεωμετρίας και σύστασης.

Στην περίπτωση των δειγμάτων ιζήματος για τον προσδιορισμό του MDA σε B/kgr θεωρήθηκε μετρούμενο δείγμα αναφοράς πυκνότητας ρ= 1 gr/cm³. Για τον ακριβή υπολογισμό του MDA για ένα συγκεκρημένο δείγμα, αρκεί απλά να διερεθεί η προδιορισμένη από τον κώδικα τιμή αυτή με την αντίστοιχη πυκνότητα του δείγματος. Κατόπιν οι τιμές των MDA(E)· I_{γ} διαγραμμάτων πολλαπλασιάστηκαν με την πιθανότητα εκπομπής I_{γ} των ακτίνων-γ που αντιστοιχούν στην συγκεκρημένη ενέργεια. Στον πίνακα που ακολουθεί παρουσιάζονται τα αποτελέσματα του MDA για τις εντονότερες φωτοκορυφές των σημαντικότερων ραδιονουκλιδίων που ανιχνεύονται σε περιβαλλοντικά δείγματα ιζήματος. Στην περίπτωση της διπλής φωτοκορυφής στα 186 keV θεωρήθηκε, καταχρηστικά, ύπαρξη φυσικής ραδιοσκοπικής αναλογίας μεταξύ των ²³⁵U και ²²⁶Ra ώστε να δοθεί μια ρεαλιστική προσέγγιση στον υπολογισμό, ενώ για τον υπολογισμό του ²⁰⁸Tl θεωρήθηκε μη κανονικοποιημένη, στην ραδιενεργό σειρά του, τιμή του I_{γ} καθώς στην περίπτωση του ορίου ανίχνευσής μας αφορά η ανίχνευση του ραδιονουκλιδίου καθεαυτή.

Ανιχνευτική		MDA (Ba/kg)*									
Διάταξη							18/				
Ραδιονουκλίδιο:	²¹⁰ Pb	²³⁵ U	²²⁶ Ra	²¹² Pb	²¹⁴ Pb	²⁰⁸ TI	²¹⁴ Bi	¹³⁷ Cs	²¹² Bi	²²⁸ Ac	⁴⁰ K
Ενέργεια (keV):	46.5	185.7	186.2	238.6	351.9	583.2	609.3	661.6	727.3	911.0	1460.8
Γεωμ. 65.4 cm³											
GEM-FX 8530P4 (ΕΛΚΕΘΕ)	4.88	0.21	4.26	0.95	1.40	0.67	1.79	0.42	6.21	2.77	16.80
GEM-FX 8530P4 (ЕМП)	3.14	0.13	2.53	0.45	0.58	0.29	0.62	0.25	3.16	1.21	9.86
GC5021 (ЕМП)	-	0.24	4.69	0.73	0.72	0.42	0.90	0.33	4.49	1.58	11.61
GC8023 (ЕКЕФЕ)	_	0.29	5.81	0.92	1.30	0.53	1.48	0.43	5.35	2.18	16.23
Γεωμ. 5.4 cm³											
GEM-FX 8530P4 (ΕΛΚΕΘΕ)	39.46	1.97	39.13	8.69	12.82	6.01	15.80	3.78	54.75	24.22	138.67
GEM-FX 8530P4 (ЕМП)	23.83	1.18	23.35	4.16	5.29	2.60	5.51	2.17	27.69	10.45	82.01
GC5021 (ЕМП)	-	1.36	26.96	4.29	4.32	2.62	5.61	2.09	28.45	10.15	76.94

Πίνακας 4.7. Μέσες τιμές της ελάχιστης ανιχνευόμενης ενεργότητας MDA για δείγματα ιζήματος αναφοράς με πυκνότητα ρ=1 gr/cm³, για την ανίχνευση των κυριότερων ραδιονουκλιδίων σε περιβαλλοντικά δείγματα ιζήματος μέσω των εντονότερων τους ακτίνων-γ.

^{*} για πυκνότητα δείγματος ρ=1 gr/cm³

Όπως ήταν αναμενόμενο οι χαμηλότερες τιμές ανίχνευσης παρουσιάζονται για την μεγάλη γεωμετρία ιζήματος (65.4 cm³) και τον ανιχνευτή με το υπέρλεπτο παράθυρο C (GEM-FX 8530P4) και την κλειστή θωράκιση (EMΠ). Η διαφορά στην ποσότητα δείγματος υπερκαλύπτει την καλύτερη απόδοση φωτοκορυφής της μικρής γεωμετρίας, με αποτέλεσμα σε όλες τις περιπτώσεις η MDA να είναι 9 φορές μεγαλύτερη περίπου για τις αντίστοιχες ανιχνευτικές διατάξεις για όλα τα ραδιονουκλίδια. Δεύτερος σημαντικότερος παράγοντας είναι η θωράκιση καθώς για τον ίδιο ανιχνευτή GEM-FX 8530P4 παρουσιάζεται μείωση κατά 50% του MDA στην περίπτωση της κλειστής θωράκισης του ΕΜΠ σε σχέση με την ανοιχτή του ΕΛΚΕΘΕ, ενώ ακόμα και ο χειρότερος από άποψη απόδοσης ανιχνευτής GC5021 έχει χαμηλότερο MDA κατά 20% περίπου σε σχέση με αυτόν. Πρέπει επίσης να σημειωθεί ότι η ανίχνευση ²¹⁰Pb σε δείγματα ιζήματος στους ανιχνευτές με παράθυρο Al (GC5021 και GC8023) είναι πρακτικά αδύνατη λόγω της πολύ μικρής απόδοσης και τις μεγάλης αβεβαιότητας της στα 46.5 keV.

Εναλλακτικά, ο ²¹⁰Pb μπορεί να μετρηθεί και με αναλυτικές ραδιοχημικές μεθόδους, που αν και είναι πιο περίπλοκες και χρονοβόρες, απαιτούν πολύ μικρότερη ποσότητα δείγματος και παρουσιάζουν γενικά ισάξιες ή και πολύ καλύτερες τιμές MDA σε σχέση με την φασματοσκοπία-γ. Ενδεικτικά αναφέρεται ότι η μέθοδος υπολογισμού του ²¹⁰Pb σε ίζημα με καταμετρητή υγρού σπινθηριστή (Liquid Scintillation Counting, LSC), $\alpha \pi \alpha \pi \epsilon i \mu \delta \lambda c 0.5$ gr $\delta \epsilon i \gamma \mu \alpha \tau o c \kappa \alpha i \mu \epsilon \gamma \rho \delta v o \mu \epsilon \tau \rho \eta \sigma \eta c$ 36,000 s επιτυγχάνεται MDA ίσο με 11.1 Bq/kg [Lozano et al., 2010]. Ακόμα πιο γρήγορη μέθοδος, με την απόπλυση 5 g δείγματος από διάλυμα 0.5 M HBr και προσδιορισμό του ²¹⁰Pb με καταμέτρηση β-σωματιδίων του θυγατρικού του ²¹⁰Bi, απαιτεί χρόνο καταμέτρησης 24,000 s για την επίτευξη ορίου ανίχνευσης 3 Bq/kg. [Godoy et al., 1998]. Με την ίδια μέθοδο καταμέτρησης, αλλά για πιο περίπλοκη διαδικασία δέσμευσης του ²¹⁰Pb και δείγμα 3 g το όριο ανίχνευσης είναι δυνατό να μειωθεί περαιτέρω στα 1.4 Bq/kg [Jia et al., 2000]. Από την άλλη, η φασματομετρίαα των θυγατρικών του ²¹⁰Po και ²⁰⁹Po με ανιχνευτές Si/Li για πολύ μικρή ποσότητα δείγματος (0.2 gr) και για αντίστοιχο χρόνο μέτρησης με την φασματοσκοπία-γ (24 h) μπορεί να δώσει για το ²¹⁰Pb τιμές MDA της τάξης του 1 Bq/kg και μικρότερες [Zaborska et al., 2007]. Τέλος, πρόσφατα αναπτύχθηκε μέθοδος προσδιορισμού του 210 Pb σε δείγματα νερού, που μπορεί να επεκταθεί και σε διαλύματα στερεών δειγμάτων, με την μέθοδο της φασματομετρίας μάζας ICP-MS με το όριο ανίχνευσης να φτάνει στα 0.09 Bq/L [Larivière et al., 2005].

Αντίστοιχα με τα δείγματα ιζήματος προσδιορίστηκαν και τα MDA των χαρακτηριστικών ραδιονουκλιδίων που βρίσκονται σε σημαντικές συγκεντρώσεις σε δείγματα νερού (²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi, ²⁰⁸Tl, ²²⁸Ac, ⁴⁰K και ¹³⁷Cs). Η συστηματική ανάλυση των φασμάτων υποβάθρου απιονισμένου νερού για τις δύο εκτεταμένες γεωμετρίες και στα δύο εργαστήρια (ΕΛΚΕΘΕ και ΕΜΠ) παρείγε το όριο ανίχνευσης των πιο έντονων φωτοκορυφών των ραδιονουκλιδίων αυτών, ενώ παράλληλα προσδιορίστηκαν και οι τιμές MDA του συστήματος επιτόπιας καταγραφής ραδιενέργειας (για χρόνους καταγραφής 24 h σε όλες τις περιπτώσεις). Στον Πίνακα 4.8 παρουσιάζονται όλα τα αποτελέσματα των MDA, μαζί με τα αντίστοιχα όρια ανίχνευσης προσυγκεντρωμένου 137 Cs από δείγμα νερού (20 L) με μέτρηση του ιζήματος AMP σε ανιχνευτές HPGe.

Πίνακας 4.8. Μέσες τιμές της ελάχιστης ανιχνευόμενης ενεργότητας MDA για δείγματα νερού (0.6 και 2.2 L) και επιτόπιας φασματοσκοπίας-γ (φασματόμετρο KATERINA) των κυριότερων ραδιονουκλιδίων μέσω ανίχνευσης των εντονότερων τους ακτίνων-γ. Συμπεριλαμβάνονται και τα MDA του¹³⁷Cs με την μέθοδο προσυγκέντρωσης με AMP και φασματοσκοπίας-γ με διάφορους ανιγνευτές.

Ανιχνευτική Διάταξη						
Ραδιονουκλίδιο:	²¹⁴ Pb	²⁰⁸ TI	²¹⁴ Bi	¹³⁷ Cs	²²⁸ Ac	⁴⁰ K
Ενέργεια (keV):	351.9	583.2	609.3	661.6	911.0	1460.8
Γεωμ. 0.6 L						
GEM-FX 8530P4 (EAKEØE)	1.42	0.62	1.59	0.31	2.16	10.40
GEM-FX 8530P4 (ЕМП)	0.63	0.30	0.68	0.19	1.11	6.61
Γεωμ. 2.2 L						
GEM-FX 8530P4 (ΕΛΚΕΘΕ)	1.33	0.54	1.41	0.27	1.90	4.64
Επιτόπια μέτρηση						
KATERINA	0.11	0.05^{*}	0.09	0.05	0.14	0.35
AMP						
GEM-FX 8530P4 (ΕΛΚΕΘΕ)				0.003		
GEM-FX 8530P4 (ЕМП)				0.002		
GC5021 (NTUA)				0.007		
GC8023 (NCRS)				0.005		

^{*} όπως υπολογίστηκε από την ακτίνα-γ στα 2614.5 keV

Όσον αφορά την εργαστηριακή μέθοδο απευθείας μέτρησης νερού, οι χαμηλότερες τιμές του MDA παρουσιάζονται για το ²⁰⁸Tl και ¹³⁷Cs, για αμφότερα τα συστήματα HPGe, λόγω αμελητέες συγκεντρώσεις τους στο περιβάλλοντα χώρο (ατμόσφαιρα, υλικά εργαστηρίου). Όπως και στην περίπτωση των δειγμάτων ιζήματος, οι τιμές MDA μεταξύ των δύο συστημάτων για το ίδιο δείγμα (0.6 L) διαφέρουν κατά ένα παράγοντα του 2 περίπου και μεταξύ των δύο γεωμετριών στο ίδιο εργαστήριο (ΕΛΚΕΘΕ), αποκλίνουν από 7 έως 130% καθώς αυξάνεται η ενέργεια. Αν και το όριο ανίχνευσης των χαμηλής ενέργειας ακτίνων-γ είναι σημαντικά υψηλότερο χρησιμοποιώντας τη μεγάλη γεωμετρία, η μέτρηση στα 1460.8 keV επιδεικνύει χαμηλότερη τιμή MDA, καθιστώντας αυτή τη γεωμετρία περισσότερο ευαίσθητη για την ανίχνευση του ⁴⁰K.

Σε σχέση με τις τιμές MDA της επιτόπιας μέτρησης, που ελήφθησαν σε περιβάλλον γλυκού νερού με παρουσία ελάχιστων ραδιονουκλίδιων), βρέθηκαν να είναι κατά μία τάξη μεγέθους χαμηλότερες από τις αντίστοιχες των εργαστηριακών μετρήσεων. Οι εργαστηριακές μετρήσεις επιδεικνύουν υψηλότερα MDA, λόγω του μικρότερου όγκου των δειγμάτων νερού, εφόσον δεν πραγματοποιείται κάποιου είδους προσυγκέντρωση ραδιονουκλιδίων ή χημική επεξεργασία. Ανάλογα με την ενέργεια ακτίνων-γ και την ανιχνευτική διάταξη, οι τιμές της MDA της εργαστηριακής μεθόδου ήταν από 4, για τα ¹³⁷Cs, έως 30, για το ⁴⁰K, φορές υψηλότερες από εκείνες των επιτόπιων μετρήσεων. Το MDA των θυγατρικών των αέριων ραδονίου (214 Pb, 214 Bi) και θορόνιου (208 Tl, 228 Ac) κυμαινόταν 0.6 έως 2.6 Bq/L για τις τρεις εργαστηριακές διατάξεις, ενώ για την επιτόπια μέθοδο κυμαινόταν 0.05–0.14 Bq/L.

Αναφορικά με τις μετρήσεις ¹³⁷Cs με AMP, παρατηρείται μια βελτίωση του MDA κατά μία τάξη μεγέθους σε σχέση με το φαματόμετρο KATERINA και κατά 2 τάξης σε σχέση με την απευθείας μέτρηση νερού το εργαστήριο, χωρίς προσυγκέντρωση. Μεταξύ των ανιχνευτικών συστημάτων παρατηρείται απόκλιση τιμών μέχρι και 57%, που αντανακλά καθαρή την επίδραση της ποιότητας της θωράκισης στο MDA, καθώς στην συγκεκριμένη ενεργειακή περιοχή (661 keV) η αποκλίσεις στην απόδοση των ανιχνευτών είναι οι μικρότερες δυνατές. Η επίδραση αυτή γίνεται ακόμα ποιο ξεκάθαρη, λαμβάνοντας υπόψη πρόσφατες μετρήσεις δειγμάτων μικρής ποσότητας θαλάσσιου νερού (250 ml) που συνδυάζουν την τεχνική της προσυγέντρωσης με ΑΜΡ με υπόγειες εγκαταστάσεις φασματοσκοπίας-γ χαμηλού υποβάθρου (235 m κάτω από το επίπεδο της θάλασσας), επιτυγχάνοντας όριο ανίχνευσης ¹³⁷Cs ίσο με 0.00072 Bq/L, για χρόνο μέτρησης 7 d [Hirose et al., 2005]. Τέλος, αξίζει να σημειωθεί ότι η εναλλακτική μέθοδος του επιτόπιου φιλτραρίσματος μεγάλης ποσότητας νερού μπορεί να δώσει ακόμα χαμηλότερες τιμές MDA. Για παράδειγμα, φιλτράρισμα δειγμάτων νερού 500-1000 L (ταχύτητα ροής 300–1000 L/h) μέσω φίλτρων $K_4[Fe(CN)_6]$ με Cu(NO₃) (μορφής φυσιγγίου μήκους 25 cm και μεγέθους πόρου 1 mm), που κατόπιν ξηράνθηκαν, αποτεφρώθηκαν, τοποθετήθηκαν σε σφραγισμένα δοχεία (ακτίνας 3.4 cm και ύψους 2 cm) και μετρήθηκαν με φασματομετρία-γ σε καλά θωρακισμένο ομοαξονικό ανιχνευτή HPGe (σχετικής απόδοση 90%), παρουσίασαν συστηματικά τιμές MDA μικρότερες από 0.0001 Bq/L [Evangeliou and Florou, 2012].

Στα αποτελέσματα παραπάνω, σε όλες τις περιπτώσεις, παρουσιάστηκαν οι μέσες τιμές του MDA από σειρά μετρήσεων υποβάθρου, που καταγράφονταν κατά τακτά χρονικά διαστήματα σε κάθε σειρά μετρήσεων δειγμάτων. Η διακυμάνσεις του MDA για όλα τα ραδιονουκλίδια δεν ξεπέρασε το 8% για όλα τα είδη δειγμάτων και ανιχνευτών, ενώ ιδικά για την περίπτωση του AMP η διακύμανση έφτανε μέχρι και το 15% λόγω της επιπλέον αβεβαιότητας της χημικής απόδοσης. Επιπλέον, εξετάστηκε και η εξάρτηση του MDA από το χρόνο καταμέτρησης του φάσματος και δεδομένου ότι η αύξηση των γεγονότων υποβάθρου με το χρόνο είναι ανεξάρτητη με είδος του δείγματος που μετράται, αρκεί να εξεταστεί μία μόνο γεωμετρία ώστε να προκείψουν κοινά συμπεράσματα που διέπουν όλες τις μετρήσεις σε οποιοδήποτε ανιχνευτική διάταξη. Για το λόγο αυτό, Εν προκειμένω, μελετήθηκε η χρονική μεταβολή του MDA ραδιονουκλιδίων της μεγάλης γεωμετρίας νερού (2.2 L) μετρημένη στο ανιχνευτικό σύστημα του ΕΛΚΕΘΕ (GEM-FX 8530P4), για χρόνους καταγραφής φάσματος από μερικές ώρες μέχρι μερικές μέρες (Σχήμα 4.10).



Σχήμα 4.10. Ελάχιστες ανιχνεύσιμες ενεργότητες για συγκεκριμένα ραδιονουκλίδια (²⁰⁸Tl, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi, ²²⁸Ac και ⁴⁰K), ως συνάρτηση του χρόνου, χρησιμοποιώντας δείγματα νερού 2.2 L. Σε όλες τις σειρές δεδομένων έχει προσαρμοστεί θεωρητική καμπύλη της μορφής $y = ax^b$ (με δείκτη ποιότητας προσαρμογής $\overline{R}^2 > 0.99$ για όλες τις περιπτώσεις).

Όπως προκύπτει από τις προσαρμοσμένες καμπύλες τάσης του διαγράμματος η μείωση του MDA με το χρόνο ανίχνευσης είναι εκθετικής μορφής και ανεξάρτητη της ενέργειας της ανιχνευόμενης φωτοκορυφής. Η τάση αυτή μπορεί να αποδοθεί στην αναλογική σχέση του ορίου ανίχνευσης L_D με την τετραγωνική ρίζα του αριθμού των γεγονότων υποβάθρου B, όπως παρουσιάζεται στην σχέση (4.15). Εφόσον, ακολούθως τα γεγονότα υποβάθρου είναι ανάλογα προς το χρόνο καταγραφής T, είναι αναμενόμενο η σχέση του MDA ως προς το χρόνο T να υπολογίζεται με βάση εξίσωση της μορφής: MDA $(E,t) = A(E) \cdot t^{-0.5}$. Σύμφωνα με τη μελέτη αυτή, μια μέρα μέτρησης φαίνεται να είναι επαρκής περίοδος καταγραφής φάσματος, δεδομένου ότι οποιαδήποτε περαιτέρω αύξηση του χρόνου μέτρησης παρέχει αμελητέα μείωση στις τιμές της MDA.

Συμπερασματικά, μπορούμε να αναφέρουμε ότι ο συνδυασμός αποτελεσματικής θωράκισης και η αύξηση του όγκου του δείγματος, μπορεί να οδηγήσει σε ακόμη μεγαλύτερη μείωση των τιμών MDA. Εναλλακτικά, η εργαστηριακή μέθοδος μπορεί να βελτιωθεί περαιτέρω χρησιμοποιώντας διαφορετικής γεωμετρίας δοχεία δείγματος με τέτοιο τρόπο ώστε περισσότερος όγκος δείγματος να τοποθετείται πλησίον του κρυστάλλου και γύρω από αυτόν, όπως π.χ. τα δοχεία γεωμετρίας Marinelli.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 5

ΜΕΤΡΗΣΕΙΣ ΡΑΔΙΟΝΟΥΚΛΙΔΙΩΝ ΣΤΟ ΥΔΑΤΙΝΟ ΠΕΡΙΒΑΛΛΟΝ

5.1 Συγκεντρώσεις 137 Cs στην υδάτινη στήλη

Όπως αναφέρθηκε και στο εισαγωγικό κεφάλαιο, οι μετρήσεις του ¹³⁷Cs στην υδάτινη στήλη αποτελεί εργαλείο στην ωκεανογραφική έρευνα εδώ και πολλά χρόνια. Έχει χρησιμοποιηθεί ως περιβαλλοντικός ιχνηθέτης [Delfanti et al., 2003; Florou et al., 2003] πρωτίστως για τη μελέτη της κίνησης των υδάτων [Florou et al., 2006; Franic et al., 1999; Franic and Bauman, 1993; Papucci and Delfanti, 1999]. Η διαλυτή φύση του ¹³⁷Cs στην υδάτινη στήλη είναι υπεύθυνη για το γεγονός ότι η κατανομή του σχετίζεται με τις διαδικασίες ανάμειξης υδάτων στους ωκεανούς [Povinec et al., 2003b]. Από την άλλη, πολλές εργασίες έγουν προτείνει το 137 Cs ως ιγνηθέτη μελέτης θαλάσσιων διαδικασιών, όπως την επαναιώρηση των ιζημάτων του πυθμένα, την επανανοργανοποίηση και χρονολόγηση [Delfanti et al., 2003; Evangeliou et al., 2009]. Επιπλέον, είναι ένας ισχυρός ιχνηθέτης και της κατακόρυφης ανάμειξης στην υδάτινη στήλη, των διαδικασιών σχηματισμού βαθέων υδάτων (deep water formation), της ανταλλαγής νερού μεταξύ λεκανών και του προσδιορισμού του γρόνου παραμονής των υδάτων σε αυτές [Smith and Ellis, 1982; Calmet and Fernandez, 1990; Brydsten and Jansson, 1989; Papucci and Delfanti, 1999; Delfanti et al., 2003; Evangeliou et al., 2009; Evangeliou and Florou, 2012; Tsabaris et al., 2014; Delfanti et al., 2014].

Για όλους τους παραπάνω λόγους είναι ιδιαίτερα χρήσιμη η συστηματική καταγραφή του ¹³⁷Cs στο νερό. Ένας επιπλέον λόγος, που αποτέλεσε και βασικό κίνητρο των μετρήσεων στην παρούσα εργασία, είναι η παροχή πληροφοριών υποβάθρου για ένα τεχνητό ραδιονουκλίδιο γνωστής, εν πολλοίς, προέλευσης και ποσοτικής διασποράς, που λόγω ακριβώς αυτών των χαρακτηριστικών του το καθιστά ιδανικό δείκτη για την βαθμονόμηση και αξιολόγηση των θεωρητικών μοντέλων χωροχρονικής διασποράς ραδιονουκλιδίων στο περιβάλλον. Ιδιαίτερα στον Ελλαδικό χώρο μια τέτοια πληροφορία συγκεντρώσεων ¹³⁷Cs στο νερό είναι περιορισμένη χωρικά και αποσπασματική.

Στην παρούσα εργασία, πραγματοποιήθηκαν μετρήσεις ¹³⁷Cs της υδάτινης στήλης σε επιλεγμένα διαφορετικά θαλάσσια περιβάλλοντα με σκοπό την παροχή τέτοιων πληροφοριών υποβάθρου. Η επιλογή των σημείων δειγματοληψίας, δεδομένων των τεχνικών και οικονομικών περιορισμών, έγινε με κριτήριο την σύγκριση της μακροπρόθεσμης συμπεριφοράς του ¹³⁷Cs σε διαφορετικές περιβαλλοντικές συνθήκες, την οικολογική τους ιδιαιτερότητα και την κοινωνικοοικονομική τους αξία. Όλες οι μετρήσεις πραγματοποιήθηκαν κατά τον ερευνητικό περίπλου του ΕΛΚΕΘΕ μεταξύ 28/1–5/2 του 2003 με το ωκεανογραφικό

σκάφος ΑΙΓΑΙΟ (Κεφάλαιο 3.1), ενώ στην θαλάσσια περιοχή του Άθω πραγματοποιήθηκε και δοκιμαστική πόντιση του ανιχνευτικού συστήματος ΚΑΤΕRINA που αναπτύχθηκε από το Ινστιτούτο Ωκεανογραφίας του ΕΛΚΕΘΕ. Όλες οι εργαστηριακές μετρήσεις με την τεχνική της προσυγκέντρωσης ¹³⁷Cs με ΑΜΡ πραγματοποιήθηκαν στο Εργαστήριο Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος του ΕΛΚΕΘΕ. Στη συνέχεια παρατίθενται τα αποτελέσματα των μετρήσεων στην υδάτινη στήλη σε κάθε περιοχή και αξιολογούνται με βάση και άλλες παλαιότερες και νεότερες μετρήσεις.

5.1.1 Σαρωνικός Κόλπος

Η πρώτη, χρονολογικά, μέτρηση πραγματοποιήθηκε στις 28/1/2003 στην ακτή της Βάρης (γεωγραφικό μήκος 23°48.80'Ε και γεωγραφικό πλάτος 37°46.17'Ν) στα όρια του εσωτερικού και εξωτερικού Σαρωνικού Κόλπου. Πρόκειται για αστική παράκτια περιοχή με έντονη ανθρωπογενή επίδραση που περιλαμβάνει απορροές δικτύου ύδρευσης, κυκλοφορία αυτοκινήτων και παράκτιες τουριστικές δραστηριότητες. Το σημείο δειγματοληψίας ήταν ρηχό σε απόσταση μερικών km από την ακτή και συλλέχτηκαν δείγματα νερού 20 L από βάθη 5 και 50 m, ενώ παράλληλα πραγματοποιήθηκαν και μετρήσεις της αλατότητας και της θερμοκρασίας για κάθε σημείο.





Από τα αποτελέσματα των μετρήσεων (Σχήμα 5.2) είναι σαφές ότι τιμές της θερμοκρασίας, της αλατότητας αλλά και της ενεργότητας του ¹³⁷Cs είναι σταθερές σε όλο το κατακόρυφο προφίλ της υδάτινης στήλης. Παράλληλα, παρατηρείται η πλήρης απουσία θερμοκλινούς που οφείλεται στο γεγονός ότι οι μετρήσεις πραγματοποιήθηκαν τον Ιανουάριο. Κατά τη διάρκεια των χειμερινών μηνών έντονα ρεύματα αέρα επικρατούν στα επιφανειακά ύδατα των θαλασσών εύκρατων περιοχών, δημιουργώντας τυρβώδεις ροές και ανάμειξη. Λόγω της ισχυρής ανάμειξης και του σχετικά μικρού βάθους, η θερμοκρασία και συνεπώς και η αλατότητα, που σχετίζεται με την πυκνότητα του νερού, παραμένει σταθερή σε όλο το μήκος της υδάτινης στήλης.



Σχήμα 5.2. Αποτελέσματα μετρήσεων ¹³⁷Cs, αλατότητας και θερμοκρασίας ως προς το βάθος (σε m) από τον σταθμό μέτρησης SA-G στην ακτή Γλυφάδας.

Οι τιμές του ¹³⁷Cs ύδατα βρέθηκαν να είναι 3.5 ± 0.3 και 3.7 ± 0.3 Bq/m³ στα επιφανειακά και στα βαθύτερα ύδατα, αντίστοιχα. Αυτή η ομοιογένεια των τιμών με το βάθος φανερώνει ότι κατά τη διάρκεια της χειμερινής περιόδου η επίδραση του χερσαίου εδάφους στο θαλάσσιο περιβάλλον είναι μηδαμινή, αν και έχουν παρατηρηθεί αυξημένες συγκεντρώσεις ¹³⁷Cs στα επιφανειακά ύδατα λόγω διαδικασιών έκπλυσης και διάβρωσης του εδάφους ακόμα και κατά έναν παράγοντα του 1.5 [Φλώρου, 1992]. Ιδιαίτερα δε σε κλειστά θαλάσσια συστήματα, όπως ο Σαρωνικός Κόλπος, αναμένονται μέγιστες τιμές στην επιφάνεια κατά τη διάρκεια του χειμώνα [Evangeliou et al., 2009]. Αντίθετα, η ελαφρώς αυξημένη τιμή στο βάθος της υδάτινης στήλης μπορεί να αποδοθεί, στη συνεχή φυσική ανάμειξη με την πλήρη κατάρρευση του θερμοκλινούς, που αρχίζει συνήθως από τα τέλη του φθινοπώρου, και η αυξημένη επαναιώρηση των σωματιδίων του ιζήματος που έχει παρατηρηθεί στην περιοχή λόγω της ανθρωπογενούς δραστηριότητας (αλίευση και αγκυροβόληση πλοίων) που οδηγεί στην αποβολή και επαναδιαλυτοποίηση του ¹³⁷Cs [Evangeliou et al., 2011].

Η μέση τιμή των 3.6 Bq/m³ στην στήλη του ιζήματος είναι αναμενόμενη με βάση και άλλες μετρήσεις που έχουν πραγματοποιηθεί σε όλο τον Σαρωνικό Κόλπο. Συγκεκριμένα, οι τιμές του ¹³⁷Cs στην περιοχή αλλά και γενικότερα στα ύδατα του Αιγαίου την περίοδο 1984-1985, πριν το ατύχημα του Chernobyl, ήταν 2.6±0.3 Bq/m³ [Florou et al., 1996]. Το 1986 η εναπόθεση καισίου στον Κόλπο ήταν της τάξης των 4 kBq/m² (τα 2/3 εκ των οποίων αντιστοιχούσαν σε ¹³⁷Cs) [Kritidis and Florou, 2001] και στο έδαφος της λεκάνης απορροής του <5 kBq/m² ¹³⁷Cs [Petropoulos et al., 2001], με αποτέλεσμα οι τιμές στο νερό να 10πλασιαστούν μετά το ατύχημα (1986-1987) και για την περίοδο 1998-1995 να κυμαίνονται στα 20.7±14.7 Bq/kg (w/w) [Florou, 1996]. Την περίοδο 1999-2000 η μέση τιμή της συγκέντρωσης έπεσε στα 13 Bq/m³ [Φλώρου et al., 2002], ενώ οι πιο πρόσφατες μετρήσεις 2007-2009 έδωσαν συγκεντρώσεις ανάλογα με το βάθος και την περίοδο μέτρησης της τάξη του 2.7±1.6 Bq/m³, δηλαδή στα επίπεδα της προ Chernobyl εποχής [Evangeliou and Florou, 2012].



Σχήμα 5.3. Σύνολο μετρήσεων ¹³⁷Cs σε επιφανειακά ύδατα του Σαρωνικού Κόλπου μετά το ατύχημα του Chernobyl (με ανοιχτό κύκλο σημειώνεται η μέτρηση της παρούσας εργασίας).

Συνδυάζοντας όλες της μετρήσεις στα επιφανειακά νερά του Σαρωνικού (Σχήμα 5.3) μετά το 1986 [Florou, 2010], παρατηρείται εκθετική μείωση της ενεργότητας με μέσο χρόνο παραμονής ¹³⁷Cs στο νερό τα 15±4 y, μισή τιμή από τον ραδιενεργό χρόνο ημιζωής του (30.17 y), λόγω και των θαλάσσιων διαδικασιών απομάκρυνσης από την υδάτινη στήλη [Evangeliou and Florou, 2012]. Ένας από τους μηχανισμούς αυτούς εξάλλου, η καταβύθιση, είναι φανερή συγκρίνοντας και τα αποτελέσματα της παρούσας μελέτης με τις αντίστοιχες μετρήσεις την χειμερινή περίοδο του 2007 και 2009 στον εξωτερικό Σαρωνικό κόλπο σε επιφανειακά και βαθύτερα νερά (Σχήμα 5.4). Από την σύγκριση είναι σαφές ότι ο ρυθμός μείωσης της συγκέντρωσης είναι διπλάσια στα βαθύτερα νερά, που πραγματοποιείται καθίζηση στον πυθμένα, απ' ότι στα επιφανειακά, που επανατροφοδοτούνται από την ανάμειξη της υδάτινης στήλης και σε μικρότερο βαθμό από την εισροή υδάτων από τις παράκτιες περιοχές. Πρακτικά με μέσο χρόνο παραμονής 15 y, αναμένεται ότι μέχρι το 2030 η περιοχή θα έχει πλήρως αποκατασταθεί από την ραδιενεργό επίπτωση ¹³⁷Cs λόγω του Chernobyl.



Σχήμα 5.4. Χρονική εξέλιζη των συγκεντρώσεων ¹³⁷Cs σε επιφανειακά και βαθύτερα ύδατα του εζωτερικού Σαρωνικού Κόλπου με βάση πρόσφατες μετρήσεις (παρούσα εργασία και από Evangeliou and Florou, 2012).

5.1.2 Θερμαϊκός Κόλπος

Στον Θερμαϊκό Κόλπο πραγματοποιήθηκαν δειγματοληψίες σε δύο σημεία:



Σχήμα 5.5. Σταθμοί δειγματοληψίας νερού TH-P στο λιμάνι Θεσσαλονίκης και ΚΑΤ στην θαλάσσια περιοχή της Κατερίνης, Θερμαϊκός Κόλπος.

στην θαλάσσια περιοχή της Κατερίνης (σταθμός ΚΑΤ) στον εσωτερικό Θερμαϊκό Κόλπο σε απόσταση 10 km περίπου από την ακτή (22°42.40'E, 40°14.65'N) στις 31/1/2003 και στον Κόλπο Θεσσαλονίκης (σταθμός TH-P) ακριβώς στην περιοχή του λιμανιού (22°54.05'E, 40°38.23'N) στις 2/2/2003. Και στις δύο περιπτώσεις πραγματοποιήθηκαν δειγματοληψίες νερού σε δύο βάθη (επιφανειακό και βαθύ στρώμα), ενώ μόνο στην περίπτωση της Κατερίνης έγινε καταγραφή του κατακόρυφου προφίλ της αλατότητας, του διαλυτού οξυγόνου και της θερμοκρασίας.

Στο λιμάνι Θεσσαλονίκης οι μετρήσεις παρουσίασαν ακριβώς την ίδια συμπεριφορά με αυτές του σταθμού SA-G στον Σαρωνικό Κόλπο. Τα κύρια χαρακτηριστικά είναι η πλήρης ομοιογένεια της υδάτινης στήλης ως προς την θερμοκρασία και την αλατότητα λόγω ανάμειξης του νερού, η ελαφρώς αυξημένες συγκεντρώσεις ¹³⁷Cs στα βαθύτερα νερά λόγο διαδικασιών επαναιώρησης του ιζήματος και έλλειψη εισροής υδάτων έκπλυσης του εδάφους και με τιμές 3.65±0.40 Bq/m³ σε όλη την υδάτινη στήλη, ίδιες με αυτές του Σαρωνικού. Μόνη διαφορά είναι η χαμηλότερες τιμές της θερμοκρασίας (16.2°C) λόγω του γεωγραφικού πλάτους και η συνεπακόλουθη αύξηση της αλατότητας κατά ένα βαθμό (38.7) λόγω της μεγαλύτερης πυκνότητας των υδάτων.



Σχήμα 5.6. Αποτελέσματα μετρήσεων ¹³⁷Cs, αλατότητας και θερμοκρασίας ως προς το βάθος (σε m) από τον σταθμό μέτρησης TH-P στο λιμάνι Θεσσαλονίκης.

'Οσον αφορά τις μετρήσεις στην παράκτια περιοχή της Κατερίνης η εικόνα ήταν αρκετά διαφοροποιημένη. Στη συγκεκριμένη περιοχή παρατηρείται μια σταθερή αύξηση στης θερμοκρασίας και της αλατότητας με το βάθος, ενώ παράλληλα πραγματοποιείται και σταθερή μείωση του διαλυτού οξυγόνου. Ο συνδυασμός αυτών τον παραμέτρων κάνει εμφανές ότι η κυρίαρχη διαδικασία σε αυτά τα ύδατα είναι η σταθερή και αυξημένη εισροή γλυκών επιφανειακών υδάτων χαμηλής αλατότητας και πλούσιων σε διαλυτό οξυγόνο λόγω της αλληλεπίδρασης με την ατμόσφαιρα. Παράλληλα η χαμηλή τους θερμοκρασία οφείλεται στο παγωμένο νερό της χειμερινής περιόδου από την λεκάνη απορροής του μεγάλου ποταμού Αλιάκμονα στα βόρεια και του τοπικού Μαυρόλακκο που επηρεάζουν κατά βάση την περιοχή.



Σχήμα 5.7. Αποτελέσματα μετρήσεων ¹³⁷Cs και καταγραφής προφίλ αλατότητας, θερμοκρασίας και διαλυτού οζυγόνου ως προς το βάθος (σε m) από τον σταθμό μέτρησης ΚΑΤ στην θαλάσσια περιοχή της Κατερίνης.

Στο γεγονός αυτό εξάλλου οφείλονται και οι σαφώς αυξημένες τιμές του ¹³⁷Cs σε σχέση με τις άλλες περιοχές με μεγαλύτερες συγκεντρώσεις στα επιφανειακά ύδατα (4.6±0.4 Bq/m³) απ' ότι στα βαθύτερα (4.2±0.6 Bq/m³). Πρόκειται σαφώς για ¹³⁷Cs που προέρχεται από την έκπλυση των εδαφών της λεκάνης απορροής, ενώ οι μεγάλες τιμές είναι αναμενόμενες καθώς η συγκεκριμένη περιοχή παρουσίασε τις

μεγαλύτερες τιμές ραδιενεργού επιφανειακής εναπόθεσης στο έδαφος, από 15 έως και 150 kBq/m², μετά το ατύχημα του Chernobyl [Petropoulos et al., 2001]. Παράλληλα, η περιοχή του Θερμαϊκού Κόλπου δέχεται ένα σημαντικό ποσοστό από το ραδιοκαίσιο της Μαύρης Θάλασσας που εισέρχεται στο Αιγαίο από τα στενά των Δαρδανελλίων, λόγω των μόνιμων βορειοδυτικών ρευμάτων στην είσοδο του κόλπου (Σχήμα 1.13).

Οι συγκεντρώσεις ¹³⁷Cs που μετρήθηκαν για το 2003 και στις δύο περιοχές με μέση τιμή της συγκέντρωσης στην υδάτινη στήλη στο 4 Bq/m³ (εύρος τιμών 3.5-4.6 Bq/m³), είναι σε συμφωνία και με παλιότερες και πιο πρόσφατες μετρήσεις στην ευρύτερη περιοχή. Συγκεκριμένα, ο εσωτερικός Θερμαϊκός Κόλπος ήταν η πιο επιβαρυμένη θαλάσσια περιοχή της Ελλάδας από το ατύχημα του Chernobyl με εναπόθεση 13-27 kBq/m² ¹³⁷Cs [Florou, 1996]. Τα επίπεδα συγκέντρωσης ενεργότητας στην υδάτινη στήλη το 1993 κυμαίνονταν στο επίπεδο των 20.7±0.3 Bq/m³ σε όλο το Βόρειο Αιγαίο, κατά μια τάξη μεγέθους αυξημένα σε σχέση με την πριν το 1986 κατάσταση [Kritidis and Florou, 1990]. Κατόπιν, το 1999 η τιμή της συγκέντρωσης σε περιοχές του Θερμαϊκού Κόλπου μειώθηκε στο επίπεδο των 8.0±1.2 Bq/m³[Kritidis and Florou, 2001], ενώ η μέση τιμή το 2009 βρέθηκε στα 5.7 Bq/m³με εύρος τιμών 2.7-14.7 Bq/m³[Florou, 2010].



Σχήμα 5.8. Σύνολο μετρήσεων ¹³⁷Cs στην υδάτινη στήλη του Θερμαϊκού Κόλπου μετά το ατύχημα του Chernobyl (με ανοιχτό κύκλο σημειώνεται η μέτρηση της παρούσας εργασίας).

Με βάση τα παραπάνω και δεδομένου ότι οι συγκεντρώσεις του ¹³⁷Cs φθίνουν εκθετικά με το χρόνο, μπορεί να προσδιοριστεί ο *οικολογικός χρόνος ημιζωής* (ecological half-life) του ¹³⁷Cs στον κόλπο [Yamada and Nagaya, 1998]. Συγκεκριμένα, με βάση την κλίση *a* της μείωσης της συγκέντρωσης ¹³⁷Cs με το χρόνο (Σχήμα 5.8) μπορεί να υπολογιστεί η *σταθερά αποτελεσματικής αποδιέγερσης* (effective decay constant) λ_{eff} , που αποτελεί το άθροισμα της οικολογικής και της φυσικής σταθεράς αποδιέγερσης και από αυτή αφαιρώντας την συνεισφορά της

τελευταίες (λ =0.023 y⁻¹ για το ¹³⁷Cs) μπορεί να υπολογιστεί ο οικολογικός χρόνος ημιζωής από τη σχέση:

$$t_{ecol} = \frac{\ln 2}{\lambda_{eff} - \lambda} = \frac{0.693}{\alpha - 0.023}$$
 (5.1)

Πρακτικά, ο οικολογικός χρόνος ημιζωής ενός ραδιονουκλιδίου εκφράζει τον χρόνο που χρειάζεται για να απομακρυνθεί η μισή ενεργότητά του από το περιβάλλον, λόγω μόνο θαλάσσιων διαδικασιών, χωρίς να λαμβάνεται υπόψη η ραδιενεργός αποδιέγερσή του. Τέτοιου είδους διαδικασίες απομάκρυνσης ραδιονουκλιδίων από τα θαλάσσια ύδατα, όπως π.χ. η σάρωσή του από τα θαλάσσια ρεύματα, εξαρτάται από την χημεία των ραδιοστοιχείων και τη συμμετοχή τους στις βιοχημικές διεργασίες (π.χ. προσρόφηση από τους θαλάσσιους οργανισμούς). Οι συγκεντρώσεις του ¹³⁷Cs σε μια δεδομένη θαλάσσια περιοχή καθορίζεται από τις οριζόντιες και κατακόρυφες κινήσεις των θαλάσσιων μαζών, τις διεργασίες σχηματισμού σωματιδίων και τη ραδιενεργό διάσπαση. Στην περιοχή του Θερμαϊκού Κόλπου ο οικολογικός χρόνος ημιζωής υπολογίστηκε στα 6.5±1.7 y, Αυτή η τιμή είναι ελαφρώς μικρότερη από αυτή του Σαρωνικού Κόλπου με 7.8±1.9 y [Evangeliou and Florou, 2012] και του Βορειοανατολικού Αιγαίου με 8.2 y [Florou et al., 2001], ενώ βρίσκεται στα ίδια επίπεδα με αυτή της Μαύρης Θάλασσας με 6 y [Egorov et al., 1999]. Τέλος, συνυπολογίζοντας και την επίδραση της ραδιενεργού αποδιέγερσης και θεωρώντας μοντέλο σταθερής ροής [Evangeliou and Florou, 2012], υπολογίστηκε και ο χρόνος παραμονής του 137 Cs στον κόλπο στα 10.3±5.8 y, κατά 1/3 μικρότερος από αυτόν του Σαρωνικού (15±4 y). Το γεγονός αυτό μπορεί να αποδοθεί στην εντονότερη επίδραση των ρευμάτων του Βορειοανατολικού Αιγαίου που προκαλούν γρηγορότερη ανανέωση των υδάτων στην περιοχή αυτή σε σχέση με τον Σαρωνικό Κόλπο στο κεντρικό Αιγαίο.

5.1.3 Βόρειο Αιγαίο

Η τελευταία περιοχή μετρήσεων της ερευνητικής αποστολής ήταν η θαλάσσια περιοχή Νοτιοανατολικά της χερσονήσου του Άθω στο Βόρειο Αιγαίο. Η συγκεκριμένη περιοχή παρουσιάζει ιδιαίτερο ενδιαφέρον καθώς αποτελεί το ένα από τα δύο περάσματα του νερού της Μαύρης Θάλασσας προς το Αιγαίο (το άλλο είναι Ανατολικά της Λήμνου) και ταυτόχρονα είναι και η βαθύτερη λεκάνη στο Βόρειο Αιγαίο. Αρχικά στις 2/2/2003 πραγματοποιήθηκαν επιτόπιες μετρήσεις με τους υποβρύχιους ανιχνευτές φασματοσκοπίας-γ RADAM III και ΚΑΤΕRINA (Κεφάλαιο 3.1.3) με παράλληλη δειγματοληψία νερού και καταγραφή της θερμοκρασίας και της αλατότητας Δυτικά της Λήμνου (24° 42.86'E, 39° 57.92'N) στις παρυφές της βαθειάς λεκάνης του Άθω (σταθμός ΑΤΗ), ενώ κατόπιν στις 3/2/2003 πραγματοποιήθηκαν δειγματοληψίες νερού για την εργαστηριακή μέτρηση του ¹³⁷Cs σε τέσσερα βάθη με παράλληλη καταγραφή του προφίλ της αλατότητας και της θερμοκρασίας στο βαθύτερο σημείο της θαλάσσιας λεκάνης του Άθω (24°31.47'E, 40°06.39'N) Νοτιοανατολικά του Άγιου Όρους (σταθμός DB2).



Σχήμα 5.9. Σταθμοί δειγματοληψίας νερού DB2 στη βαθειά λεκάνη και ΑΤΗ στην ευρύτερη θαλάσσια περιοχή του Άθω, Βόρειο Αιγαίο.

Στον πρώτο σταθμό ΑΤΗ, που αποτελεί και το Ανατολικό σύνορα της βαθειάς λεκάνης του Άθω (Σγήμα 1.12) πραγματοποιήθηκαν μετρήσεις ¹³⁷Cs σε δύο βάθη, στα 3 και στα 208 m, με in situ και εργαστηριακή μέτρηση δειγμάτων νερού. Οι τιμές της αλατότητας και θερμοκρασίας ήταν σταθερές στην υδάτινη στήλη λόγω ανάμειξης, όπως και στην περίπτωση του λιμανιού της Θεσσαλονίκης και της ακτής της Βούλας, με ελαφρά μικρότερη θερμοκρασία (15.7°C) και αναμενόμενα υψηλότερη αλατότητα (39.0) καθώς πρόκειται για ανοικτή θάλασσα χωρίς επιρροές γλυκού νερού από το έδαφος. Οι συγκεντρώσεις ¹³⁷Cs ήταν και εδώ σταθερές στην υδάτινη στήλη με μέση τιμή 3.75 ± 0.35 Bq/m³. Στην περίπτωση αυτή εκτός από την ανάμειξη, που λόγω του μεγάλου βάθους έχει περιορισμένη επίδραση, η ομοιογένεια των τιμών οφείλεται και στα πλούσια σε ¹³⁷Cs επιφανειακά νερά της Μαύρης Θάλασσας που αυξάνουν της συγκεντρώσεις στα ανώτερα στρώματα.. Η τιμή αυτή είναι ελαφρώς μεγαλύτερη από αυτή του Κόλπου της Θεσσαλονίκης και του Σαρωνικού και ελαφρά μικρότερη από αυτή της Κατερίνης, δείγνοντας μια τάση ομοιογενοποίησης των συγκεντρώσεων στα επιφανειακά ύδατα του Αιγαίου, 2 με 3 φόρες πάνω από το υπόβαθρο των 1.5 Bq/m³, που θα ήταν η συγκέντρωση αν δεν είχε πραγματοποιηθεί το ατύχημα του Chernobyl [Florou et al., 2010].

Δεδομένου ότι στη συγκεκριμένη περιοχή δεν έχουν πραγματοποιηθεί προηγούμενες μετρήσεις, τα αποτελέσματα μπορούν να συγκριθούν με αυτά από γειτονικές θαλάσσιες περιοχές στο Βόρειο Αιγαίο. Πιο συστηματικές μετρήσεις έχουν πραγματοποιηθεί ως επί το πλείστον από την Ανατολική Λήμνο, όπου είναι και η είσοδος των υδάτων της Μαύρης Θάλασσας από τα Δαρδανέλλια και για το λόγο αυτό αναμένεται να είναι υψηλότερες σε σχέση με την περιοχή μελέτης. Όπως και στο υπόλοιπο Αιγαίο οι τιμές του ¹³⁷Cs προ Chernobyl ήταν της τάξης του 2.6±0.3 Bq/m³ και ως το 1993 δεκαπλασιάστηκαν φτάνοντας ακόμα και κατά τόπους στα



Σχήμα 5.10. Αποτελέσματα μετρήσεων ¹³⁷Cs, αλατότητας και θερμοκρασίας ως προς το βάθος (σε m) από τον σταθμό μέτρησης ΑΤΗ στην θαλάσσια περιοχή του Άθω.

35 Bq/m³, με μέση τιμή 20.7±14.7 Bq/m³ [Florou et al., 2003]. Οι συγκεντρώσεις αυτές το 1999 μειώθηκαν στο 13.3±1.3 Bq/m³ για το Βόρειο Αιγαίο [Φλώρου et al., 2002], ενώ στην Ανατολική Λήμνο το 2001 μετρήθηκαν συγκεντρώσεις 5.0±1.7 Bq/m³ [Delfanti et al., 2014]. Η μέση τιμή των 3.75 ± 0.35 Bq/m³ για το 2003 που προσδιορίστηκε στην παρούσα εργασία για την περιογή του Άθω, είναι σε συμφωνία με τις παραπάνω μετρήσεις καθώς και με την μέτρηση 4.6 ± 0.9 Bg/m³ για την ίδια περίοδο στα ανώτερα στρώματα της υδάτινης στήλης σε βαθιές λεκάνες του Βορείου Αιγαίου [Delfanti et al., 2004]. Μέχρι το τέλος της δεκαετίας πραγματοποιήθηκαν σειρά μετρήσεων στην Ανατολική Λήμνο δίνοντας τιμές συγκεντρώσεων 4.4±2.4 Bq/m³ το 2005 [Evangeliou et al., 2009], 5.4±2.3 Bq/m³ το 2006 [Μποκώρος, 2006], 4.4±1.5 Bq/m³ το 2007 [Delfanti et al., 2014], 4.1±1.4 Bq/m³ το 2008 [Papa et al., 2011] και 9.6 Bq/m³ (με εύρος τιμών 4.8-14.6 Bq/m³) το 2009, με μέση τιμή 4.8 ± 0.1 Bq/m^3 για την περιοχή της Θάσου για την ίδια περίοδο [Florou et al., 2010]. Οι τιμές αυτές είναι οι μεγαλύτερες στις Ελληνικές Θάλασσες και η σταθερή τιμή των συγκεντρώσεων, ακόμα και με μεγάλες διακυμάνσεις προς τα πάνω, οφείλεται στην διαρκή επανατροφοδότηση με ¹³⁷Cs από την Μαύρη Θάλασσα. Αυτό εξάλλου αντανακλάται και από το υπολογιζόμενο οικολογικό γρόνο ημιζωής του ¹³⁷Cs στην ευρύτερη περιοχή που είναι της τάξης του 12.6±2.3 y, όπως προκύπτει από την εκθετική μείωση της συγκέντρωσης από το 1986 (Σχήμα 5.11), 30-40% παραπάνω από των Σαρωνικό και Θερμαϊκό Κόλπο.



Σχήμα 5.11. Σύνολο μετρήσεων ¹³⁷Cs στην υδάτινη στήλη από επιλεγμένες περιοχές του Βόρειου Αιγαίου μετά το ατύχημα του Chernobyl (με ανοιχτό κύκλο σημειώνεται η μέτρηση από τη θαλάσσια περιοχή του Άθω της παρούσας εργασίας).

Επιπλέον, αξίζει να σημειωθεί ότι στο σταθμό ΑΤΗ πραγματοποιήθηκαν επιφανειακές μετρήσεις ¹³⁷Cs και με τα δύο υποβρύχια συστήματα φασματοσκοπίαςγ, RADAM III και KATERINA, για λόγους αλληλοσυσχέτισης των αποτελεσμάτων και σύγκρισης των επιδόσεών τους. Η συμφωνία στον υπολογισμό της ενεργότητας του ¹³⁷Cs κρίνεται ικανοποιητική, καθώς ήταν κάτω από το σχετικό σφάλμα των επιμέρους μετρήσεων (περίπου 9.5%). Από την σύγκριση των συστημάτων προέκυψε ότι ο πρότυπος ανιχνευτής του ΕΛΚΕΘΕ, ΚΑΤΕRINA, υπερτερούσε έναντι του εμπορικού RADAM III καθώς [Tsabaris and Dakladas, 2004; Tsabaris and Thanos, 2004; Tsabaris et al., 2005b]:

α) παρουσίασε καλύτερη ενεργειακή διακριτική ικανότητα. Σε εργαστηριακές μετρήσεις για δέκα φωτοκορυφές από τα 50 έως τα 1500 keV το FWHM μειώθηκε κατά ένα παράγοντα του 1.5, ενώ στις μετρήσεις ¹³⁷Cs στο νερό το FWHM στα 662 keV από 60 keV (9%) μειώθηκε στα 35 keV (5%). Η βελτίωση αυτή οφείλεται στο κύκλωμα σταθεροποίησης της ενίσχυσης (voltage drift elimination) του συστήματος που βασίζεται στον αυτόματο εντοπισμό και φασματική σταθεροποίηση των φωτοκορυφών στα 1461 keV του ⁴⁰K, 2615 keV του ²⁰⁸Tl και 50 keV του ενεργειακού ορίου ανίχνευσης του συστήματος στο θαλάσσιο νερό. Παράλληλα, η γραμμικότητα των ηλεκτρονικών του συστήματος ήταν πολύ υψηλή, με συντελεστή μη-γραμμικής ενίσχυσης της τάξης του 10^{-9} .

β) η απόδοση του νέου συστήματος ήταν περίπου 30% υψηλότερη, μειώνοντας με αυτό τον τρόπο τον απαραίτητο χρόνο μέτρησης για την ανίχνευση του ¹³⁷Cs (εμφανείς κορυφές ακόμα και σε φάσματα 3 h). Η βελτίωση αυτή οφείλεται κατά κύριο λόγο στην κατάλληλη επιλογή υλικού στεγανοποίησης (PVO) μικρής ενδοαπορρόφησης και μεγάλης ανθεκτικότητας. γ) η χαμηλότερη κατανάλωση ισχύος κατά περίπου 30% (~0.4 W), ιδιαίτερα σε μετρήσεις μακράς διάρκειας, καθιστώντας τον ανιχνευτή KATERINA ιδανικό για περιπτώσεις συνεχών καταγραφών (monitoring) και

δ) το μεγαλύτερο λειτουργικό ενεργειακό εύρος (Σχήμα 5.12) μέχρι τα 3000 keV, δίνοντας την δυνατότητα άμεσου και εύκολου (λόγω της ανυπαρξίας Compton υποβάθρου) ποσοτικού προσδιορισμού του ²⁰⁸Tl από την φωτοκορυφή του στα 2615 keV.



Σχήμα 5.12. Ενεργειακά φάσματα ακτίνων-γ σε 4π γεωμετρία στο νερό κανονικοποιημένα στο χρόνο για τα δύο in situ φασματόμετρα NaI, KATERINA και RADAM III, στο σταθμό ATH.

Το δεύτερο σημείο δειγματοληψίας, σταθμός DB2, ήταν στο βαθύτερο σημείο της λεκάνης του Άθω. Αυτή η βαθειά λεκάνη αποτελεί την κεντρική της Τάφρου του Βορείου Αιγαίου μέγιστο βάθος τα 1149 m. Οı δειγματοληψίες με πραγματοποιήθηκαν σε επιφανειακά, ενδιάμεσα και μεγάλα βάθη ως τα 900 m. Σε αντίθεση με τις υπόλοιπες τοποθεσίες το κατακόρυφο προφίλ της θερμοκρασίας, της αλατότητας αλλά και της ενεργότητας του 137 Cs ήταν ανομοιογενές με εμφάνιση ακρότατων. Η μορφή των κατακόρυφων προφίλ και η συσχέτιση των συγκεντρώσεων του ¹³⁷Cs, της θερμοκρασίας και της αλατότητας είναι αποτέλεσμα δύο κύριων διαδικασιών: (α) της αλληλεπίδρασης υδάτων διαφορετικής προέλευσης (Αιγαίο, Μαύρη Θάλασσα και Θάλασσα της Λεβαντίνης) και (β) το φαινόμενο της δημιουργίας βαθέων υδάτων. Όσον αφορά τον πρώτο παράγοντα, τα επιφανειακά ύδατα χαμηλής αλατότητας και θερμοκρασίας που χαρακτηρίζουν τα Βόρειο Αιγαίο είναι αποτέλεσμα της ισχυρής επιρροής των υδάτων της Μαύρης Θάλασσας, BSW. Λόγω της γενικής κυκλωνικής κυκλοφορίας των ζεστών και αλμυρών νερών που εισέρχονται από τα Ανατολικά Κρητικά Στενά (κυρίως επιφανειακά Λεβαντινά ύδατα, LSW και ενδιάμεσα Λεβαντινά ύδατα, LIW) και ρέουν προς βορρά και συναντούν τα επιφανειακό στρώμα των BSW κοντά στα Δαρδανέλια, βαθμιαία αναμειγνύονται κατά μήκος της διαδρομής τους προς τα νότια κατά μήκος των ακτών της Ελληνικής χερσονήσου, δημιουργείται ένα ενδιάμεσο στρώμα υδάτων. Το

κατώτερο στρώμα υδάτων στις βαθιές λεκάνες του Βόρειου Αιγαίου καταλαμβάνονται από τοπικά σχηματιζόμενα πολύ πυκνά νερά. Οι εκδηλώσεις σχηματισμού τέτοιων βαθέων υδάτων, DW, πραγματοποιείται όταν τα υπερκείμενα στρώματα αποκτήσουν πολύ μεγαλύτερη πυκνότητα και καταβυθίζονται απότομα γεμίζοντας τις βαθιές λεκάνες και εκτοπίζοντας προς τα πάνω τα υποκείμενα στρώματα.



Σχήμα 5.13. Αποτελέσματα μετρήσεων ¹³⁷Cs και καταγραφής προφίλ αλατότητας και θερμοκρασίας ως προς το βάθος (σε m) από τον σταθμό μέτρησης DB2 στη βαθειά λεκάνη του Άθω.

Όπως είναι αναμενόμενο, καθένα από τα παραπάνω στρώματα παρουσιάζουν και διαφορετικές συγκεντρώσεις ¹³⁷Cs. Το υπερκείμενο στρώμα έχει αυξημένες τιμές λόγω της τροφοδοσίας των νερών της Μαύρης Θάλασσας με ¹³⁷Cs από τους ποταμούς της κεντρικής Ευρώπης σε σχέση με τις πολύ χαμηλότερες συγκεντρώσεις του υποκείμενου στρώματος των νερών της Λεβαντίνης. Τα βαθιά ύδατα παρουσιάζουν ακόμα μεγαλύτερες συγκεντρώσεις συμπαρασέρνοντας κατά την δημιουργία τους το διεσπαρμένο ¹³⁷Cs των επιφανειακών και ενδιάμεσων στρωμάτων, καθώς αρκετές μαζικές εκδηλώσεις σχηματισμού βαθέων υδάτων έλαβαν χώρα στο Αιγαίο μετά το ατύχημα του Chernobyl. Η πρώτη πραγματοποιήθηκε τον Απρίλιο του 1986, και λίγο αργότερα τον Μάρτιο του 1987, με αποτέλεσμα οι βαθιές λεκάνες του Βορείου Αιγαίου να γεμίσουν με επιφανειακά νερά πολύ υψηλής πυκνότητας και πλούσια σε ¹³⁷Cs, γεγονός που επαναλήφθηκε τον

χειμώνα του 1992 και του 1993 [Zervakis et al, 2000; Gertman et al, 2006]. Η αλληλουχία αυτών των γεγονότων μετέφερε μεγάλες ποσότητες ¹³⁷Cs στις βαθιές λεκάνες, ενώ από το 1993, καμία σημαντική εκδήλωση σχηματισμού βαθέων υδάτων δεν έχει πραγματοποιηθεί στο Αιγαίο [Velaoras and Lascaratos, 2005].

Τα παραπάνω φαινόμενα είναι ευδιάκριτα στο προφίλ του σταθμού DB2, με το ανώτερο στρώμα των BSW να εκτίνεται ως περίπου τα 100 m με χαμηλές τιμές θερμοκρασίας και αλατότητας και με συγκεντρώσεις ¹³⁷Cs στα 4.9±0.4 Bq/m³. Το ενδιάμεσο στρώμα των νερών της Λεβαντίνης μεταξύ 100 και 250 m, παρουσιάζει αυξημένες και σταθεροποιημένες τιμές αλατότητας-θερμοκρασίας, με την ελάχιστη τιμή του ¹³⁷Cs στα 2.8±0.4 Bq/m³. Κατόπιν, από αυτό το βάθος και μετά εμφανίζονται τα DW με χαμηλές και πάλι τιμές αλατότητας-θερμοκρασίας, αλλά και με διαρκώς αυξανόμενες τιμές ¹³⁷Cs ακόμα και από τα επιφανιακά ύδατα με 6.1±0.5 Bq/m³ στα 850 m βάθος. Τα αποτελέσματα αυτά, με μεγαλύτερη διακριτική ικανότητα επιβεβαιώθηκαν και από μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν το 2004 όπου και υπολογίστηκε ο ρυθμός καταβύθισης του ¹³⁷Cs, λόγω κυρίως του σχηματισμού των βαθέων υδάτων, στα 0.8±0.6 m/d και η μέγιστη σταθερά διάχυσης στα (2.4±0.1)×10⁻⁴ m²/s [Tsabaris et al., 2014].

Συνοψίζοντας όλες τις μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν (Πίνακας 5.1), παρατηρούμε ότι δεν εμφανίζεται συσχέτιση τιμών μεταξύ αλατότητας ή θερμοκρασίας με το 137 Cs λόγω της ανάμειξης των υδάτων και του μικρού βάθους σε όλες τις περιοχές μελέτης.

Σταθμός	Περιοχή/ Ημερομηνία	Συντεταγμένες (Lat/Lon)	Μέθοδος	Βάθος (m)	Θερμ. (°C)	Αλατ. (psu)	¹³⁷ Cs (Bq/m ³)
TH-P	Λιμάνι Θεσ/νίκη	40° 38.23'N	Lab	10	16.2	38.7	3.5 ± 0.3
	2/2/2003	22° 54.05'E		50	16.2	38.7	3.7 ± 0.3
SA-G	Ακτή Βάρης	37° 46.17'N	Lab	10	17.3	37.5	3.5 ± 0.3
	28/1/2003	23° 48.80'E		50	17.3	37.5	3.8 ± 0.3
KAT	Ακτή Κατερίνης	40° 14.65'N	Lab	20	13.5	37.3	4.6 ± 0.4
	31/1/2003	22° 42.40'E		55	16.4	38.9	4.2 ± 0.6
ATH	Άθως	39° 57.92'N	In situ/Lab	3	15.6	39.0	3.7 ± 0.3
	2/2/2003	24° 42.86'E		208	15.7	39.0	3.8 ± 0.3
DB2	Βαθειά λεκάνη	40° 06.39'N	Lab	5	13.8	37.7	4.9 ± 0.4
	Άθω	24° 31.47'E		230	15.7	39.0	2.8 ± 0.4
	3/2/2003			680	13.3	39.0	4.8 ± 0.4
				850	13.3	39.0	6.1 ± 0.5

Πίνακας 5.1. Συνολικά αποτελέσματα μετρήσεων ¹³⁷Cs, αλατότητα και θερμοκρασίας στο νερό

Εξαίρεση αποτελεί ο σταθμός DB2 που παρουσιάζει αρνητική συσχέτιση αλατότητας και ¹³⁷Cs, που είναι αναμενόμενη στις καλά στρωματοποιημένες βαθιές λεκάνες [Delfanti et al., 2004]. Τέλος, οι τιμές στα επιφανειακά ύδατα παρουσιάζονται σε μεγάλο βαθμό ομογενοποιημένες και κυμαίνονται από 3.2 έως 5.3 Bq/m³ με μέση τιμή τα 3.7 Bq/m³, μόλις μισή φορά πάνω από τα προ Chernobyl επίπεδα των 2.6±0.3 Bq/m³[Florou et al., 1996].



Σχήμα 5.14. Συσχέτιση των συγκεντρώσεων ¹³⁷Cs στην υδάτινη στήλη με την αλατότητα και τη θερμοκρασία για το σύνολο των μετρήσεων του ερευνητικού διάπλου το χειμώνα του 2003.

5.2 Κατακόρυφη διασπορά ραδιονουκλιδίων στο ίζημα

Στα πλαίσια της ολοκληρωμένης ραδιολογικής μελέτης του υδάτινου περιβάλλοντος και για την παροχή δεδομένων υποβάθρου, είναι σημαντικός ο ραδιολογικός χαρακτηρισμός των ιζημάτων του πυθμένα. Αυτό περιλαμβάνει τον προσδιορισμό της κατακόρυφης κατανομής των συγκεντρώσεων φυσικών και τεχνιτών ραδιονουκλιδίων στο ίζημα. Το μεγαλύτερο μέρος των ραδιοϊσοτόπων που εισέρχονται στο θαλάσσιο περιβάλλον συσσωρεύονται σε παράκτια ιζήματα και γι' αυτό έχει ενδιαφέρον η γνώση της κατανομής και συγκέντρωσής τους ώστε να είναι δυνατή η μελέτη των μεταβολών τους στο μέλλον. Μετρήσεις ραδιενέργειας στο υδάτινο ιζηματικό περιβάλλον έχουν μεγάλη σημασία καθώς σχετίζονται με τη θαλάσσια ρύπανση και τις διεργασίες ιζηματογένεσης, βοηθώντας στην καλύτερη διαχείριση και προστασία των θαλάσσιων πόρων [Matishov and Matishov, 2004]. Τα ημι-κλειστά και κλειστά υδάτινα οικοσυστήματα δρουν συνήθως ως χώροι εναπόθεσης υλικών έκπλυσης που οφείλονται σε ανθρώπινες δραστηριότητες γύρω από την περιοχή των λεκανών απορροής. Αυτά τα υλικά περιλαμβάνουν προσμείξεις ραδιονουκλιδίων λόγω φυσικά ραδιενεργών υλικών (NORM) ή/και τεχνολογικά ενισχυμένα NORM (TENORM) [IAEA, 2007c]. Πρόσφατες μελέτες έχουν χρησιμοποιήσει τις κατανομές των φυσικών ραδιονουκλιδίων στα ιζήματα του βυθού

ως ιχνηθέτες για τη διερεύνηση των οδών και των μηχανισμών της κινητικότητάς τους στο ίζημα, τον προσδιορισμό των ακτινολογικών επιπτώσεων της ραδιενεργού επιβάρυνσης, την ραδιοοικολογικές επιπτώσεις ανθρωπογενών δραστηριοτήτων (π.χ. μεταλλεία φωσφογύψου, ηλεκτροπαραγωγικοί σταθμοί λιγνίτη και εργοστάσια παραγωγής τσιμέντου ή κεραμικών), για εντοπισμό προγενέστερων ή ενεργών υποθαλάσσιων εκροών υπογείων υδάτων κ.ά. [Bolivar et al., 1995; El-Reefy et al., 2003; Casas-Ruiz et al., 2009; Ababneh et al., 2010].

Οι περισσότερες μελέτες επικεντρώνονται στις συγκεντρώσεις των σειρών των αρχέγονων ραδιονουκλιδίων 238 U, 235 U και 232 Th και του φυσικού 40 K. Συνήθως, τα θυγατρικά ισότοπα του ²³⁸U και του ²³²Th συνδέονται με ύπαρξη βαρέων μετάλλων, ενώ το 40 K με αργιλικά ορυκτά [Cho et al., 1996]. Η αναλογία των 235 U και 238 U επίσης, μπορεί να είναι ένδειξη ύπαρξης απεμπλουτισμένου ουρανίου [Karangelos et al., 2004]. Τα ραδιονουκλίδια του Ra, έντονα διαλυτά στο νερό και διατηρητικά, μεταφέρονται από το ίζημα στα υπόγεια ύδατα αποτελώντας ιχνηθέτη διάχυσης στις παράκτιες ζώνες, ανάμειξης και χρονολόγησης γλυκών και υφάλμυρων υδάτων [Bourdon et al., 2003]. Ιδιαίτερη έμφαση δίνεται στο ²¹⁰Pb καθώς είναι το πιο μακρόβιο θυγατρικό ραδιονουκλίδιο του αδρανούς ραδιενεργού αερίου ²²²Rn, είναι αδιάλυτο και παρασύρεται από τις απορροές των υδάτων σε σωματιδιακή μορφή [Cochran et al., 2006]. Αυξημένες συγκεντρώσεις ²¹⁰Pb παρατηρούνται σε λίμνες και κόλπους, ως αποτέλεσμα της φυσικής διαδικασίας συσσώρευσης που σχετίζεται με τον κύκλο του νερού, ενώ όπως και το ράδιο μπορεί να μεταφερθεί από τις βιομηγανικές περιοχές ή/και τις γεωργικές περιοχές από την απόρριψη TENORM υλικών σε ποτάμια που οι εκβολές τους καταλήγουν σε κλειστά συστήματα [Ligero et al., 2002]. Μεγάλο μέρος έρευνας των κατακόρυφων προφίλ συγκεντρώσεων ραδιονουκλιδίων αναφέρεται και στα ραδιονουκλίδια επιφανειακής εναπόθεσης FRN που είναι ο μόλυβδος 210 Pb_{ex} εκτός ισορροπίας με το μητρικό 226 Ra το ατμοσφαιρικής προέλευσης ⁷Be και το τεχνητό ¹³⁷Cs, που αν και μη διαλυτό υπό κατάλληλες αναγωγικές συνθήκες μπορεί να διαλυθεί στο νερό. Τα προφίλ των ραδιονουκλιδίων αυτών δίνουν πολύτιμες πληροφορίες για τις διαδικασίες διάβρωσης, ανάμειξης και ραδιοχρονολόγησης των ιζημάτων [Mabit et al., 2008]. Η ραδιοχρονολόγηση των ιζημάτων θαλάσσιων οικοσυστημάτων είναι ιδιαίτερα σημαντική καθώς παρέχει πληροφορίες για γεωλογικές διαδικασίες, για τη συσγέτιση των ραδιονουκλιδίων με άλλα φυσικοχημικά χαρακτηριστικά και για τον προσδιορισμό συγκεκριμένων χωρικά μακροσκοπικών χαρακτηριστικών (π.χ. συντελεστή διάχυσης στο ίζημα, ταχύτητα κατακόρυφης διασποράς κ.ά.), πολύτιμων για την εφαρμογή μοντέλων χωροχρονικής διασποράς. Από την άλλη, η μελέτη του ρυθμού ιζηματογένεσης καθεαυτή μπορεί να προσδιορίσει έμμεσες πληροφορίες για φυσικές διεργασίες, όπως η βιοανάδευση και διαγένεση ρηχών αποθέσεων και ο χρονολογικός προσδιορισμός βιομηγανικής μόλυνσης [Plater et al., 1998], ενώ είναι απαραίτητη πληροφορία για την δυνατότητα in situ προσδιορισμού των συγκεντρώσεων του ¹³⁷Cs και ²¹⁰Pb στο ίζημα [Androulakaki, 2014].

Στα πλαίσια της παρούσας εργασίας, πραγματοποιήθηκαν μετρήσεις ραδιονουκλιδίων των τριών ραδιενεργών σειρών, του $^{40}{\rm K}$ και του $^{137}{\rm Cs}$ σε

επιλεγμένες περιοχές με διαφορετικά οικολογικά χαρακτηριστικά. Προσδιορίστηκαν τα κατακόρυφα προφίλ των συγκεντρώσεων, παρέχοντας πληροφορίες σχετικά με τις τιμές υποβάθρου της κάθε περιοχής. Με βάση τις συγκεντρώσεις του ²¹⁰Pb_{ex} και του ¹³⁷Cs εφαρμόστηκαν θεωρητικά μοντέλα για τον προσδιορισμό του πρόσφατου ρυθμού ιζηματογένεσης, ενώ παράλληλα, προσδιορίστηκαν και οι *συνολικές* επιφανειακές εναποθέσεις (inventories) τους στο σύνολο του πυρήνα ιζήματος. Οι δειγματοληψίες πραγματοποιήθηκαν με την μέθοδο της φασματοσκοπίας-γ και σε ορισμένες περιπτώσεις με φασματοσκοπία-α για το ²¹⁰Pb, σε διαφορετικές χρονικές περιόδους και εργαστήρια κάθε φορά. Στη συνέχεια, παρατίθενται τα αποτελέσματα των μετρήσεων με τα ερευνητικά συμπεράσματα ανά περιοχή μελέτης.

5.2.1 Κόλπος Ελευσίνας

Ο Κόλπος της Ελευσίνας είναι ένας ημίκλειστος κόλπος που ενώνεται στα νοτιοανατολικά και στα νοτιοδυτικά, μέσω δύο στενών περασμάτων, με τον εσωτερικό Σαρωνικό Κόλπο και παρουσιάζει έντονη ανθρωπογενή δραστηριότητα (Κεφάλαιο 1.3.3). Στις 2/9/2012 στα πλαίσια του προγράμματος PERSEUS πραγματοποιήθηκε από το ΕΛΚΕΘΕ με το ωκεανογραφικό σκάφος AIΓΑΙΟ δειγματοληψία πυρήνα ιζήματος στον σταθμό S2 (Σχήμα 5.15). Ο σταθμός δειγματοληψίας S2 βρίσκεται στην ανατολική πλευρά του κόλπου (32°28.29'E, 38°00.58'N,) και πρόκειται για το βαθύτερο σημείο του, με βάθος 33 m. Συλλέχθηκε πυρήνας συνολικού μήκους 30 cm με το μισό πάνω μέρος του να παρουσιάζει έντονη επιρροή πεταλοειδών (μαύρο χρώμα) σε σχέση με το κατώτερο στρώμα (γκρι χρώματος). Ο πυρήνας δειγματοποιήθηκε ανά 2 cm ως τα πρώτα 15 cm και ανά 1 cm για τα υπόλοιπα 15 cm λόγω της διαθέσιμης ποσότητας ιζήματος, ενώ κατόπιν οι μετρήσεις ραδιενέργειας πραγματοποιήθηκαν στο ΕΛΚΕΘΕ με ανιχνευτή HPGe υπέρλεπτου παραθύρου, που έκανε δυνατό και τον άμεσο προσδιορισμό του ²¹⁰Pb.



Σχήμα 5.15. Σταθμός δειγματοληψίας πυρήνα ιζήματος S2 στον Κόλπο της Ελευσίνας.

Από τις μετρήσεις προσδιορίστηκαν οι συγκεντρώσεις ενεργότητας (σε Bq/kg ζηρού δείγματος) των φυσικών ραδιονουκλιδίων στη στήλης του ιζήματος. Συγκεκριμένα, τα ²²⁶Ra, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi και ²¹⁰Pb από την σειρά του ²³⁸U, τα ²²⁸Ac, ²¹²Pb και ²⁰⁸Tl από την σειρά ²¹²Th, το ²³⁵U και το ⁴⁰K (Σχήμα 5.16).



Σχήμα 5.16. Κατακόρυφη διασπορά φυσικών ραδιονουκλιδίων του πυρήνα ιζήματος S2 στον Κόλπο της Ελευσίνας.

Με εξαίρεση το ²¹⁰Pb, οι τιμές των ραδιονουκλιδίων της σειράς του ²³⁸U ήταν σε καλή ισορροπία μεταξύ τους με σχετικά σταθερές συγκεντρώσεις σε όλη την στήλη του ιζήματος. Οι τιμές του ²²⁶Ra κυμαίνονταν από 3.7 ± 0.1 έως 38.6 ± 14.2 Bq/kg, ενώ του ²¹⁰Pb από 31.1 ± 2.1 έως 417.4 ± 10.1 Bq/kg με διαρκώς μειούμενη με το βάθος ενεργότητα. Οι τιμές της σειράς του ²³²Th ήταν στα ίδια επίπεδα (μέρη τιμή 30.0 ± 9.1 Bq/kg με εύρος $15.4\pm8.0 - 47.1\pm8.2$ Bq/kg για το μητρικό ²²⁸Ac) με μεγαλύτερη διακύμανση μεταξύ των επιμέρους ραδιονουκλιδίων και χαμηλότερη στατιστική της τάξης 24%. Τέλος, η μέση τιμή του ²³⁵U βρέθηκε στα 2.2 ± 0.8 Bq/kg (εύρος τιμών $0.9\pm0.2 - 4.0\pm1.6$ Bq/kg) και του ⁴⁰K στα 646.2 ± 87.2 Bq/kg (εύρος τιμών $462.3\pm0.2 - 805.0\pm1.6$ Bq/kg).

Από την διαφορά της ενεργότητας του ²¹⁰Pb με το μητρικό του ²²⁶Ra, υπολογίστηκε το επιπλέον ²¹⁰Pb_{ex} λόγω κατακρήμνισης, με τιμές που κυμαίνονται από 412.6±10.1 Bq/kg στην επιφάνια έως τα 22.4±10.1 Bq/kg στα 30 cm βάθος παρουσιάζοντας εκθετική μείωση, ενώ υπολογίστηκαν και οι συγκεντρώσεις στο προφίλ του ιζήματος για το τεχνητό ¹³⁷Cs με εύρος τιμών από 0.8±0.1έως 8.3±0.3 Bq/kg. Οι τιμές για το ¹³⁷Cs παρουσίαζαν μέγιστα που αποδίδονται στο ατύχημα του Chernobyl το 1986 και τις πυρηνικές δοκιμές του 1963, στα 7 και 15.5 cm αντίστοιχα. Παράλληλα, υπολογίστηκε η συνολική ποσότητα που έχει εναποτεθεί ανά μονάδα επιφάνειας στην στήλη του ιζήματος για τα δύο αυτά ραδιονουκλίδια επιφανειακής επίπτωσης, με τιμές 8595±170 Bq/m^{2 210}Pb_{ex} και 236±4 Bq/m^{2 137}Cs.



Σχήμα 5.17. Κατακόρυφη διασπορά ²¹⁰Pb_{ex} και ¹³⁷Cs του πυρήνα ιζήματος S2 στον Κόλπο της Ελευσίνας.

Με βάση το κατακόρυφο προφίλ του ²¹⁰Pb_{ex} και ακλουθώντας τον φορμαλισμό των Sanchez-Cabeza and Ruiz-Fernandez, 2012, προσδιορίστηκε ο ρυθμός ιζηματογένεσης στο σημείο δειγματοληψίας για τα μοντέλα υπολογισμού σταθερής ροής-σταθερής ιζηματογένεσης CFCS, σταθερού ρυθμού παροχής CRS και της περιοδικής παραλλαγής του PF και σταθερής αρχικής συγκέντρωσης CIC (Κεφάλαιο 2.2.1). Στην συνέχεια, παρατίθενται τα αποτελέσματα των επιμέρους μοντέλων ως προς το βάθος, ενώ παράλληλα σημειώνονται και οι μέσες τιμές του ρυθμό συσσώρευσης ιζήματος SAR και ο ρυθμός συσσώρευσης μάζας MAR (Σχήμα 5.18).

Από τα αποτελέσματα προκύπτει ότι τα μοντέλα CFCS και CRS βρίσκουν ακριβώς τον ίδιο ρυθμό ιζηματογένεσης 0.24 ± 0.05 cm/y, με ρυθμό συσσώρευσης μάζας 0.09 ± 0.01 και 0.05 ± 0.02 g/cm²y αντίστοιχα. Σε συμφωνία είναι και ο ρυθμός ιζηματογένεσης 0.24 ± 0.08 cm/y του PF μοντέλου, ενώ το CIC μοντέλο αν και δίνει ανάλογες τιμές MAR με 0.04 ± 0.04 g/cm²y, υποεκτιμά σημαντικά το SAR εκτιμώντας το στα 0.17 ± 0.13 cm/y και λόγω των μεγάλων του αβεβαιοτήτων (της τάξης του 80%) δεν μπορεί να θεωρηθεί αξιόπιστο.

Τα παραπάνω αποτελέσματα είναι σε συμφωνία με παλαιότερες μετρήσεις στον ίδιο ακριβώς σταθμό, που εκτιμούσαν τον ρυθμό ιζηματογένεσης στα 0.25 και 0.26 cm/y με βάση τα CFCS και CRS μοντέλα αντίστοιχα [Ηλιάκης, 2011]. Αξίζει να σημειωθεί ότι στη συγκεκριμένη εργασία οι μετρήσεις του ²¹⁰Pb πραγματοποιήθηκαν με φασματομετρία-α μετά από προσυγκέντρωση στα δείγματα ιζήματος, ενώ η τιμή του ²²⁶Ra είχε θεωρηθεί σε όλο το βάθος του πυρήνα ίση με την σταθεροποιημένη τιμή του μολύβδου στα μεγαλύτερα βάθη. Η συνάφεια αυτή των αποτελεσμάτων αποτελεί μια επιπλέον επιβεβαίωση της αξιοπιστίας της απευθείας μέτρησης του ²¹⁰Pb με την ανίχνευση της χαμηλοενεργειακής του ακτίνας-γ στα 46.5 keV με φασματοσκοπία-γ.



Σχήμα 5.18. Προσδιορισμός του μέσου ρυθμού ιζηματογένεσης (SAR και MAR) με βάση τα πρότυπα CFCS, CR, PF και CIC για τον πυρήνα ιζήματος S2 στον Κόλπο της Ελευσίνας.

Κατόπιν με βάση και το κατακόρυφο προφίλ του ¹³⁷Cs προσδιορίστηκε για επιβεβαίωση και ο μέσος ρυθμός ιζηματογένεσης μετά το 1963 (Κεφάλαιο 2.2.2) και βρέθηκε να είναι 0.29±0.03 cm/y. Συνδυάζοντας όλες τις παραπάνω μετρήσεις προκύπτει ότι μέχρι τα 20 cm (100 y πριν) όλες οι μέθοδοι βρίσκονται σε καλή συμφωνία δίνοντας ένα εκτιμούμενο ρυθμό ιζηματογένεσης 0.24±0.04 cm/y.



Σχήμα 5.19. Χρονολόγηση του πυρήνα ιζήματος S2 στον Κόλπο της Ελευσίνας με βάση τις συγκεντρώσεις των $^{210}Pb_{ex}$ και ^{137}Cs .

Η τιμή αυτή δεδομένου ότι το σημείο δειγματοληψίας βρίσκεται σε κεντρικό σημείο του κόλπου και στο μεγαλύτερο βάθος του μπορεί να θεωρηθεί αυξημένη, γεγονός που επιβεβαιώνεται και με την σύγκριση με αντίστοιχες δειγματοληψίες σε ημίκλειστους κόλπους όπως και στον Κόλπο της Αταλάντης στην Εύβοια και το ρήγμα της Ελίκης στον Κυπαρισσιακό Κόλπο, με ρυθμό ιζηματογένεσης 0.02-2 cm/y [Cundy et al., 2000] και 0.09 cm/y [Cundy and Stewart, 2004], αντίστοιχα. Ο κύριος λόγος αυτού του σχετικά αυξημένου ρυθμού πρέπει να αποδοθεί στην επιβάρυνση της περιοχής με επιπλέον αποθέσεις λόγω της έντονης ανθρωπογενούς δραστηριότητας στην περιοχή, που συμπεραίνεται και από τις αυξημένες τιμές ²¹⁰Pb στο ίζημα, ένδειξη απόθεσης πετρελοειδών.

5.2.2 Θερμαϊκός Κόλπος

Ο Θερμαϊκός Κόλπος είναι ένας μεγάλος κόλπος με έντονη εισροή γλυκού νερού από ποτάμια και μεγάλο άνοιγμα στην ανοιχτή θάλασσα. Για να μελετηθεί η κατακόρυφη διασπορά ραδιονουκλιδίων στο ίζημα πραγματοποιήθηκαν δύο δειγματοληψίες πυρήνων ιζήματος σε διαφορετικές περιοχές του κόλπου. Η πρώτη πραγματοποιήθηκε το Δεκέμβριο του 2005 σε παράκτια περιογή (ακτή Αερολιμένα Θεσσαλονίκης) του ανοιγτού Κόλπου της Θεσσαλονίκης με την συλλογή ενός πυρήνα AM2 (22°56.91'E, 40°31.39'N) μήκους 40 cm, καθώς και ακόμα τεσσάρων συμπληρωματικών (AM4, AM5, AM7 και AM10) σε πολύ κοντινή περιογή και βάθος μεταξύ 5-12 m. Οι πυρήνες αφού δειγματοποιήθηκαν ανά 2 cm, μετρήθηκαν για ¹³⁷Cs και για τα φυσικά ραδιονουκλίδια (μόνο για το AM2) μέσω φασματοσκοπίας-γ στα εργαστήρια του LNGS-INFN στο Gran Sasso., ενώ για το ²¹⁰Pb μετρήθηκαν μέσω φασματομετρίας-α στο Εργαστήριο Ραδιενέργειας Περιβάλλοντας του ΕΛΚΕΘΕ. Η δεύτερη τοποθεσία συλλογής πυρήνα στο Θερμαϊκό ήταν πραγματοποιήθηκε στις 10/5/2009 στην παραλιακή ζώνη του Λιτόγωρου κοντά σε εκβολές του ποταμού Μαυρονέρι (22°36.98'E, 40°29.96'N) σε βάθος 40 m με μήκος πυρήνα 80 cm. Από τον πυρήνα του σταθμού LT-10 παρασκευάστηκαν συνολικά 38 δείγματα, ανά 0.5 cm για τα πρώτα 5 cm, ανά 1cm από βάθος 5-20 cm, ανά 2 cm από 20 έως40 cm και δειγματοληπτικά από ένα δείγμα στα 50-52 cm, στα 60-62 cm και στα 70-72 cm. Όλες οι μετρήσεις πραγματοποιήθηκαν με ανιχνευτή HPGe υπέρλεπτου παραθύρου στο ΕΛΚΕΘΕ.



Σχήμα 5.20. Σταθμοί δειγματοληψίας πυρήνων ιζήματος ΑΜ και LT-10 στον Θερμαϊκό Κόλπο.

Από τις μετρήσεις του πυρήνα AM2, αρχικά προσδιορίστηκαν οι συγκεντρώσεις των φυσικών ραδιονουκλιδίων στο ίζημα που κυμαίνονταν από 16.4-36.2 Bq/kg για τη σειρά του 238 U (εκτός από το μόλυβδο), 23.1-70.3 Bq/kg για τη σειρά του 232 Th, 3.7-7.9 Bq/kg για το 235 U, 434.5-561.9 Bq/kg για το 40 K. Αξίζει μόνο να σημειωθεί, ότι σε όλες τις κατανομές παρατηρείται μία αλλαγή τάσης ή περιοδική διακύμανση σε βάθος ακριβώς 20 cm, που ήταν και το σημείο αλλαγής της υφής του πυρήνα από το υπερκείμενο μαλακό λασπώδες και αμμώδες στρώμα στο αργιλώδες λεπτόκοκκο υπόστρωμα, με αποτέλεσμα να αλλάζει και ο βαθμός προσρόφυσης των ραδιονουκλιδίων από το ίζημα.



Σχήμα 5.21. Κατακόρυφη διασπορά φυσικών ραδιονουκλιδίων του πυρήνα ιζήματος ΑΜ2 στον Κόλπο Θεσσαλονίκης.

Με βάση την τιμή του ²²⁶Ra προσδιορίστηκε και το ²¹⁰Pb_{ex} με τιμές να μειώνονται εκθετικά με το βάθος από 101.2±5.0 έως 1.3±3.2 Bq/kg στα 32.5 cm που είναι και το βάθος που πλέον υπάρχει ²¹⁰Pb μόνο σε ισορροπία με το ²²⁶Ra. Αντίστοιχα, οι τιμές του ¹³⁷Cs κυμαίνονται από 87.8±6.7 Bq/kg έως 0.9±0.2 Bq/kg με μέγιστα στα 3.5 και 9.5 cm βάθος, ενώ οι συνολικές εναποθέσεις 602±39 και 612±25 Bq /m² ¹³⁷Cs και ²¹⁰Pb_{ex}, αντίστοιχα.



Σχήμα 5.22. Προφίλ²¹⁰Pb_{ex} και ¹³⁷Cs του πυρήνα ιζήματος AM2 στον Κόλπο Θεσσαλονίκης.

Όπως και στην περίπτωση του Κόλπου της Ελευσίνας με βάση το ²¹⁰Pb_{ex} εφαρμόστηκαν μοντέλα υπολογισμού των ρυθμών ιζηματογένεσης (Σχήμα 5.23).



Σχήμα 5.23. Προσδιορισμός του μέσου ρυθμού ιζηματογένεσης (SAR και MAR) με βάση τα πρότυπα CFCS, CR, PF και CIC για τον πυρήνα ιζήματος AM2 στον Κόλπο Θεσσαλονίκης.

Από την σύγκριση των αποτελεσμάτων προκύπτει ότι τα περισσότερα μοντέλα είναι σε καλή συμφωνία μεταξύ τους τόσο για τον MAR όσο και για το SAR. Συγκεκριμένα, οι εκτιμώμενες τιμές του MAR ήταν 0.016±0.001 g/cm²y για το CFCS, 0.017±0.003 g/cm²y για το CRS και 0.023±0.017 g/cm²y για το CIC, ενώ του SAR ήταν 0.25±0.02 cm/y για το CFCS, 0.19±0.05 cm/y για το CRS, 0.30±0.19 cm/y για το PF και 0.21±0.10 cm/y για το CIC. Με εξαίρεση το PF μοντέλο που παρουσίασε αρκετά υψηλότερη τιμή, που λόγω του μεγάλου σφάλματος (62%) δεν λήφθηκε υπόψη, τα υπόλοιπα μοντέλα ήταν σε καλή συμφωνία δίνοντας εκτιμώμενους ρυθμούς ιζηματογένεσης τα 0.21±0.4 cm/y και 0.017±0.002 g/cm²y. Με τον ίδιο τρόπο πραγματοποιήθηκαν και οι αντίστοιχοι υπολογισμοί στον πυρήνα AM10 δίνοντας εκτιμώμενους ρυθμούς ιζηματογένεσης ναι 0.15±0.05 cm/y για το CRS, 0.19±0.11 cm/y για το CFCS, 0.012±0.003 g/cm²y και 0.22±0.15 cm/y για το CRS, 0.19±0.03 cm/y και 0.013±0.002 g/cm²y.

Τα παραπάνω αποτελέσματα επιβεβαιώθηκαν και από την ραδιοχρονολόγηση με ¹³⁷Cs για το σύνολο και των 5 πυρήνων που εξετάστηκαν από την ίδια περιοχή μελέτης. Σε όλες τις περιπτώσεις ήταν εμφανείς και οι δύο κορυφές από το Chernobyl στα επιφανειακά στρώματα και από τις πυρηνικές δοκιμές σε μεγαλύτερα βάθη.



Σχήμα 5.24. Κατακόρυφη διασπορά ¹³⁷Cs στο σύνολο των πυρήνων ιζήματος ΑΜ στον Κόλπο Θεσσαλονίκης.

Συνοψίζοντας όλες τις εκτιμήσεις του ρυθμού ιζηματογένεσης στην περιοχή (Πίνακα 5.2), προκύπτει τελικά μια συνολική εκτίμηση των 0.18±0.03 cm/y για το SAR και 0.015±0.03 g/cm²y για το MAR.

Πίνακας 5.2. Συνολικά αποτελέσματα εκτιμώμενου ρυθμού ιζηματογένεσης στους πυρήνες ΑΜ.

Σταθμός	SAR (cm/y)						MAR (g/cm ² y)		
		137	Ċs			21	⁰ Pb _{ex}		
AM2	0.20	±	0.04	0.21	±	0.40	0.017 ± 0.002		
AM4	0.20	±	0.03						
AM5	0.12	±	0.07						
AM7	0.17	±	0.14						
AM10	0.15	±	0.03	0.19	±	0.03	0.013 ± 0.002		

Παρόλη την γειτνίαση της περιοχής μελέτης με την εκβολή του ποταμού Άνθεμου μόλις 3 km πιό βόρεια, ο ρυθμός ιζηματογένεσης δεν φαίνεται να επηρεάζεται έντονα από την φερτή ύλη του ποταμού, πιθανώς λόγω των παράκτιων θαλάσσιων ρευμάτων που αφήνουν σχετικά αδιατάρακτη την περιοχή. Οι τιμές αυτές αν και σημαντικά μικρότερες και σε σχέση με αυτές της Ελευσίνας είναι σε συμφωνία με παλιότερες μετρήσεις που εκτιμούσαν τον ρυθμό εναπόθεσης μάζας μεταξύ 0.07-0.8 g/cm²y σε όλο το εύρος του Θερμαϊκού Κόλπου, ενώ κοντά στις εκβολές των ποταμών Αξιού και Αλιάκμονα ο ρυθμός ιζηματογένεσης βρέθηκε από 0.18 έως 0.88 cm/y, αντίστοιχα [Karageorgis et al.,2005; 2005b].



Σχήμα 5.25. Χρονολόγηση του πυρήνα ιζήματος ΑΜ2 και ΑΜ10 στον Κόλπο Θεσσαλονίκης με βάση τα προφίλ συγκεντρώσεων των ²¹⁰Pb_{ex} και ¹³⁷Cs.

Όσον αφορά τον σταθμό LT-10 από την παραλία του Λιτόχωρου οι συγκεντρώσεις των ραδιονουκλιδίων στη στήλη του ιζήματος παρουσίασαν μεγάλη διακύμανση τιμών με 2.2-59.2 Bq/kg για τη σειρά του 238 U (εκτός από το 210 Pb), 6.9-55.1 Bq/kg για τη σειρά του ²³²Th, 0.2-2.7 Bq/kg για το ²³⁵U, 141.8-425.6 Bq/kg για το ⁴⁰K και 25.6-191.3 για το ²¹⁰Pb. Χαρακτηριστικό της μεγάλης διακύμανσης των τιμών είναι το γεγονός ότι ακόμα και στα μεγαλύτερα βάθη (έως 71 cm) οι τιμές του ²¹⁰Pb_{ex} δεν μηδενίζονταν αλλά παρέμεναν σταθερά αυξημένες, της τάξης των 30 Bq/kg. Αυτή η συμπεριφορά μπορεί να αποδοθεί στην έντονη βιοανάδευση του ιζήματος και στην δυναμικότητα του περιβάλλοντος λόγω των εισροών μεγάλων ποσοτήτων φερτής ύλης από γειτονικά ποτάμια, με επογιακό και παροδικό τρόπο. Από το προφίλ του ²¹⁰Pbex και του ¹³⁷Cs προέκυψε ότι η συνολική ποσότητα που εναποτέθηκε στην στήλη του ιζήματος ήταν 2074±56 και 169±5 $\mathrm{Bq/m^2}$ αντίστοιχα, με μέγιστα συγκεντρώσεων¹³⁷Cs να εμφανίζονται στα 12.5 και 25 cm, ενώ στα 61 cm ήταν εμφανής και η κορυφή από την πρώτη εμφάνιση του 137 Cs στην ατμόσφαιρα το 1954. Επίσης οι υψηλές τιμές στα πρώτα 6 cm μπορούν να αποδοθούν σε έντονη εισροή φερτής ύλης λόγω έκπλυσης των λεκανών απορροής των γειτονικών ποταμών με υψηλές συγκεντρώσεις 137 Cs και στην έντονη μηχανική ανάδευση του επιφανειακού στρώματος του πυθμένα.



Σχήμα 5.26. Κατακόρυφη διασπορά φυσικών ραδιονουκλιδίων του πυρήνα ιζήματος LT-10 στην παραλία Λιτόχωρου.

Δεδομένης της έντονης ανάδευσης στην στήλη του ιζήματος η εφαρμογή των μοντέλων προσδιορισμού ιζηματογένεσης μέσω της διασποράς του ²¹⁰Pb_{ex} παρουσίασε αρκετές δυσκολίες. Ιδιαίτερα για την περίπτωση των CRS (και PF) και CIC μοντέλων που βασίζονται σε μόνο μία υπόθεση διατηρητικού μεγέθους (ροής ή ενεργότητα επιφανειακής εναπόθεσης ²¹⁰Pb_{ex}) οι διακυμάνσεις ήταν ιδιαίτερα έντονες δίνοντας αναξιόπιστα και πολλές φορές μη ρεαλιστικά αποτελέσματα ρυθμού ιζηματογένεσης, με μεγάλο σφάλμα (Σχήμα 5.28). Για το λόγο αυτό λήφθηκε υπόψη μόνο η μέθοδος του CFCS και μάλιστα μόνο μέχρι τα 40 cm καθώς για μεγαλύτερα βάθη η γραμμική προσαρμογή παρουσίαζε πολύ χαμηλή στατιστική, ενώ τα αποτελέσματά της ελέχθησαν με βάση την χρονολόγηση με ¹³⁷Cs (Σχήμα 5.27).



Σχήμα 5.27. Προσδιορισμός του μέσου ρυθμού ιζηματογένεσης με βάση το πρότυπο CFCS και το κατακόρυφο προφίλ του ¹³⁷Cs για τον σταθμό LT-10 κοντά στην παραλία του Λιτόχωρου.



Σχήμα 5.28. Χρονολόγηση του πυρήνα ιζήματος LT-10 στην παραλία του Λιτόχωρου με βάση τα προφίλ συγκεντρώσεων των ²¹⁰Pb_{ex} και ¹³⁷Cs.

Από το CFCS μοντέλο προέκυψαν δύο περίοδοι ιζηματογένεσης με ρυθμούς 0.39±0.08 και 0.46±0.09 cm/y πριν και μετά το 1972, σύμφωνα με την χρονολόγηση του πυρήνα. Αυτό συνάδει με το γεγονός ότι την συγκεκριμένη χρονιά έγιναν μεγάλης έκτασης και διάρκειας πλημμύρες στην περιοχή της Θεσσαλίας, με αποτέλεσμα την αύξηση του ρυθμού εναπόθεσης φερτής ύλης από τους ποταμούς στην παράκτια περιοχή. Επιπλέον, με βάση την χρονολόγηση με το ¹³⁷Cs ο ρυθμός ιζηματογένεσης προσδιορίστηκε στα 0.54±0.04 cm/y για τις δύο πρώτες κορυφές (Chernobyl και πυρηνικές δοκιμές) και 0.60±0.08 cm/y με βάση την κορυφής του 1954, δίνοντας συνολικό μέσο ρυθμό ιζηματογένεσης τα 0.55±0.04 cm/y. Ο συνολικός εκτιμώμενος ρυθμός ιζηματογένεσης είναι 0.50±0.09 cm/y και 0.02±0.03 g/cm²y. Οι τιμές αυτές αν και αρκετά υψηλές είναι αναμενόμενες καθώς η δειγματοληψία πραγματοποιήθηκε κοντά σε εκβολές ποταμού, όπως για παράδειγμα στον ποταμό Έβρο που οι τιμές ιζηματογένεσης κυμαίνονται από 0.4-3 cm/y [Kanellopoulos et al., 2006].

5.2.3 Κορινθιακός Κόλπος

Η δειγματοληψία στην περιοχή του Κορινθιακού Κόλπου πραγματοποιήθηκε στις 26/2/2007 στο πρανές υποθαλάσσιου ρήγματος (22°21.81'E, 38°12.54'N) σε βάθος 780 m σε απόσταση περίπου 4.3 km από την ακτή. Ο πυρήνας, από το σταθμό με όνομα COR82b, είχε μήκος 48.5 cm και τεμαχίστηκε σε δείγματα ιζήματος ανά 1 cm, ενώ οι μετρήσεις ραδιενέργειας με ανιχνευτή HPGe πραγματοποιήθηκαν στο εργαστήριο φασματοσκοπίας-γ του ΕΛΚΕΘΕ και του ΕΜΠ.


Σχήμα 5.29. Σταθμός δειγματοληψίας πυρήνα ιζήματος COR82b στον Κορινθιακό Κόλπο.

Δεδομένου ότι η δειγματοληψία πραγματοποιήθηκε με πυρηνολήπτη μικρής διαμέτρου (8 cm), η συλλεγόμενη ποσότητα για κάθε δείγμα ήταν περιορισμένη και οι μετρήσεις φασματοσκοπίας-γ πραγματοποιήθηκαν με την μικρή γεωμετρία. Αυτό είχε ως αποτέλεσμα να είναι εφικτή η ανίχνευση μόνο του ²¹⁴Pb από τις σειρές των ουρανίων, η σειρά του ²³²Th και το ¹³⁷Cs. Η σχετική σταθερότητα στην κατακόρυφη κατανομή των φυσικών ραδιονουκλιδίων οδήγησε στο να αναλυθούν μόνο τα δείγματα των πρώτων 20 cm από την επιφάνεια, όπου και εξασθενεί πλήρως το ¹³⁷Cs. Η μέση τιμή της ενεργότητας ήταν 47.4±10.7 Bq/kg και από 4.8-57.0 Bq/kg με κεντρική τιμή τα 37.6±11.5 Bq/kg για την σειρά του ²³²Th. Οι τιμές του ¹³⁷Cs έφταναν έως τα 8.8±1.2 Bq/kg, με τοπικά μέγιστα στα 4.5 και 17.5 cm, ενώ η συνολική εναπόθεση στη στήλη του ιζήματος υπολογίστηκε μόλις στα 70±3 Bq/m².



Σχήμα 5.30. Κατακόρυφη διασπορά ραδιονουκλιδίων του πυρήνα ιζήματος COR82b στον Κορινθιακό Κόλπο.

Σχετικά με τον ρυθμό ιζηματογένεσης, υπολογίστηκε μόνο με βάση της δύο κορυφές του κατακόρυφου προφίλ του ¹³⁷Cs. Δεδομένου ότι παρουσιάζονταν μεγάλη απόκλιση μεταξύ των δύο ρυθμών ιζηματογένεσης όπως υπολογίζονται από την σχέση (2.10), κρίθηκε σκόπιμο να υπολογιστούν οι επιμέρους ρυθμοί για διαφορετικές χρονικές περιόδους. Έτσι, ο ρυθμός ιζηματογένεσης για την χρονική περίοδο 2007-1986 υπολογίστηκε στα 0.31±0.05 cm/y και για την χρονική περίοδο 1986- 1963 στα 0.44±0.02 cm/y. Ο ρυθμός ιζηματογένεσης για την περίοδο 2007-

1986 (0.31 cm/y), είναι σε συμφωνία με μετρήσεις σε διάφορα σημεία του κόλπου έχουν δώσει τιμές που κυμαίνονται από 0.1-0.3 cm/y [Lykousis et al., 2007], ενώ η αυξημένη τιμή για την περίοδο 1986-1963 (0.44 cm/y) μπορεί να αποδοθεί στην έντονη σεισμικότητα την συγκεκριμένη χρονική περίοδο που σε συνδυασμό με την απότομη μορφολογία της περιοχής οδήγησε σε μαζικές υποθαλάσσιες κατακρημνίσεις. Ο Κορινθιακός Κόλπος είναι μια βαθιά ασύμμετρη τεκτονική λεκάνη η οποία οριοθετείται προς το Νότο από ένα σύστημα πολλών διακριτών υποθαλάσσιων ρηγμάτων, τα οποία είναι περίπου παράλληλα προς τις ακτές του κόλπου και διατάσσονται κλιμακωτά κατά μήκος του (Σχήμα 1.17). Η αυξημένη σεισμικότητα της περιοχής προκαλεί συχνά υποθαλάσσιες κατολισθήσεις και τσουνάμι. Αυτό έχει μεγάλη επίδραση στην μεταφορά και στην απόθεση ιζημάτων, αλλά και στην κατανομή των ιζηματογενών φάσεων

5.2.4 Αμβρακικός Κόλπος

Ο Κόλπος του Αμβρακικού είναι ένας κλειστός κόλπος που συνδέεται μέσω ενός στενού και ρηχού πορθμού με το Ιόνιο Πέλαγος, με τα βαθύτερα τμήματά του να βρίσκονται πλησίον του κέντρου που βαθμιαία μειώνονται προς τις ακτές. Η δειγματοληψία στον Κόλπο του Αμβρακικού πραγματοποιήθηκε στα τέλη Νοεμβρίου 2007, όπου συλλέχθηκαν πυρήνες ιζήματος από δύο σταθμούς, τον 13Α (20°58'E, 38°58'N) και τον 13B (20°49'E, 38°56'N), στο εσωτερικό του κόλπου. Ο 13Α βρίσκεται στο δυτικό κομμάτι του κόλπου, κοντά στα στενά που συνδέει τον Αμβρακικό με το Ιόνιο και σε βάθος περίπου 15 m, ενώ ο 13B βρίσκεται στο κέντρο του σε βάθος 40 m. Οι πυρήνες ιζήματος που συλλέχθηκαν με multicorer, δειγματοποιήθηκαν ανά 1 cm μέχρι τα 25 cm βάθους και ανά 2 cm από τα 26 cm μέχρι και το τελευταίο δείγμα στα 40 cm. Ακολούθως οι μετρήσεις ραδιενέργειας πραγματοποιήθηκαν στο εργαστήριο φασματοσκοπίας-γ του ΕΛΚΕΘΕ.



Σχήμα 5.31. Σταθμοί δειγματοληψίας πυρήνων ιζήματος 13Α και 13Β στην είσοδο και στο κέντρο του Αμβρακικού Κόλπου, αντίστοιχα.



Σχήμα 5.32. Κατακόρυφη διασπορά φυσικών ραδιονουκλιδίων των πυρήνων ιζήματος 13Α και 13Β στον Αμβρακικό Κόλπο.

Από τις μετρήσεις των φυσικών ραδιονουκλιδίων προέκυψε ότι η κατακόρυφη κατανομή της συγκέντρωσης του ²²⁶Ra κυμαίνεται από 10-22 και 11-19 Bq/kg για τους σταθμούς 13A και 13B, αντίστοιχα. Όσον αφορά τα θυγατρικά του ²²²Rn (²¹⁴Pb και ²¹⁴Bi), το εύρος τιμών ήταν 6-22 και 9-21 Bq/kg για τους σταθμούς 13A και 13B, αντίστοιχα. Παρά το γεγονός ότι παρατηρήθηκαν διακυμάνσεις κατά μήκος του βάθους, οι μέσες τιμές των συγκεντρώσεών τους βρέθηκαν να είναι σχεδόν ίσες αναδεικνύοντας την αναμενόμενη μεταξύ τους ραδιενεργό ισορροπία. Η κατακόρυφη κατανομή των συγκεντρώσεων του ²²⁸Ac ήταν σχεδόν σταθερή με το βάθος, εντός των αβεβαιοτήτων, με μέση ενεργότητα τα 17 και 28 Bq/kg για τους σταθμούς 13A και 13B, και 13B, αντίστοιχα.

 220 Rn (212 Pb και 208 Tl) με τιμές να κυμαίνονται από 6-35 Bg/kg στο σταθμό 13A και από 12-36 Bg/kg στο σταθμό 13B. Όσον αφορά την κατακόρυφη κατανομή του 40 K ακολουθεί μια σχεδόν σταθερή τάση για το σταθμό 13A με μέσες τιμές 420±20 Bq/kg, ενώ στην περίπτωση του σταθμού 13B υπάρχει μια σημαντική αύξηση ξεκινώντας από τα 500 Bq/kg στην επιφάνεια του πυθμένα και φτάνοντας μια σταθερή τιμή 730 Bq/kg στα βαθύτερα τμήματα του πυρήνα μετά τα πρώτα 8 cm περίπου. Οι υψηλότερες τιμές σε αυτό τον σταθμό μπορούν να αποδοθούν στην διαφορετική υφή του (λασπώδης) και στα ορυκτά του ιζήματος σε αυτή τη θέση. Ειδικότερα, όπως έγει αναφερθεί [Poulos et al., 2008], το κλάσμα της άμμου στα ιζήματα της περιογής δίπλα στα Στενά της Πρέβεζας (σταθμός 13Α) είναι υψηλότερο από ότι στο κέντρο του κόλπου (σταθμός 13B), όπου κυριαρχεί η λασπώδης υφή. Αντίστοιγο φαινόμενο έγει παρατηρηθεί και στην λίμνη Butrint, όπου κοντά στο κανάλι Vivari, η συγκέντρωση της ενεργότητας του ⁴⁰K επίσης βρέθηκε αυξημένη σε σχέση με τα δείγματα ιζημάτων της λίμνης, όπου το κλάσμα της άμμου ήταν μικρότερο [Tsabaris et al., 2007]. Η κατακόρυφη κατανομή του 210 Pb από την άλλη, ακολουθεί σε γενικές γραμμές εκθετική μείωση με το βάθος για τον σταθμό 13B ξεκινώντας από τα 250±50 Bq/kg. Στο σταθμό 13Α η συμπεριφορά είναι παρόμοια συμπεριλαμβανομένων σημαντικών διακυμάνσεων γύρω στα 11 και 22 cm. Οι διακυμάνσεις αυτές μπορούν να αποδοθούν σε πιθανές αποθέσεις που έχουν λάβει χώρα τα τελευταία χρόνια μέσω της μεταφοράς αιωρούμενων υλικών στο υπό μελέτη σημείο. Τέλος οι συνολικές εναποθέσεις των ραδιονουκλιδίων επιφανειακής απόθεσης υπολογίστηκαν για τον σταθμό 13 Α στα 10996±306 Bq/m^{2 210}Pb_{ex} και 810 ± 6 Bq/m^{2 137}Cs, ενώ για τον σταθμό 13B στα 4971±175 Bq/m^{2 210}Pb_{ex} και 555±16 Bq/m^2 ¹³⁷Cs. Αυτή η μεγάλη διαφορά στην συνολική αποτιθέμενη ενεργότητα, ιδιαίτερα για το ²¹⁰Pbex, είναι μια ακόμα ένδειξη της υψηλής αποδοχής φερτής ύλης από την μετακίνηση των υδάτων στη είσοδο του κόλπου (σταθμός 13Α) σε σχέση με τις σχετικά αδιατάρακτες και βαθειές εσωτερικές περιοχές (σταθμός 13B).



Σχήμα 5.33. Προσδιορισμός του μέσου ρυθμού ιζηματογένεσης με βάση το πρότυπο CFCS και το κατακόρυφο προφίλ του ¹³⁷Cs για τον σταθμό 13Α στον πορθμό του Αμβρακικού Κόλπου.

Εφαρμόζοντας τα μοντέλα υπολογισμού με βάση το ²¹⁰Pb_{ex} του ρυθμού ιζηματογένεσης για τον σταθμό 13Α, διαπιστώθηκε όλα εκτός από CFCS παρουσίαζαν υψηλό βαθμό αβεβαιότητας (σχετικό σφάλμα >30%), ενώ και για το CFCS λήφθηκαν υπόψη μόνο δύο επιμέρους τιμές μεταξύ 10-20 cm και 20-35 cm λόγω αποδεκτής στατιστικής (Σχήμα 5.33). Αναλυτικά, εκτιμήθηκαν οι ρυθμοί ιζηματογένεσης σε 0.14±0.06 g/cm²y και 0.64±0.10 cm/y από το μοντέλο CFCS, 0.06±0.03 g/cm²y και 0.28±0.24 cm/y από το CIC, 0.08±0.02 g/cm²y και 0.29±0.11 cm/y από το CRS και 0.30±0.10 cm/y από το PF. Επιπλέον, με βάση το προφίλ του ¹³⁷Cs εντοπίστηκαν μέγιστα στα 15.5 και 30 cm, που αντιστοιχούν σε ρυθμό ιζηματογένεσης 0.69±0.03 cm/y. Συνυπολογίζοντας όλα τα αποτελέσματα (σταθμισμένος μέσος όρος) τελικά ο εκτιμούμενος ρυθμός ιζηματογένεσης για το σταθμό 13Α, βρέθηκε να είναι 0.08±0.04 g/cm²y και 0.55±0.20 cm/y.



Σχήμα 5.34. Προσδιορισμός του μέσου ρυθμού ιζηματογένεσης με βάση το πρότυπο CFCS και το κατακόρυφο προφίλ του ¹³⁷Cs για τον σταθμό 13B στον κέντρο του Αμβρακικού Κόλπου.

Αντίστοιχα με πριν, στον σταθμό 13Β λήφθηκαν υπόψη λόγω στατιστικής τα πρώτα 20 cm του πυρήνα για τους υπολογισμούς του μοντέλου CIC, ενώ συγκεκριμένα οι ρυθμοί ιζηματογένεσης υπολογίστηκαν σε 0.12 ± 0.02 g/cm²y και 0.36 ± 0.03 cm/y από το μοντέλο CFCS, 0.05 ± 0.01 g/cm²y και 0.19 ± 0.14 cm/y από το CIC, 0.03 ± 0.02 g/cm²y και 0.16 ± 0.14 cm/y για το CRS και 0.16 ± 0.14 cm/y από το μοντέλο PF. Συνολικά ο σταθμισμένος μέσος όρος έδωσε τιμή ιζηματογένεσης από το σύνολο των μοντέλων του ²¹⁰Pb_{ex} 0.06 ± 0.04 g/cm²y και 0.29 ± 0.11 cm/y. Λαμβάνοντας υπόψη και την χρονολόγηση του ¹³⁷Cs, που εμφάνισε μέγιστα στα 7.5 και 18.5 cm, με μέσο ρυθμό ιζηματογένεσης 0.38 ± 0.05 cm/y, ο τελικός εκτιμούμενος μέσος ρυθμός SAR είναι 0.31 ± 0.10 cm/y.

Οι τιμές του ρυθμού που υπολογίστηκαν είναι σε συμφωνία με ανεξάρτητες αναλύσεις των ίδιων πυρήνων (με εκτιμώμενους ρυθμούς 0.55±0.02 και 0.32±0.02 cm/y για τους σταθμούς 13A και 13B, αντίστοιχα) από τα εργαστήρια ραδιενέργειας περιβάλλοντος του ΕΛΚΕΘΕ και του ΕΚΕΦΕ "Δημόκριτος" [Tsabaris et al., 2011]. Η σημαντική διαφορά μεταξύ των δύο σταθμών οφείλεται στο γεγονός ότι ο σταθμός 13Α είναι πολύ κοντά στα στενά της Πρέβεζας, όπου έχει παρατηρηθεί η ανάπτυξη ενός ισχυρού υδάτινου μετώπου, λόγω της εκροής υφάλμυρων νερών του κόλπου και του εισερχόμενου αλμυρού νερού της ανοιχτής θάλασσας [Ferentinos et al., 2010]. Η εισροή νερού υψηλής αλατότητας μεταφέρει υλικό ιζημάτων από την ανοικτή θάλασσα με αποτέλεσμα τη μεταβολή της μορφολογίας πυθμένα κοντά στα στενά.

5.2.5 Λίμνη Ulubat

Η δειγματοληψία στη λίμνη Ulubat, νότια της Θάλασσας του Μαρμαρά, πραγματοποιήθηκε τον Ιούνιο του 2007. Ο σταθμός δειγματοληψίας ΠΝΤ-Κ12-07 εντοπίζεται στο δέλτα των εκβολών του ποταμού Mustafakemalpasa (28°33.28'E, 40°11.08'N) σε βάθος 3 m. Ο πυρήνας είχε μήκος 16 cm και στάλθηκε από την Τουρκία τεμαχισμένος με τοποθετημένα τα δείγματα ιζήματος σε σακουλάκια. Τα πρώτα 10 cm ήταν χωρισμένα σε δείγματα ανά 1 cm, ενώ υπήρχε ένα επιπλέον δείγμα μεταξύ 14-16 cm. Κατόπιν όλες οι μετρήσεις ραδιονουκλιδίων πραγματοποιήθηκαν με τον ανιχνευτή HPGe του ΕΛΚΕΘΕ.





Με βάση τις μετρήσεις φασματοσκοπίας-γ προσδιορίστηκαν οι συγκεντρώσεις στην στήλη του ιζήματος για τις φυσικές ραδιενεργές σειρές, το ⁴⁰K και το ¹³⁷Cs. Οι συγκεντρώσεις για την σειρά του ²³⁸U συνολικά κυμαίνονταν μεταξύ 26.3-79 Bq/kg για το ²²⁶Ra, 8.7-43.4 Bq/kg για το ²¹⁴Pb, 2.7-41.1 Bq/kg για το ²¹⁴Bi και 120.8-302.6 Bq/kg για το ²¹⁰Pb. Αντίστοιχα, για το ²³⁵U το εύρος τιμών ήταν 1.2-3.7 Bq/kg. Για τη σειρά του ²³²Th οι σχετικές διακυμάνσεις ήταν μικρότερες με τις τιμές να κυμαίνονται συνολικά από 29.3 έως 113.6 Bq/kg, με τις μεγαλύτερες τιμές να εμφανίζονται στα επιφανειακά ιζήματα και με κεντρικές τιμές 53.1±12.6 Bq/kg για το ²²⁸Ac, 67.1.1±19.7 Bq/kg για το ²¹²Pb και 40.4±17 Bq/kg για το ²⁰⁸Tl. Τέλος οι τιμές του ⁴⁰K ήταν σχετικά αυξημένες και κινούνταν από 361.9-702.1 Bq/kg με μέση τιμή τα 589.4±101.1 Bq/kg χωρίς κάποια σαφή διαφοροποίηση ως προς το βάθος. Εδώ πρέπει να επισημανθεί το γεγονός ότι το μήκος του πυρήνα ήταν περιορισμένο, με αποτέλεσμα να μην είναι δυνατή η εξαγωγή ασφαλών συμπερασμάτων σε σχέση με το αν υπάρχει επιφανειακή ανάδευση ιζημάτων ή αν υπάρχουν ενδείξεις ραδιολογικής επιβάρυνσης από ανθρωπογενείς δραστηριότητες σύμφωνα με την διαταραχή του



λόγω των ραδιονουκλιδίων στα επιφανειακά σε σχέση με τα βαθύτερα στρώματα [Adams, 1952].

Σχήμα 5.36. Κατακόρυφη διασπορά φυσικών ραδιονουκλιδίων του πυρήνων ιζήματος ΠΝΤ-K12-07 στη Λίμνη Ulubat.

Από τα κατακόρυφα προφίλ των συγκεντρώσεων του ²¹⁰Pb_{ex} και ¹³⁷Cs, προκύπτουν εναποθέσεις της τάξης του 4782±90 και 306±17 Bq/m², αντίστοιχα. Επιπλέον, οι τιμές του ²¹⁰Pb_{ex} ξεκινούν από τα 274.1 Bq/kg στην επιφάνεια και καταλήγουν στα 97.2 Bq/kg κάνοντας σαφές ότι το κατακόρυφο προφίλ του είναι ημιτελές. Αντίστοιχα στην περίπτωση του ¹³⁷Cs, με χαμηλές συγκεντρώσεις μεταξύ 16.6 και 6.5 Bq/kg, λόγω του περιορισμένου μήκους του πυρήνα ανιχνεύθηκε μόνο η πρώτη κορυφή του Chernobyl σε βάθος 9.5 cm.



Σχήμα 5.37. Προφί λ^{210} Pb_{ex} και ¹³⁷Cs του πυρήνα ιζήματος ΠΝΤ-K12-07 στη Λίμνη Ulubat.

Κατόπιν υπολογίστηκαν οι ρυθμοί ιζηματογένεσης SAR και MAR εφαρμόζοντας τα μοντέλα της κατακόρυφης διασποράς του 210 Pb_{ex}, ενώ τα αποτελέσματα συνδυάστηκαν με την χρονολόγηση με βάση τις κορυφές του 137 Cs.



Σχήμα 5.38. Προσδιορισμός του μέσου ρυθμού ιζηματογένεσης (SAR και MAR) με βάση τα πρότυπα CFCS, CR, PF και CIC για τον πυρήνα ιζήματος ΠΝΤ-Κ12-07 στη Λίμνη Ulubat.

Oi puθμοί ιζηματογένεσης όπως υπολογίστηκαν για κάθε μοντέλο είναι $0.07\pm0.02 \text{ g/cm}^2$ y και $0.46\pm0.07 \text{ cm/y}$ για το CFCS, $0.07\pm0.04 \text{ g/cm}^2$ y και $0.42\pm0.20 \text{ cm/y}$ για το CIC, $0.047\pm0.005 \text{ g/cm}^2$ y και $0.24\pm0.02 \text{ cm/y}$ για το CRS και $0.23\pm0.04 \text{ cm/y}$ από το μοντέλο PF, ενώ από το προφίλ του ¹³⁷Cs ο ρυθμός ιζηματογένεσης εκτιμήθηκε σε $0.45\pm0.01 \text{ cm/y}$. Από τα αποτελέσματα είναι σαφές ότι τα μοντέλα CRS και PF υποεκτιμούν σημαντικά τον ρυθμό ιζηματογένεσης και είναι σε διαφωνία με την χρονολόγηση του ¹³⁷Cs. Το γεγονός αυτό οφείλεται στο ημιτελές προφίλ του ²¹⁰Pb_{ex} που οδηγεί σε υποεκτιμημένο υπολογισμό της συνολικής επιφανειακής εναπόθεσης, ποσότητα στην οποία βασίζονται οι υπολογισμοί των μοντέλων αυτών. Ως εκ τούτου οι εκτιμήσεις τους θεωρήθηκαν λανθασμένες και δεν λήφθηκαν υπόψη. Από τις υπόλοιπες τιμές προέκυψαν οι εκτιμούμενοι ρυθμοί ιζηματογένεσης MAR και SAR να είναι ίσοι με $0.07\pm0.02 \text{ g/cm}^2$ και $0.45\pm0.02 \text{ cm/y}$, αντίστοιχα.

Σύμφωνα με προηγούμενες μελέτες, ο ρυθμός ιζηματογένεσης στη λίμνη Ulubat από το 4000 μέχρι το 2000 π.Χ. ήταν χαμηλός με 0.22 cm/y και αυξήθηκε στα 0.29 cm/y τα επόμενα χρόνια, ενώ τον τελευταίο αιώνα έχει φτάσει τα 0.44 cm/yr [Kazanci et al., 2004]. Τα αποτελέσματα αυτά είναι σε συμφωνία με τις παρούσες εκτιμήσεις που καταδεικνύουν μια περαιτέρω αύξηση του ρυθμού ιζηματογένεσης σε 0.45 cm/y. Ο υψηλός αυτός ρυθμός ιζηματογένεσης έχει δημιουργηθεί από μικρής διάρκειας αλλά έντονες επαναλαμβανόμενες αποθέσεις, με πιο πιθανή αιτία την αποψίλωση των δασών και την ισχυρή απογύμνωση της περιοχής. Το φαινόμενο της διάβρωσης των εδαφών είναι ευρύτατο στην ΒΔ Τουρκία κατά τη διάρκεια του τελευταίου αιώνα και πιο συγκεκριμένα τα τελευταία 45 χρόνια, γεγονός που οφείλεται κυρίως στους δύο παγκόσμιους πόλεμους και την κακοδιαχείριση της γης.

Συνοψίζοντας, όλα τα αποτελέσματα των μετρήσεων στους πυρήνες ιζήματος (Πίνακα 5.3) που μελετήθηκαν παρατηρούνται γενικά αυξημένοι ρυθμοί ιζηματογένεσης Το γεγονός αυτό συσχετίζεται με την επιλογή των σταθμών που, ο καθένας για διαφορετικό λόγο, αντιπροσωπεύουν ιδιαίτερα υδάτινα περιβάλλοντα. Τέλος, πρέπει να σημειωθεί ότι από την μέχρι τώρα ανάλυση είναι σαφές ότι η μελέτη τέτοιων συστημάτων δεν μπορεί να είναι μονοσήμαντη και ενδείκνυται η χρήση πολλαπλών ιχνηθετών και διαφορετικών μεθόδων προσέγγισης.

Σταθμάς	Περιγραφή	Βάθος	Pu	Ρυθμός Ιζηματογένεσης							Inventory (Bq/m ²)				
Ζιαθμος		(m)	SAR (cm/y)			MAR (g/cm²y)		¹³⁷ Cs			²¹⁰ Pb _{ex}				
S2	ημίκλειστός κόλπος	33	0.24	±	0.04	0.08	±	0.02	236	±	4	8595	±	170	
AM	ανοιχτός κόλπος	5-12	0.18	±	0.03	0.02	±	0.03	435	±	143^*	512	±	140^{*}	
LT-10	εκβολή ποταμού	45	0.50	±	0.09	0.02	±	0.03	169	±	5	2074	±	26	
COR2b	πρανές ρήγματος	780	0.31	±	0.05	(2007-	198	36)	70	±	3				
			0.44	±	0.02	(1986-	196	53)							
13A	πορθμός	15	0.55	±	0.20	0.08	±	0.04	810	±	6	10996	±	306	
13B	κλειστός κόλπος	40	0.31	±	0.10	0.06	±	0.04	555	±	16	4971	±	175	
ПNT-KI-07	λίμνη	3	0.45	±	0.02	0.07	±	0.02	306	±	17	4782	±	90	

Πίνακας 5.3. Συνολικά αποτελέσματα εκτιμώμενων ρυθμών ιζηματογένεσης και inventrories.

*η μέση τιμή των επιμέρους πυρήνων ιζήματος ΑΜ που αναλύθηκαν

5.3 Οριζόντια χαρτογράφηση διασποράς ραδιονουκλιδίων πυθμένα

Σημαντικό κομμάτι της έρευνας των ραδιονουκλιδίων στο υδάτινο περιβάλλον είναι ο χαρακτηρισμός ευρύτερων περιοχών με σκοπό την συνολική επισκόπηση και την ερμηνεία της διασποράς τους. Με αυτό τον τρόπο είναι δυνατή η κατανόηση των μηχανισμών διασποράς και διάδοσης των ραδιονουκλιδίων με τελικό στόχο ακόμα και την πρόβλεψη της συμπεριφοράς τους. Σε αυτό το πλαίσιο η ραδιολογική χαρτογράφηση του πυθμένα είναι ένα πολύτιμο εργαλείο για την ραδιοοικολογική μελέτη υδάτινων περιβαλλοντικών συστημάτων. Ιδιαίτερα στο παράκτιο θαλάσσιο περιβάλλον που οι αλληλεπιδράσεις ιζήματος-υδάτινης στήλης είναι δυναμικές, ο προσδιορισμός της οριζόντιας διασποράς των ραδιονουκλιδίων στον πυθμένα είναι ένα χρήσιμο εργαλείο για τον εντοπισμό και την αξιολόγηση των παραγόντων που επηρεάζουν σε βάθος χρόνου από ραδιολογική σκοπιά την εκάστοτε περιοχή μελέτης.

γνώση των συγκεντρώσεων και της κατανομής των φυσικών Η ραδιονουκλιδίων στο ίζημα είναι σημαντική, δεδομένου ότι παρέχει χρήσιμες πληροφορίες για την παρακολούθηση του εμπλουτισμού του υδάτινου περιβάλλοντος από φυσική ραδιενέργεια, που σε πολλές περιπτώσεις οδηγεί σε διαταραχή της ραδιενεργού ισορροπίας μεταξύ των ραδιονουκλιδίων της ίδιας σειράς. Δύο κύριες φυσικές πηγές θαλάσσιας ραδιενέργειας προκύπτουν από την αποσάθρωση και ανακύκλωση των ανόργανων χερσαίων πετρωμάτων [Yii et al., 2009]. Επιπλέον ραδιορύπανση του ιζήματος μπορεί να προκαλείται από παράκτια πυρηνικά εργοστάσια με εναπόθεση στο περιβάλλον τεχνητών ραδιονουκλιδίων ή και από τη μη πυρηνική βιομηχανία (π.χ., εξέδρες γεώτρησης πετρελαίου, μονάδες αφαλάτωσης, λιπάσματα) με την διασπορά NORM ή TENORM στο ίζημα. Η επέκταση των βιομηχανικών δραστηριοτήτων δε κοντά σε παράκτιες περιοχές έχει οδηγήσει σε αύξηση των ερευνών με στόχο την χαρτογράφηση της ραδιενέργειας στο υδάτινο περιβάλλον κοντά σε παράκτιες ζώνες και ειδικά στον πυθμένα της θάλασσας, δεδομένου ότι τα σωματίδια από τη στήλη του νερού κατακάθονται πολύ γρήγορα στο βυθό [Noakes et al., 1999]. Πρόσφατα, έχει αναφερθεί ότι αυξημένα επίπεδα ενεργότητας κοντά σε βιομηχανικές παράκτιες περιοχές συσχετίζονται με μόλυνση από γημικούς ρυπαντές [Bolivar et al., 2002; Van der Graaf et al., 2007], ενώ η συσχέτιση της συγκέντρωσης συγκεκριμένων ραδιονουκλιδίων με διάφορες γεωλογικές και ωκεανογραφικές παραμέτρους, παρέγει σημαντικές πληροφορίες σχετικά με φυσικές διεργασίες και φαινόμενα μεταφοράς από μικρές χρονικές περιόδους έως και δεκαετίες.

Παράδειγμα εφαρμογών αποτελεί ο ποσοτικός προσδιορισμός της καθαρής ροής μεταφοράς συστατικών από το ίζημα κατά την διαδικασία των θαλάσσιων γεωτρήσεων [Venema and de Meijer, 2001] ή ο χαρακτηρισμός της υφής του ιζήματος στον πυθμένα [Ligero et al., 2001] με καθαρά ραδιομετρικές τεχνικές. Επιπλέον, η χαρτογράφηση μεγάλων περιοχών θαλάσσιου βυθού για την εκτίμηση των επιπέδων και της κατανομής των φυσικών ή/και ανθρωπογενών ραδιονουκλιδίων, βρίσκει εφαρμογή στη γεωλογική χαρτογράφηση, σε μελέτες αξιολόγησης μεταλλευτικών ερευνών και τον εντοπισμό πηγών μόλυνσης [Miller et al., 1982; Noakes & Harding, 1982; Thomas et al., 1984; Jones et al., 1988; Povinec et al., 1996; Noakes et al., 1999]. Τα τελευταία χρόνια καταβάλλεται προσπάθεια για την χαρτογράφηση της φυσικής και τεχνητής ραδιενέργειας σε ιζήματα βυθού κλειστών θαλασσίων συστημάτων ή λίμνών [El-Reefy et al., 2010], καθώς και για την εκτίμηση του κινδύνου που οφείλεται σε αυξημένα επίπεδα ραδιενέργειας [Külashi and Sen, 2009] ενώ πλήθος μετρήσεων οριζόντιας διασποράς ραδιονουκλιδίων στο πυθμένα παράκτιων περιοχών πραγματοποιούνται σε πολλά μέρη του κόσμου [Radhakrishna et al., 1993; Alam et al., 1999; Saad and Al-Azmi, 2002; Arogunjo et al., 2004; El Mamoney and Khater, 2004; Orgun et al., 2007; Uosif et al., 2008; Ravisankar et al., 2014]. Χαρακτηριστικό δε είναι και το γεγονός ότι πλέον έχει εισαχθεί και η τεχνική της in-situ υποθαλάσσιας ανίχνευσης των ραδιονουκλιδίων του ιζήματος για την χαρτογράφηση του βυθού, ακόμα και με εξελιγμένα όργανα και τεχνικές φασματοσκοπίας-γ [Jones, 2001; Osvath and Povinec, 2001; Maucec et al., 2004; Van der Graaf et al., 2007; Androulakaki et al., 2014].

Με βάση τα παραπάνω θεωρήθηκε σκόπιμο στα πλαίσια της παρούσας εργασίας να εφαρμοστούν και να διερευνηθούν οι δυνατότητες της ραδιολογικής χαρτογράφησης του πυθμένα παράκτιων περιοχών ενδιαφέροντος με διαφορετικά χαρακτηριστικά. Εν προκειμένω, πραγματοποιήθηκαν μετρήσεις ιζήματος πυθμένα αρχικά στην Ακτή του Αερολιμένα Θεσσαλονίκης στο ΒΑ Θερμαϊκό Κόλπο, με πυκνό δίκτυο σημείων δειγματοληψίας, μια περιοχή σχετικά αδιατάρακτη με σκοπό την συσχέτιση των συγκεντρώσεων των ραδιονουκλιδίων με άλλα φυσικά χαρακτηριστικά του ιζήματος, και κατόπιν στην περιοχή του Πορθμού Σαλαμίνας-Πειραιά στο ΒΑ Σαρωνικό Κόλπο, μια επιβαρυμένη περιοχή με έντονη ανθρωπογενή δραστηριότητα, με σκοπό τον ευρύτερο προσδιορισμό της ποιότητας του ιζήματος.

5.3.1 Ακτή Αερολιμένα Θεσσαλονίκης

Κίνητρο για την μελέτη της συγκεκριμένης περιοχής ήταν ο προσδιορισμός της χωρικής κατανομής του 137 Cs στην επιφάνεια του ιζήματος του κόλπου της Θεσσαλονίκης. Καθώς η εμφάνιση ραδιονουκλιδίων στο βυθό εξαρτάται από τους μηγανισμούς καθίζησης στη στήλη του νερού (προσρόφηση σε αιωρούμενα σωματίδια, άμεση καθίζηση των κολλοειδών μορφών, άμεση απορρόφηση και εναπόθεση από οργανικά απόβλητα), η κοκκομετρία του ιζήματος σχετίζεται με τη συγκέντρωση των ραδιονουκλιδίων. Για το λόγο αυτό, πραγματοποιήθηκαν μετρήσεις ραδιενέργειας ¹³⁷Cs και των υπόλοιπων φυσικών ραδιονουκλιδίων σε συνδυασμό με κοκκομετρικές αναλύσεις, καθώς η ενεργός επιφάνεια των κόκκων (όπου λαμβάνει χώρα η κολλοειδής συνένωση), και κατά συνέπεια το μέγεθός των κόκκων του ιζήματος, καθορίζει την προσρόφηση των ραδιονουκλιδίων σε αυτά. Με βάση τις πληροφορία αυτές είναι δυνατόν επιπλέον να πραγματοποιηθεί και κατάλληλη βαθμονόμηση μεταξύ ραδιομετρίας και δεδομένων υφής του ιζήματος για την συγκεκριμένη περιοχή, έτσι ώστε να μπορεί να εκτελεστεί in-situ ραδιομετρική χαρτογράφηση για τον ιζηματικό χαρακτηρισμό της περιοχής αντί της μέτρησης πολλών δειγμάτων στο εργαστήριο [Ligero et al., 2001; Tsabaris et al., 2007]. Η μελέτη της χωρικής διασποράς του ¹³⁷Cs στα επιφανειακά ιζήματα του Κόλπου είναι επίσης απαραίτητη για την αξιολόγηση των θαλάσσιων επιπέδων ρύπανσης στη συγκεκριμένη περιοχή αλλά και για την βαθμονόμηση ραδιολογικών μοντέλων, όπως παρουσιάζεται και στο επόμενο κεφάλαιο (Κεφάλαιο 6).





Η περιοχή μελέτης είναι μια μικρή παράκτια περιοχή στην Ανατολική πλευρά του Κόλπου της Θεσσαλονίκης, στην θαλάσσια προέκταση του Αερολιμένα "Μακεδονία" (22°36.40'-22°57.20'E, 40°31.10'-40°31.40'N), συνολικής επιφάνειας 0.8 εκτάρια με βάθος από 5-14 m και είναι η ίδια με αυτήν που παρουσιάστηκε προηγουμένως στα πλαίσια του προσδιορισμού του ρυθμού ιζηματογένεσης στην περιοχή του Κόλπου της Θεσσαλονίκης (Κεφάλαιο 5.2.2). Κύρια πηγή ιζημάτων στην περιοχή είναι οι ποταμοί Αξιός και Γαλλικός, οι οποίοι εκβάλουν στο βορειοδυτικό τμήμα του κόλπου της Θεσσαλονίκης, ενώ όπως έχει αναφερθεί ο μικρότερος ποταμός Ανθεμούντας εκβάλλει στο ανατολικό τμήμα του κόλπου, μόλις 3 χιλιόμετρα προς τα βορειοανατολικά από την περιοχή μελέτης. Η κυκλοφορία των υδάτων έχει κατά βάση νότιο προσανατολισμό παράλληλα με την ακτογραμμή, λόγω των σταθερών N-NΔ και B-BΔ ανέμων πουπνέουν ευρύτερα στον κόλπο [Ganoulis, 1987]. Σύμφωνα με λιθολογικές και γεωτεχνικές αναλύσεις προκύπτει ότι το θαλάσσιο υπέδαφος της περιοχής αποτελείται από ένα ανώτατο μαλακό ιζηματογενές στρώμα με λασπώδη υφή και ένα μέσο πάχος 5 m και ένα κατώτερο στρώμα άμμου, λάσπης και αργίλου μεταξύ της ύστερης Τεταρτογενούς έως της Ολόκαινης περιόδου, τουλάχιστον 60 m πάχους.

Κατά την δειγματοληψία που πραγματοποιήθηκε τον Δεκέμβριο του 2005, συλλέχθηκαν επιφανειακά ιζήματα από δέκα σταθμούς (AM1 έως AM10) και πυρήνες 40 cm από πέντε από αυτούς (AM2, AM4, AM5 AM7 και AM10), ενώ συνολικά δημιουργήθηκαν 114 δείγματα ιζήματος καλύπτοντας μια έκταση περίπου 0.3 km² μέσω ενός πολύ πυκνού δικτύου δειγματοληψίας. Τα δείγματα αυτά κατόπιν αναλύθηκαν για να προσδιοριστεί η ραδιολογική τους σύσταση, η κοκκομετρική σύσταση και η περιεκτικότητά τους σε οργανικό άνθρακα. Η ραδιομετρία όλων των δειγμάτων πραγματοποιήθηκε με τη μέθοδο της φασματοσκοπίας-γ στα εργαστήρια του LNGS-INFN της Ιταλίας, ενώ οι μετρήσεις του οργανικού άνθρακα και κοκκομετρίας πραγματοποιήθηκαν στο εργαστήριο ιζηματολογίας του ΕΛΚΕΘΕ (Κεφάλαιο 3.2). Το σύνολο των αποτελεσμάτων της ραδιομετρίας και του ιζηματολογικού χαρακτηρισμού για τα επιφανειακά ιζήματα παρουσιάζονται αντίστοιχα στους Πίνακες 5.4 και 5.5.

	Ενεργότητα (Bq/kg)												
Σταθμός	¹³⁷ Cs	⁴⁰ K	²²⁶ Ra [*]	²³² Th ^{**}	²³⁵ U								
AM1	0.5 ± 0.3	470 ± 16	57.9 ± 8.4	60.0 ± 2.2	5.6 ± 0.8								
AM2	52.5 ± 1.4	435 ± 17	67.9 ± 9.8	31.9 ± 7.0	6.7 ± 1.0								
AM3	74.3 ± 1.0	428 ± 14	42.9 ± 5.2	33.0 ± 0.8	4.2 ± 0.5								
AM4	18.6 ± 0.6	350 ± 9	58.6 ± 5.4	19.0 ± 2.1	5.9 ± 0.5								
AM5	40.1 ± 0.3	400 ± 8	45.0 ± 3.0	45.0 ± 8.0	2.0 ± 0.5								
AM6	33.0 ± 3.6	542 ± 17	25.6 ± 8.5	29.0 ± 3.1	6.0 ± 0.8								
AM7	42.4 ± 3.9	487 ± 15	61.4 ± 8.4	42.0 ± 1.7	6.8 ± 0.8								
AM8	67.9 ± 1.5	447 ± 14	68.0 ± 8.4	30.0 ± 2.4	6.3 ± 0.8								
AM9	68.0 ± 1.5	447 ± 14	64.9 ± 8.5	35.0 ± 4.9	6.3 ± 0.8								
AM10	46.8 ± 4.1	469 ± 14	66.0 ± 12	34.9 ± 4.2	6.3 ± 1.1								

Πίνακας 5.4. Αποτελέσματα ραδιομετρίας των ιζημάτων επιφανείας στη Ακτή του Αερολιμένα Θεσσαλονίκης.

η μέση τιμή της ενεργότητας του 226 Ra και των θυγατρικών του 214 Bi και 214 Pb

^{**}η μέση τιμή της ενεργότητας των θυγατρικών του 228 Ac, 212 Bi και 212 Pb

	Коккоµεт	ρική Σύνθι	εση (%)	Νέση διάμετοος	V1.4	C
Σταθμός	άμμος	πηλός	άργιλος	κόκκου (μm)	Υφη [Folk, 1974]	C _{org} (%)
	2000-63 µm	63-2 μm	<2 µm		- / -	. ,
AM1	5.68	48.76	45.56	13.3	М	1.6
AM2	4.48	35.27	60.25	14.2	М	1.5
AM3	3.44	26.22	70.35	10.8	С	1.4
AM4	50.51	13.49	35.99	64.1	cS	0.9
AM5	4.08	24.57	71.35	9.7	С	1.7
AM6	9.08	22.31	68.61	9.1	С	1.7
AM7	0.74	21.61	77.66	9.1	С	1.4
AM8	2.04	25.33	72.63	8.6	С	1.3
AM9	2.11	25.28	72.61	10.2	С	1.6
AM10	3.28	17.59	79.13	11.6	С	1.5

Πίνακας 5.5. Αποτελέσματα ιζηματολογικής ανάλυσης και οργανικού άνθρακα των ιζημάτων επιφανείας στη Ακτή του Αερολιμένα Θεσσαλονίκης.

Με βάση τα παραπάνω αποτελέσματα προκύπτει ότι οι συγκεντρώσεις των φυσικών ραδιονουκλιδίων ήταν σχετικά αυξημένες με τιμές να κυμαίνονται από 26και 19-60 Bq/kg για τα ραδιονουκλίδια της σειράς του 238 U και του 232 Th, 68 αντίστοιγα. Αυξημένες επίσης ήταν και οι συγκεντρώσεις του 235U με εύρος τιμών 2-7 Bq/kg, $\varepsilon v \omega$ or times tou 40 K ήταν σε αναμενόμενα για την περιοχή επίπεδα με μέση τιμή τα 447 \pm 52 Bq/kg. Μεγαλύτερη διακύμανση τιμών παρατηρήθηκε για το ¹³⁷Cs, που κυμαίνονταν από 0.5-74.3 Bq/kg με μέση τιμή τα 44.6±23.1 Bq/kg. Σε όλα τα δείγματα το κλάσμα της άμμου (κόκκοι με διάμετρο από 0.063 έως 2 mm) είναι μικρότερο από το 10% του ξηρού βάρους ιζήματος εκτός από το βορειοανατολικό άκρο (σταθμός AM4) όπου η άμμος φτάνει το 50%. Το κλάσμα ιλύος (2-63 μm) κυμαίνεται από 13.5 έως 48.8%, ενώ το κλάσμα αργίλου (σωματίδια με διάμετρο μικρότερη των 2 μm) κυριαρχεί με ποσοστά που υπερβαίνουν συνήθως το 70%. Η πλειοψηφία των επιφανειακών ιζημάτων σύμφωνα με την κατάταξη της υφής κατά Folk (Πίνακας 3.5), χαρακτηρίζονται ως ίλυς (Μ) και άργιλος (C) ενώ σχετικά χονδρόκοκκο ίζημα αργιλώδη άμμου (cS) συσσωρεύεται στο βορειοανατολικό άκρο της περιοχής μελέτης. Η περιεκτικότητα σε οργανικό άνθρακα (Corg) στο βυθό της θάλασσας κυμαίνεται μεταξύ 0.8±0.04 και 1.7±0.09 %. Η ελάχιστη τιμή και πάλι παρατηρείται στο βορειανατολικό άκρο (σταθμός AM4), ενώ στην υπόλοιπη περιοχή ο οργανικός άνθρακας υπερβαίνει το 1.3%, με μέγιστη τιμή αυτή του σταθμού AM5 στα νοτιοανατολικά. Οι συγκεντρώσεις του οργανικού άνθρακα δεν εμφανίζουν υψηλή διακύμανση σε όλο το εύρος της περιοχής μελέτης.

Για την εκτίμηση της οριζόντιας διασποράς των συγκεντρώσεων του ¹³⁷Cs στον πυθμένα, εφαρμόστηκε με βάση τις τιμές των πειραματικών σημείων η μαθηματική μέθοδος Ordinary Kriging, μια ευρέως χρησιμοποιούμενη γεωστατιστική τεχνική δισδιάστατης παρεμβολής τυχαίων αριθμών [Williams 1998; Chiles and Delfiner 1999]. Με τον τρόπο αυτό παράχθηκαν χάρτες διασποράς των τιμών της ενεργότητας του ¹³⁷Cs, του μέσου μεγέθους κόκκου και της περιεκτικότητας σε οργανικό άνθρακα.



Σχήμα 5.40. Οριζόντια κατανομή του (a) μέσου μεγέθους κόκκου (Mz), (b) του ποσοστού οργανικού άνθρακα (C_{org}) και (c) της ενεργότητας του ¹³⁷Cs στα επιφανειακά ιζήματα του κόλπου της Θεσσαλονίκης. Οι μαύροι κύκλοι αντιστοιχούν στις θέσεις δειγματοληψίας, ενώ οι χαμηλότερες τιμές της κλίμακας στα γραφήματα αντιπροσωπεύουν τα κάτω όριο ανίχνευσης.

Με βάση τα επίπεδα ενεργότητας του ¹³⁷Cs της διακρίνονται δύο ομάδες ιζήματος: η πρώτη ομάδα που περιλαμβάνει τους σταθμούς AM1 και AM4 όπου οι συγκεντρώσεις του 137 Cs κυμαίνονται από 8 ± 1 έως 15 ± 3 Bq/kg, ενώ η δεύτερη ομάδα, στην οποία περιλαμβάνονται οι σταθμοί AM2, AM3 και AM5 σε AM10, αντιστοιχεί στην περιοχή με τις υψηλότερες συγκεντρώσεις ¹³⁷Cs που κυμαίνονται από 39±3 έως 72±6 Bq/kg. Οι τιμές αυτές είναι σημαντικά υψηλότερες σε σύγκριση με τις τυπικές συγκεντρώσεις σε παράκτια ιζήματα στην ανατολική Μεσόγειο [UNSCEAR, 2000; Garcia-Orellana et al., 2009] και με πρόσφατες μετρήσεις στο Ιόνιο Πέλαγος, όπου η μέση τιμή βρέθηκε να είναι 4.4 ± 3.5 Bq/kg [Papaefthymiou et al., 2007]. Ωστόσο, οι αυξημένες τιμές της δεύτερης ομάδας είναι, όπως αναμενόταν, πολύ χαμηλότερες από τις τιμές που αναφέρθηκαν μετά το ατύχημα του Τσερνομπίλ στο νότιο Εύξεινο Πόντο [Buesseler et al., 1990]. Αναφορικά με την κοκκομετρική σύσταση, ο σταθμός ΑΜ1 χαρακτηρίζεται ως ιλύς (Μ) (44-55% πηλός και 42-52% άργιλος) και παρουσιάζει σχετικά χαμηλή ενεργότητα ¹³⁷Cs, αν και η συγκέντρωση του οργανικού άνθρακα ήταν σχετικά αυξημένη (1.6-1.7%). Τα δείγματα από τους σταθμούς ΑΜ2, ΑΜ5, ΑΜ6, ΑΜ7 και ΑΜ10 παρουσιάζουν μεσαία επίπεδα ενεργότητας ¹³⁷Cs λόγω του πιο χονδρόκοκκου χαρακτήρα του ιζήματος τους (περιεκτικότητα σε άμμο 2-10%). Τα δείγματα των σταθμών AM3, AM8 και AM9 παρουσιάζουν τα υψηλότερα επίπεδα ραδιενέργειας, ενώ ταυτόχρονα έχουν υψηλότερα ποσοστά πηλού και αργίλου (45.1-49.5%) από το μέσο όρο. Η συγκέντρωση του ¹³⁷Cs στον σταθμό AM4 ήταν η χαμηλότερη σε σύγκριση με τα άλλα δείγματα γεγονός που αποδίδεται στον αμμώδη χαρακτήρα του ιζήματος (36% άμμος). Το μέσο μεγέθος κόκκου (Mz) των ιζημάτων της περιοχής μελέτης κυμαίνονταν μεταξύ 8.2 και 13.3 μm (αργιλώδης υφή), εκτός από το σταθμό AM4, όπου η περιεκτικότητα σε αργιλώδη άμμο επικράτησε (64.1 μm).

Για να διερευνηθούν τυχόν συσχετισμοί μεταξύ των μετρούμενων ποσοτήτων και δεδομένου ότι η χωρική κατανομή των μετρούμενων μεταβλητών δεν είναι εφαρμόστηκε μια μη παραμετρική στατιστική γνωστή, ανάλυση των χαρακτηριστικών του ιζήματος, η κατάταξη του συντελεστή συσχέτισης Spearman r. Η ανάλυση αφορά τη συσχέτιση μεταξύ της υφής, του μεγέθους των κόκκων και της μετρούμενης ενεργότητας του 137 Cs στα επιφανειακά ιζήματα της περιοχής μελέτης και τα αποτελέσματα αυτής της παρουσιάζονται στον Πίνακα 5.6. Παρά τις υψηλές τιμές του συντελεστή εμπιστοσύνης p, λόγω του μικρού αριθμού των παρατηρήσεων (N=10), οι συγκεντρώσεις του 137 Cs φαίνεται να συσχετίζονται θετικά με το κλάσμα του αργίλου (p=0.14, r=0.49) και του πηλού (p=0.46, r=0.26), ενώ παρουσιάζουν αρνητική συσχέτιση με την περιεκτικότητα σε άμμο (p=0.05, r=-0,64). Κατά συνέπεια, η ενεργότητα του ¹³⁷Cs συσχετίζεται αρνητικά με το μέγεθος του κόκκου του επιφανειακού ιζήματος (p=0.49, r=-0,25), δεδομένου ότι το μέσο μέγεθος κόκκων υπολογίζεται από τη σύνθεση της υφής του. Το αποτέλεσμα αυτό είναι σε συμφωνία με παρόμοιες έρευνες και αλλού [Ligero et al 2005b; Tsabaris et al., 2007]. Ωστόσο, οι συγκεντρώσεις οργανικής ύλης των επιφανειακών ιζημάτων δεν παρουσίασαν σημαντική διακύμανση σε όλη την επιφάνεια μελέτης, και κατά συνέπεια, δεν

μπορούν να συσχετιστούν άμεσα με τη διασπορά του 137 Cs στην περιοχή (p=0.59, r=-0,22).

		Άμμος	Πηλός	Άργιλος	Mz	Corg.	¹³⁷ Cs
Άμμος	r p-value	1					
Πηλός	r p-value	-0.0061 0.9867	1				
Άργιλος	r p-value	-0.8788 0.0008	-0.2848 0.425	1			
Mz	r p-value	0.5897 0.0728	0.0608 0.8675	-0.6079 0.0623	1		
Corg	r p-value	0.2209 0.5397	0.2086 0.563	-0.0307 0.933	-0.1662 0.6464	1	
¹³⁷ Cs	r p-value	-0.6364 0.0479	0.2606 0.4671	0.4909 0.1497	-0.2492 0.4874	-0.2231 0.5868	1

Πίνακας 5.6. Συσχέτιση Spearman των συνιστωσών της υφής (άμμος, πηλός, άργιλος) του μέσου μεγέθους κόκκων, του οργανικού άνθρακα και της ενεργότητας του ¹³⁷Cs, επιφανειακών δείγματα ιζημάτων (N = 10) από τη περιοχή μελέτης στην Ακτή Αερολιμένα Θεσσαλονίκης.

Παράλληλα, όπως και στην περίπτωση του πυρήνα AM2 που παρουσιάστηκε νωρίτερα (Κεφάλαιο 5.2.2), υπολογίστηκε για όλους τους πυρήνες η συνολική επιφανειακή απόθεση ¹³⁷Cs στη στήλη του ιζήματος. Οι αποθέσεις ¹³⁷Cs στον ανατολικό άκρο του Κόλπου της Θεσσαλονίκης παρουσίασε ελάχιστη τιμή τα 205±15 Bq/m² για τον πυρήνα AM4 και μέγιστη τιμή τα 602 ± 39 Bq/m² στον πυρήνα AM2, ενώ στους σταθμούς AM5, AM7 και AM10 οι τιμές βρέθηκαν ίσες με 412±28, 392±27 και 410±29 Bq/m², αντιστοίχως. Όπως απεικονίζεται και στο Σχήμα 5.41, παρατηρείται μια αρνητική συσχέτιση μεταξύ των συνολικών αποθέσεων ¹³⁷Cs με το μέσο μέγεθος κόκκου στο σύνολο του πυρήνα του ¹³⁷Cs φαίνεται να είναι ανεξάρτητη από τις διακυμάνσεις του μεγέθους των κόκκων, δεδομένου ότι η μεταβολή των συγκεντρώσεων αποδίδεται στη διαφορετική χωρική κατανομή των ραδιονουκλιδίων (ατμοσφαιρική κατακρήμνιση, έκπλυση ποταμών και θαλάσσια μεταφορά μαζών νερού).

Στην περίπτωση των πυρήνων ιζήματος, η σχέση μεταξύ των αποθέσεων ¹³⁷Cs με το μέσο μέγεθος του κόκκου των ιζημάτων του πυρήνα φανερώνει ότι οι μηχανισμοί της βραχυπρόθεσμης επιφανειακής διασποράς εξαφανίζεται και κυριαρχούν οι θεμελιώδεις διαδικασίες προσρόφησης του ¹³⁷Cs στο ίζημα. Ωστόσο, σε άλλα θαλάσσια περιβάλλοντα, η κατανομή του ¹³⁷Cs εξαρτάται κυρίως από το μέγεθος κόκκου των ιζημάτων, όπου οι υψηλότερες τιμές φαίνεται να συσχετίζεται έντονα με το κλάσμα της αργίλου, και οι χαμηλότερες ή και μη ανιχνεύσιμες τιμές να συνδέονται με την αμμώδη υφή ιζήματος [Alonso-Hernandez et al., 2006]. Πρόσφατες μετρήσεις στο νησί της Μήλου στο κεντρικό Αιγαίο που δεν επηρεάζεται από εισροές φερτής ύλης από ποταμούς έδειξαν ότι οι συνολικές εναποθέσεις ¹³⁷Cs

δυτική, νότια και νοτιανατολικά τμήματα της Μεσογείου, έδειξαν ότι οι αποθέσεις 137 Cs ποικίλουν από 99.9±6.5 έως 141.7±5.8 Bq/m² [Garcia-Orellana, et al. 2009].



Σχήμα 5.41. Συσχέτιση συνολικής επιφανειακής εναπόθεσης ¹³⁷Cs με το μέσο μέγεθος κόκκου ιζήματος.

Τέλος, έγινε προσπάθεια για το έμμεσο χαρακτηρισμό της υφής βυθό της περιοχής μελέτης με βάση της μετρήσεις ραδιενέργειας στην επιφάνια του ιζήματος. Συγκεκριμένα εφαρμόστηκε εμπειρικός τύπος υπολογισμού του παράγοντα F όπου συνδιάζει της επιφανειακές συγκεντρώσεις ενεργότητας (A) του ²³²Th (²²⁸Ac), ²²⁶Ra, ⁴⁰K και ¹³⁷Cs, συμφώνα με τη σχέση [Ligero et al., 2001]:

$$F = -0.048 \cdot A_{Ra} + 0.24 \cdot A_{Th} + 0.65 \cdot A_{Cs} - 0.0020 \cdot A_{K} - 3.6$$
(5.2)

όπου τιμές του F μεγαλύτερες από την μονάδα αντιστοιχούν σε ιζήματα όπου το κλάσμα ιλύος είναι μεγαλύτερο από 80% (F>0→M), αρνητικές τιμές μέχρι το -1.5 αντιστοιχούν σε ιζήματα αμμώδους ιλύος που το κλάσμα ιλύος κυμαίνεται μεταξύ 50 και 80% (-1.5</br>
 (-1.5</br>
 (-1.5</br>
 (-1.5</br>
 (-1.5</br>
 (-1.5</br>
 (-1.5</br>
 (F<-1.5) αντιστοιχούν σε ιζήματα αμμώδους ιλύος που το κλάσμα ιλύος κυμαίνεται μεταξύ 50 και 80% (-1.5</br>
 (-1.5</br>
 (-1.5</br>
 (-1.5</br>
 (-1.5</br>
 (-1.5</br>
 (F<-1.5) αντιστοιχούν σε ιζήματα άμμου με κλάσμα άμμου πάνω από 50% (F<-1.5
→S/mS). Κατόπιν τα ιλώδη ιζήματα (F>0) μπορούν περαιτέρω να διαχωριστούν με βάση τις συγκεντρώσεις μόνο του 137Cs και 40K, παράγοντα G που δίνεται από τη σχέση:

$$G = -3.5 + 0.0054 \cdot A_{Th} + 0.32 \cdot A_{Cs}$$
(5.3)

όπου θετικές τιμές του G αντιστοιχούν σε ιζήματα αργίλου (F>0,G>0 \rightarrow C), ενώ αρνητικές σε ιζήματα πηλού (F>0,G<0 \rightarrow Z), σύμφωνα με την κατάταξη Folk.

Με βάση τους παραπάνω τύπους υπολογίστηκαν οι παράμετροι F και G για όλα τα επιφανειακά δείγματα, προσδιορίστηκε η εκτιμώμενη υφή τους και τα αποτελέσματα συγκρίθηκαν με αυτά της ιζηματολογικής ανάλυσης (Πίνακας 5.7).

Σταθμός	AM1	AM2	AM3	AM4	AM5	AM6	AM7	AM8	AM9	AM10
Παράγοντας										
F	7	24	35	2	17	17	17	34	34	21
G	-1	16	23	4	11	10	13	21	21	14
Υφή										
[Ligero et al., 2001]	Z	С	С	С	С	С	С	С	С	С
[Folk, 1974]	М	М	С	cS	С	С	С	С	С	С

Πίνακας 5.7.Οι παράγοντες F και G με την ραδιολογικά εκτιμούμενη και ιζηματολογική υφή των ιζημάτων επιφανείας στη Ακτή του Αερολιμένα Θεσσαλονίκης.

Οι υψηλές τιμές του F δείχνουν τον ιλώδη χαρακτήρα (M) των ιζημάτων όλης της περιοχής, ενώ οι χαμηλότερες τιμές του F εμφανίζονται στο δείγμα AM4 ιζήματος, που πράγματι έχει πιο αμμώδη σύσταση (αμμώδης ιλύς). Κατόπιν από την εφαρμογή του παράγοντα G για την περαιτέρω κατηγοριοποίηση των ιζημάτων παρατηρείται ότι υπάρχει συμφωνία σε όλα τα σημεία μεταξύ των δύο μεθόδων, ενώ προβλέπεται ακόμα και η πιο έντονη συνεισφορά του πηλού (Z) στον σταθμό AM1 με το μέγιστο ποσοστό κλάσματος πηλού από όλα τα δείγματα (48.76%). Συνολικά, αν και δεν ήταν δυνατό να γίνει πλήρης εκτίμηση των αποτελεσμάτων καθώς η περιοχή παρουσίαζε μεγάλο βαθμό ομοιογένειας, η εφαρμογή της μεθόδου κρίνεται πολύ ικανοποιητική γεγονός που συμφωνεί και με παρόμοιες έρευνες σε άλλες υδάτινες περιοχές [Ligero et al, 2001; Ligero et al, 2005b; Tsabaris et al, 2007], καθιστώντας την αξιόπιστη εναλλακτική ιζηματολογικού χαρακτηρισμού πυθμένων.

5.3.2 Πορθμός Σαλαμίνας-Πειραιά

Η δεύτερη περιοχή που πραγματοποιήθηκε μελέτη της επιφανειακής διασποράς ραδιονουκλιδίων στον πυθμένα του ιζήματος είναι το βορειοανατολικό πέρασμα του Κόλπου της Σαλαμίνας προς τον Κόλπο της Ελευσίνας (23°32'-23°37'Ε, 37°56'-37 58'Ν). Πρόκειται για την ευρύτερη θαλάσσια περιοχή που βρίσκεται δίπλα στο Σαρωνικό Κόλπο και εκτείνεται από την προβλήτα Κρακάρη, στην έξοδο του Λιμένα Πειραιά, στο δυτικό τμήμα του Λιμένα Κερατσινίου, συμπεριλαμβανομένης της βραχώδους ακτής της Δραπετσώνας, του κόλπου των Σφαγείων και Φόρου, το λιμάνι του Ακροκέραμου, το κρηπίδωμα Δραπετσώνας και το λιμάνι Κερατσινίου, ενώ στα βόρεια καταλήγει στην είσοδο του Κόλπου της Ελευσίνας.

Η μητροπολιτική παράκτια αυτή ζώνη της Αθήνας είναι ένα ιδιαίτερα επιβαρημένο περιβάλλον λόγω της εδώ και πολλές δεκαετίες σταθερής μόλυνσης. Οι κύριες πηγές ρύπανσης είναι: (α) το διεθνές λιμάνι του Πειραιά, ένα από τα μεγαλύτερης κυκλοφορίας λιμάνια στη Μεσόγειο Θάλασσα, με έντονες ναυτιλιακές δραστηριότητες (συμπεριλαμβανομένης της μεταφοράς καυσίμων και χημικών ουσιών), (β) η απευθείας απόρριψη στο νερό ανεπεξέργαστων οικιακών και βιομηχανικών λυμάτων – της τάξης των $3.5 \cdot 10^6$ έως $6 \cdot 10^6$ m³/y [Zarkanellas and Bogdanos, 1977; Theodorou and Perissoratis, 1991] – από το λεκανοπέδιο της Αθήνας για περισσότερα από 20 χρόνια (μέχρι το 1994) μέσω του κεντρικού αγωγού

αστικών λυμάτων της Αθήνας (ASO), (γ) ένα μεγάλο εργοστάσιο λιπασμάτων στην περιοχή της Δραπετσώνας που λειτουργούσε μέχρι το τέλος του '90 και πραγματοποιούσε απόρριψη στερεών και υγρών αποβλήτων απευθείας στη θάλασσα χωρίς καμία προηγούμενη επεξεργασία [Angelidis and Grimanis, 1989] και (γ) η βιομηχανική ζώνη της Ελευσίνας, που περιλαμβάνει περισσότερα από 30 βιομηχανίες, όπως διυλιστήρια πετρελαίου, ναυπηγεία, χαλυβουργεία, χυτήρια, χημικά και ηλεκτροχημικά εργοστάσια, τσιμεντοβιομηχανίες κ.ά., τα οποία είναι γνωστό ότι απορρίπτουν απευθείας βαρέα μέταλλα στη θάλασσα. Όλοι αυτοί οι παράγοντες έχουν οδηγήσει σε σημαντική υποβάθμιση της ποιότητα του θαλάσσιου περιβάλλοντος, ενώ σειρά μελετών έχουν επιβεβαιώσει τη ρύπανση της περιοχής από βαρέα μέταλλα, τοξικά στοιχεία και οργανικά συστατικά [π.χ. Sheppard, 1977, Voutsinou-Taliadouri and Satsmadjis, 1982; Simboura et al., 2005; Kapsimalis et al., 2014]. Ωστόσο, περιορισμένες είναι οι μετρήσεις που αφορούν τις συγκεντρώσεις ραδιονουκλιδίων στο νερό (Κεφάλαιο 5.1.1) και ακόμα λιγότερες για τις συγκεντρώσεις ραδιονουκλιδίων στο ίζημα [Γκαραγκούνη, 2005].

Με βάση τα παραπάνω, δείγματα ιζήματος συλλέχτηκαν από το βυθό του πορθμού Σαλαμίνας-Πειραιά και αναλύθηκαν για τον προσδιορισμό της ενεργότητας των ραδιονουκλιδίων και των συγκεντρώσεων σε βαρέα μέταλλα, με σκοπό την παροχή πρόσφατων δεδομένων σχετικά με το επίπεδο μόλυνσης, του ραδιολογικού προφίλ και της ποιότητας του ιζήματος της περιοχής. Η περιοχή μελέτης κάλυπτε έκταση 22 km² περίπου με μέσο βάθος τα 11 m. Πραγματοποιήθηκαν δύο ερευνητικές δειγματοληψίες, μία στην παράκτια ζώνη Κερατσινίου-Δραπετσώνας (σταθμοί KER) στις 28/12/2011 και κατόπιν στο κανάλι του Περάματος (σταθμοί X) στις 24/2/2012. Συνολικά 22 δείγματα, 8 από την πρώτη και 14 από την δεύτερη ερευνητική αποστολή, συλλέχτηκαν από τον βυθό επιφανειακά δείγματα ιζήματος πάχους περίπου 2 cm με δειγματολήπτες αρπαγής. Κατόπιν τα δείγματα ψυλάχθηκαν και αναλύθηκαν ως προς τις βασικές φυσικές τους ιδιότητες (κοκκομετρία, υφή, πυκνότητα κ.ά.), τον προσδιορισμό των κύριων βαρέων μετάλλων με την μέθοδο της XRF ανάλυσης και την ραδιολογική τους σύσταση με την μέθοδο της φασματοσκοπίας-γ με ανιχνευτή HPGe, στα εργαστήρια του ΕΛΚΕΘΕ.



Σχήμα 5.42. Η θαλάσσια περιοχής μελέτης στον πορθμό Σαλαμίνας-Πειραιά με τα σημεία δειγματοληψίας στην περιοχή Κερατσινίου-Δραπετσώνας (σταθμοί KER) και του καναλιού του Περάματος (σταθμοί X), στο ΒΑ Σαρωνικό Κόλπο.

Από τις μετρήσεις των δειγμάτων προέκυψαν οι συγκεντρώσεις των φυσικών ραδιονουκλιδίων και του ¹³⁷Cs (Πίνακας 5.8) καθώς και οι συγκεντρώσεις των κυριότερων βαρέων μετάλλων και της κοκκομετρίας (Πίνακας 5.9). Αξίζει να σημειωθεί ότι εν προκειμένω κατέστη δυνατός ο άμεσος προσδιορισμός του ²¹⁰Pb με φασματοσκοπία-γ λόγω της ικανής ποσότητας δείγματος (μεγάλη γεωμετρία ανίχνευσης), και του υπέρλεπτου παράθυρου του HPGe της ανιχνευτικής διάταξης του ΕΛΚΕΘΕ. Επιπλέον πρέπει να σημειωθεί ότι η κοκκομετρική ανάλυση πραγματοποιήθηκε με τον διαχωρισμό μόνο δύο κλασμάτων ιζήματος (άμμος και ιλύς) και ως εκ τούτου δεν υπολογίστηκε η μέση διάμετρος κόκκου. Η μέση περιεκτικότητα σε οργανικό άνθρακα σε όλη την περιοχή μελέτης παρουσίαζε πολύ μικρή διακύμανση με μέση τιμή 1.6±1.0 %, ενώ η πυκνότητα των ξηρών δειγμάτων παρουσίαζε εύρος τιμών από 25.2 έως 60.1 g/cm³ με μέση περιεκτικότητα σε νερό

Πίνακας 5.8. Αποτελέσματα ραδιομετρίας των ιζημάτων επιφανείας του καναλιού Σαλαμίνα-Πειραιά.

	Ενεργότητα (Bq/kg)																	
Σταθμός	:	¹³⁷ C	S	,	⁴⁰ K		2	²⁶ Ra	*	232	Th	**		²³⁵ U		210	Pb _{ex}	1
KER-2	0.9	±	0.1	145	±	5	72.9	±	12.5	14.2	±	1.4	6.6	±	0.2	119.3	±	6.6
KER-3	4.3	±	0.2	249	±	7	55.3	±	9.9	15.8	±	3.5	5.0	±	0.3	173.3	±	7.2
KER-4	2.3	±	0.2	267	±	14	28.7	±	4.9	8.0	±	6.6	2.6	±	0.1	253.1	±	7.1
KER-6	2.9	±	0.2	333	±	18	11.0	±	3.6	14.8	±	5.6	1.1	±	0.2	165.1	±	7.2
KER-7	2.4	±	0.3	271	±	15	18.8	±	12.9	14.7	±	5.3	2.3	±	0.2	30.7	±	4.4
KER-8	0.7	±	0.1	231	±	10	6.1	±	0.1	8.6	±	3.8	0.5	±	0.2	52.5	±	4.9
KER-11	0.4	±	0.1	62	±	4	14.5	±	6.8	5.2	±	2.7	1.6	±	0.1	7.1	±	2.0
KER-12	2.7	±	0.4	377	±	12	15.9	±	3.9	19.3	±	3.6	1.5	±	0.2	64.4	±	4.8
X-1	6.6	±	0.3	346	±	24	23.6	±	4.9	22.9	±	3.2	2.2	±	0.2	252.4	±	9.1
X-2	2.8	±	0.3	300	±	12	32.6	±	4.1	12.5	±	3.7	2.9	±	0.2	86.1	±	6.0
X-4	2.2	±	0.2	199	±	6	65.1	±	14.7	18.7	±	3.1	6.1	±	0.2	232.5	±	7.3
X-5	2.6	±	0.2	187	±	6	20.6	±	8.3	10.0	±	2.9	2.1	±	0.0	100.4	±	4.7
X-6	2.6	±	0.3	287	±	11	13.8	±	4.4	14.6	±	0.4	1.4	±	0.1	193.2	±	6.3
X-7	0.7	±	0.1	170	±	5	11.2	±	3.2	8.7	±	0.3	1.1	±	0.1	112.5	±	3.4
X-8	2.1	±	0.4	174	±	7	6.2	±	0.6	16.5	±	1.2	0.5	±	0.1	170.4	±	6.0
X-9	1.0	±	0.2	180	±	6	11.1	±	0.4	9.4	±	3.8	0.9	±	0.1	57.8	±	4.0
X-10	1.0	±	0.2	113	±	5	6.0	±	5.0	6.2	±	3.8	0.8	±	0.1	50.9	±	3.3
X-11	0.4	±	0.1	224	±	9	3.4	±	1.6	10.5	±	1.5	0.4	±	0.1	62.0	±	2.8
X-12	0.3	±	0.1	92	±	5	3.3	±	0.3	6.0	±	1.7	0.3	±	0.1	33.1	±	2.5
X-16	1.3	±	0.2	256	±	8	8.1	±	2.4	12.3	±	1.8	0.8	±	0.1	26.0	±	2.3
X-17	1.4	±	0.1	247	±	8	12.1	±	7.3	11.6	±	3.7	1.4	±	0.2	98.8	±	4.6
X-19	2.8	±	0.3	243	±	8	10.7	±	1.8	14.1	±	0.7	1.0	±	0.1	105.4	±	6.1

 * η μέση τιμή της ενεργότητας του 226 Ra και των θυγατρικών του 214 Bi και 214 Pb

^{**}η μέση τιμή της ενεργότητας των θυγατρικών του 228 Ac, 212 Bi και 212 Pb

	D 40	Коккоµεтрιк	τή Σύνθεση	(%)	Συγκέντρωση (ppm)						
Σταθμός	Βαθος (m)	άμμος 2000-63 μm	ιλύς <63 μm	As	Cr	Cu	Mn	Ni	Pb	Zn	
KER-2	16	73.04	19.01	2677.4	123.6	566.7	1476.8	48.2	1393.6	4820.9	
KER-3	20	45.74	54.26	1207.2	337.7	323.1	745	95.7	703.8	2136.1	
KER-4	33	61.94	38.06	148.2	255	154.7	260.8	77.6	219.5	474.6	
KER-6	31	36.28	63.72	42.8	334.8	163.1	258.4	116.4	153.8	450.6	
KER-7	31	48.84	51.16	18.6	180.7	79.9	213.9	82	75.4	205.9	
KER-8	27	54.78	39.40	17.3	187.4	78.8	200.1	92.9	66.1	173.2	
KER-11	10	89.62	10.38	17.1	90.4	42	99.7	25.3	47.4	117.6	
KER-12	29	38.44	61.56	36.7	258.2	94.8	324.8	113.4	128	242.9	
X-1	47	31.13	68.87	95.1	397	284.8	283.6	90.9	308.8	747.7	
X-2	47	18.79	81.21	30.4	291.2	78.3	312.4	145.4	63.9	201.9	
X-4	22	73.85	26.15	940.2	217.9	272.7	589.6	46.3	709.4	1784.4	
X-5	28	66.74	33.26	26.2	290.5	91.1	196	64.5	96.3	259	
X-6	35	38.28	61.72	26.2	435.7	178.7	271	80.6	181.7	494.2	
X-7	42	76.50	23.50	22	235.7	77.2	229.7	55.6	83.1	205.8	
X-8	37	55.17	44.83	18.9	221.2	95.1	237.4	59	97.5	228.4	
X-9	31	73.10	26.90	22.1	266.3	117.4	294	57.8	133	296.1	
X-10	20	64.35	35.65	24	312.9	103.9	275	57.6	148.8	387.7	
X-11	7	58.34	41.66	15.7	206.8	95.4	188.1	64.7	225.6	376.4	
X-12	23	90.05	9.95	19.3	165.1	59	225.4	42.2	63.3	122.2	
X-16	4	93.63	6.37	13.7	517.1	120.7	409.8	194.4	61.5	141.2	
X-17	14	90.06	9.94	48.8	256.6	383.5	469.5	57.9	540.1	1706.1	
X-19	24	52.36	47.64	26.7	160.4	122.9	219.8	53.2	171.7	274.6	

Πίνακας 5.9. Συγκεντρώσεις φυσικών χαρακτηριστικών και βαρέων μετάλλων στα ιζήματα επιφανείας του καναλιού Σαλαμίνα-Πειραιά.

Όπως φαίνεται και από τα αποτελέσματα, οι ενεργότητες των ραδιονουκλιδίων κυμαίνονταν από 2-64 Bq/kg για τα ραδιονουκλίδια της σειράς του ²³⁸U (μέση τιμή ²²⁶Ra, ²¹⁴Pb και ²¹⁴Bi), 5-23 Bq/kg για τη σειρά του σειρά του ²³²Th (μέση τιμή των θυγατρικών του ²²⁸Ac, ²¹²Pb και ²⁰⁸Tl), 0.3 - 7 Bq/kg για το ²³⁵U, 62-377 Bq/kg για το ⁴⁰K και αρκετά χαμηλές τιμές για το ¹³⁷Cs με εύρος τιμών 0.3-7 Bq/kg. Πιο αυξημένες και μεγαλύτερη διακύμανση παρουσιάστηκαν οι τιμές του ²¹⁰Pb_{ex} που κυμαίνονταν από 7-233 Bq/kg. Όσον αφορά τις συγκεντρώσεις των βαρέων μετάλλων παρουσιάζονται οι τιμές αυτών που εμφανίζουν τα μεγαλύτερες τιμές, που κυμαίνονταν από 14-2677 ppm για το As, 90-517 ppm για το Cr, 42-567 ppm για το Ni και 47-1394 ppm για τον Pb. Τόσο τα βαρέα μέταλλα όσο και τα ραδιονουκλίδια παρουσίασαν πιο αυξημένες τιμές στο ανατολικό άκρο, στις ακτές της Δραπετσώνας, (σταθμοί X-1,X-4 και KER-2, KER-3), ενώ χαμηλές τιμές εμφανίζονται στα σημεία X-10 και KEP-11.

Πιο συγκεκριμένα, για να προσδιοριστούν πιθανά σημεία φόρτου, αναπτύχθηκαν χάρτες διασποράς όλων των ραδιονουκλιδίων, με βάση την τεχνική Ordinary Kriging Interpolation (Σχήμα 5.43).



Σχήμα 5.43. Οριζόντια εκτιμούμενη κατανομή των φυσικών ραδιονουκλιδίων (²²⁶Ra, ²³²Th, ²⁵³U, ⁴⁰K) και των ραδιονουκλιδίων ατμοσφαιρικής κατακρήμνισης (¹³⁷Cs,²¹⁰Pb_{ex}) στον πορθμό Σαλαμίνας-Πειραιά. Οι μαύροι κύκλοι αντιστοιχούν στους σταθμούς δειγματοληψίας.

Οι ενεργότητες όλων των ραδιονουκλιδίων στον πυθμένα ήταν σχετικά χαμηλές, χωρίς να παρουσιάζεται κάποια ένδειξη εκτεταμένου φόρτου από NORM ή TENORM. Οι πιό αυξημένες τιμές ²¹⁰Pbex παρουσιάζονται στην είσοδο του λιμένα Πειραιά λόγω των πετρελαιοειδών από την κυκλοφορία των πλοίων και τις παλαιότερες εναποθέσεις από το πρώην εργοστάσιο φωσφογύψου στην Δραπετσώνα. Στο συμπέρασμα αυτό συντείνει και το γεγονός τις ύπαρξης μεγίστων του ²²⁶Ra και του ²³⁵U στην ίδια περιοχή. Οι τιμές του ¹³⁷Cs ελαττώνονται σημαντικά προς τα βορειοδυτικά, στην είσοδο του Κόλπου της Ελευσίνας (σταθμοί Χ-12, Χ-16 και Χ-17), που επικρατούν αμμώδη ιζήματα (>90%) και επικρατεί έντονη κυκλοφορία υδάτων με την συνεπακόλουθη μετακίνηση ιζημάτων. Αναφορικά με το ⁴⁰K οι τιμές παρουσίασαν μικρή διακύμανση με αποτέλεσμα να μην μπορεί να παρατηρηθεί κάποιο συγκεκριμένο χωρικό πρότυπο διασποράς. Σε όλες τις περιπτώσεις οι τιμές των ραδιονουκλιδίων ήταν αναμενόμενες για φυσικά ιζήματα [UNSCEAR, 2000], ενώ με βάση τον προσδιορισμό του συνολικού ποσοστού αναρροφούμενης δόσης από τη σχέση (1.16) προέκυψαν τιμές από 9-45 nGy/h, που είναι χαμηλές σε σχέση με τη μέση δόση από το έδαφος σε διάφορες γώρες, που κυμαίνεται μεταξύ 24-160 nGy/h με σταθμισμένο μέσο ρυθμό δόσης του πληθυσμού τα 57 nGy/h [UNSCEAR, 2000].

Εντελώς διαφορετική είναι η εικόνα για τα βαρέα μέταλλα της περιοχής. Οι τιμές σε όλες τι περιπτώσεις είναι σημαντικά αυξημένες σε σχέση με τις φυσικές συγκεντρώσεις βαρέων μετάλλων στο έδαφος [Turekian and Wedepohl, 1961;Taylor, 1972], ενώ στις περισσότερες περιπτώσεις οι μετρούμενες συγκεντρώσεις υπερέβαιναν τα επίπεδα αναφοράς στα αδιατάραχτα ιζήματα που είναι 25ppm για τον Cu, 550 ppm για το Mn, 19 ppm για το Ni, 19 ppm για τον Pb, 60 ppm για τον Zn και 54 ppm για το Cr [Bowen, 1979]. Το γεγονός αυτό προκύπτει και από την σύγκριση των αποτελεσμάτων με πρόσφατες τιμές σε άλλες παράκτιες περιοχές της Ελλάδας.

	Μέγεθος Μέσες τιμές (ppm)			/					
Περιοχη	κλασματος (μm)	Mn	Cu	Pb	Z	n Cr		Ni	Αναφορα
Σαλαμίνα-Πειραιάς	2	354	163	258	720	261		78	παρούσα εργασία
Παγασητικός Κόλπος	2	1309	62	50	165	389		180	Karageorgis et al., 2002
Θερμαϊκός Κόλπος	2	945	58	50	218	201		102	Anagnostou et al., 1996
Κόλπος Ελευσίνας	2	1079	99	194	523	181		118	Sioulas et al., 1990
Κόλπος Γέρας (Λέσβος)	2	1309	29	56	134	223		318	Sioulas and Anagnostou, 1989
Ν Ευνοϊκός Κόλπος	2	939	17	36	111	378		308	Karageorgis, 2000
Μήλος	6	1685	51	151	325	119		61	Karageorgis et al., 1998
Σχιστόλιθοι (μέση τιμή)	συνολικό	900	45	20	95	90		68	Turekian and Wedepohl, 1961

Πίνακας 5.10. Συγκεντρώσεις βαρέων μετάλλων σε διάφορες παράκτιες περιοχές της Ελλάδας.

Οι συγκεντρώσεις που μετρήθηκαν ήταν κατά τόπους πάνω από τις προτεινόμενες τιμές ποιότητας ιζήματος [USEPA, 1999; WHO, 2004]. Με σκοπό την περαιτέρω διερεύνηση και τον χαρακτηρισμό της περιοχής ως προς το βαθμό ρύπανσης, υπολογίστηκαν δείκτες ποιότητας του πυθμένα με βάση τις συγκεντρώσεις των βαρέων μετάλλων που παρουσίασαν τις μεγαλύτερες τιμές. Μια απλή προσέγγιση της οικοτοξικολογικής επιβάρυνσης από βαρέα μέταλλα είναι ο προσδιορισμός του δείκτη φόρτου ρύπανσης (Pollution Load Index) PLI, που εκτιμά αν τα παράκτια ιζήματα μιας περιοχής είναι μολυσμένα από βαρέα μέταλλα και υπολογίζεται από την σχέση[Tomlinson et al., 1980]:

$$PLI = \left(\prod_{n} \frac{CF}{CF_{B}}\right)^{1/n}$$
(5.4)

όπου n το πλήθος των υπό εξέταση βαρέων μετάλλων, CF η συγκέντρωσή τους στα υπό μελέτη ιζήματα και CF_B η θεωρούμενη τιμή υποβάθρου. Τιμές του PLI>1 αντιστοιχούν σε μολυσμένο ίζημα, ενώ για PLI<1 το ίζημα θεωρείται μη μολυσμένο.

Αντίστοιχη είναι και η κατάταξη με βάση τον βαθμό γεωσυσσώρευσης (Geoaccumulation Index) I_{geo} , που υπολογίζεται από την σχέση [Müller, 1979]:

$$I_{geo} = \ln\left(\frac{CF}{1.5 \cdot CF_{B}}\right)$$
(5.5)

Σε αυτό το σύστημα κατάταξης κάθε μέταλλο εξετάζεται ξεχωριστά και το ίζημα κατατάσσεται ως προς καθένα από αυτά ανάλογα με τη τιμή του $I_{\rm geo}$ σε μία από τις

κατηγορίες: (0) μη ρυπασμένο με $I_{geo} \le 0$, (1) μη ρυπασμένο έως ελαφρά ρυπασμένο με $0 < I_{geo} < 1$, (2) μέτρια ρυπασμένο με $1 < I_{geo} < 2$, (3) μέτρια έως πολύ ρυπασμένο με $2 < I_{geo} < 3$, (4) πολύ ρυπασμένο ($3 < I_{geo} < 4$), (5) πολύ έως πολύ ισχυρά ρυπασμένο με $4 < I_{geo} < 5$ και (6) πολύ ισχυρά ρυπασμένο με $I_{geo} > 5$.

Εναλλακτικός τρόπος αξιολόγησης της ποιότητας του ιζήματος είναι με τον προσδιορισμό του δείκτη ποιότητας ιζήματος (Sediment Quality Index) SQI, που κατηγοριοποιεί τα ιζήματα ως προς το βαθμό ρύπανσής τους με βάση και πάλι το ποσοστό επιβάρυνσής των επιμέρους βαρέων μετάλλων ως προς τις τιμές υποβάθρου [MacDonald et al., 2000]. Εδώ κατά τους υπολογισμούς λαμβάνεται υπόψη το πλήθος των υπό μελέτη βαρέων μετάλλων που υπερβαίνουν την τιμή υποβάθρου, το κατά πόσο υπερβαίνουν την τιμή αυτή καθώς και την συχνότητα που αυτό συμβαίνει στο σύνολο των δειγμάτων ιζήματος της υπό μελέτη περιοχής, ενώ ανάλογα με την τιμή του SQI που προκύπτει, από 0 έως 100, τα ιζήματα κατατάσσονται με βάση την ποιότητά τους σε [CCME, 2002]: (α) φτωχά (0-44), όπου η ποιότητα των ιζημάτων είναι σχεδόν πάντα υποβαθμισμένη με τις περισσότερες μετρήσεις να αποκλίνουν σημαντικά από τα επίπεδα υπόβαθρου του περιβάλλοντος (β) οριακά (44-59), όπου η ποιότητα των ιζημάτων είναι συχνά μειωμένη με πολλές από τις μετρήσεις να αποκλίνουν από το υπόβαθρο, (γ) μέτρια (60-79), όπου η ποιότητα των ιζημάτων μερικές φορές είναι μειωμένη και ορισμένες μόνο μετρήσεις αποκλίνουν από τα επίπεδα υπόβαθρου, (δ) καλά (80-94), όπου παρατηρείται μόνο σε μικρό βαθμό η υποβάθμιση της ποιότητας με τις περισσότερες τιμές να εμπίπτουν στις ενδεδειγμένες τιμές και σπάνια αποκλίνουν από τις τιμές υποβάθρου και (ε) εξαιρετικά (95-100), όπου το ίζημα στερείται κάθε μόλυνσης, γεγονός που επιτυγχάνεται όταν σχεδόν όλες οι μετρήσεις εμπίπτουν στις ενδεδειγμένες τιμές και είναι σε συμφωνία με τις τιμές του υποβάθρου.

Με βάση τα παραπάνω, προσδιορίστηκε ο βαθμός επιβάρυνσης του ιζήματος στην περιοχή μελέτης για τις συγκεντρώσεις του Mn, Cu, Pb, Zn, Cr και Ni και παίρνοντας ως τιμές υποβάθρου τις παγκόσμιες μέσες τιμές σε αντίστοιχα θαλάσσια ιζήματα [Turekian and Wedepohl, 196; Bowen, 1979]. Σύμφωνα με τον δείκτη ποιότητας PLI προέκυψε ότι ο πυθμένας της περιοχής έχει συνολική τιμή 3.6 και κυμαίνεται από 2.6 έως 10, που σε κάθε περίπτωση αντιστοιχεί σε μολυσμένη περιοχή (PL>1), ενώ με βάση τον δείκτη SQI η ποιότητα του ιζήματος κυμαίνεται από μέτρια (60<SQI<80) έως φτωγή (SQI<44). Από τα εκτιμούμενα αποτελέσματα για το σύνολο του πυθμένα της περιοχής μελέτης (Σχήμα 5.44) παρουσιάζεται έντονη επιβάρυνση του ιζήματος στην είσοδο του λιμένα Πειραιά και του πρώην εργοστασίου φωσφογύψου στη Δραπετσώνας, ενώ αναδεικνύεται και μια εξίσου έντονα ρυπασμένη περιοχή με επίκεντρο τον σταθμό Χ-17 στην νότια παράκτια ζώνη Περάματος. Η τοποθεσία αντιστοιχεί προβλήτα της περιοχής του σε φορτοεκφόρτωσης εμπορευμάτων και βιομηχανικών υλικών με συνεπακόλουθη μεγάλη κυκλοφορία φορτηγών πλοίων και τάνκερ.



Σχήμα 5.44. Εκτιμούμενη ποιότητα ιζήματος του πυθμένα στον πορθμό Σαλαμίνας-Πειραιά με βάση τους δείκτες ποιότητας PLI και SQI, όπως προσδιορίστηκαν για τις συγκεντρώσεις των κυριότερων βαρέων μετάλλων στην περιοχής.

Αντίστοιχα είναι και τα αποτελέσματα με βάση την αντιστοίχιση των ιζημάτων στις κατηγορίες του δείκτη γεωσυσσώρευσης Igeo, με την ρύπανση για το σύνολο των σημείων κυμαίνονται από καθόλου έως μέτρια για το Mn, το Ni και το Cr (I_{geo}: 0-2), καθόλου έως πολύ για το Cu (I_{geo}<4) και καθόλου έως πολύ ισχυρή για το Pb και το Zn (I_{geo}: 0-6).

Με δεδομένη την έντονη επιβάρυνση της περιοχής σε βαρέα μέταλλα και τις τιμές των ραδιονουκλιδίων να κινούνται σε φυσικά επίπεδα εξετάστηκαν πιθανές συσχετίσεις μεταξύ των επιμέρους συγκεντρώσεων. Από την συσχέτιση του στοιχειακού Pb και του ισοτόπου ²¹⁰Pb_{ex} παρατηρήθηκε απόκλιση από την αναμενόμενη γραμμική συσχέτιση για τους σταθμούς KER-2, KER-3, X-4 και X-17. (Σχήμα 5.45). Η συμπεριφορά αυτή είναι ενδεικτική της εντατικής ρύπανσης στους σταθμούς αυτούς. Οι αναλογικά χαμηλότερες τιμές του ²¹⁰Pb_{ex} (με χρόνο ημιζωής 22.3 y), που ως επί το πλείστον οφείλονταν σε άμεσες απορρίψεις ανεπεξέργαστων λυμάτων στη θάλασσα (αρσενοπυρίτη και φοσφογύψου) από το εργοστάσιο λιπασμάτων, σταμάτησε το 1979. Από τότε, η δυσανάλογη αύξηση του στοιχειακού Pb σε σχέση το ²¹⁰Pb_{ex}, φανερώνει ότι η προέλευσή του οφείλεται σε παραπροϊόντα πετρελαιοειδών, άρα και σε αυξημένη μόλυνση από ανθρωπογενείς δραστηριότητες σε σχέση με τους υπόλοιπους σταθμούς στην περιοχή μελέτης.



Σχήμα 5.45. Συσχέτιση ενεργότητας ²¹⁰Pb_{ex} και συγκεντρώσεων στοιχειακού Pb στα ιζήματαα του πυθμένα στον πορθμό Σαλαμίνας-Πειραιά. Στη γραμμική προσαρμογή των δεδομένων δεν συμπεριλαμβάνονται τα σημεία KER-2, KER-3, X-4 και X-17.

Ogon aforá touc lógouc twn fusikán radionouklidíwn, an kai me periorismén statistiký akispistí (R²=0.46) paratyrýfyke kalý suscétist metakú ²³²Th kai ⁴⁰K endeiktiký tou adiálutou caraktýra tou Th sto balassinó neró, end kamía symantiký suscétist den paratyrýfyke metakú tou ²³⁸U kai tou ²³²Th ý tou ⁴⁰K.



Σχήμα 5.46. Συσχέτιση ενεργότητα ²⁴⁰K και ²³²Th στα ιζήματαα του πυθμένα στον πορθμό Σαλαμίνας-Πειραιά.

Τέλος, από τις ραδιολογικές μετρήσεις του πυθμένα πραγματοποιήθηκε και ο έμμεσος ιζηματολογικός χαρακτηρισμός της περιοχής, ακλουθώντας την μεθοδολογία που περιγράφηκε και προηγουμένως στην ακτή του Αερολιμένα Θεσσαλονίκης. Από την εφαρμογή της σχέσης (5.2) προσδιορίστηκαν οι τιμές του παράγοντα F. Δεδομένου ότι δεν υπήρχαν διαθέσιμες τιμές του κλάσματος του αργίλου δεν ήτνα δυνατή η απευθείας σύγκριση με τον ιζηματολογικό χαρακτηρισμό της υφής κατά Folk [Folk, 1974]. Από τη σύγκριση των ποσοστών του κλάσματος άμμου και ιλύος των δειγμάτων ιζήματος με τις εκτιμούμενες τιμές του παράγοντα F, προκύπτει ότι αν και ο παράγοντας αποτυγχάνει να εκφράσει την αμμώδη υφή των περισσοτέρων δειγμάτων, καθώς σε όλη την περιοχή η τιμή του F κυμαίνονταν από 7 έως 47 (θετικές τιμές του F θεωρητικά αντιστοιχούν σε τιμές κλάσματος ιλύος >80%), συσχετίζεται αρνητικά με γραμμικό τρόπο με το κλάσμα της άμμου, όπως και αναμένονταν (Σχήμα 5.47).



Σχήμα 5.47. Συσχέτιση του ραδιολογικού παράγοντα F με το ποσοστό της άμμου στα ιζήματα του πυθμένα στον πορθμό Σαλαμίνας-Πειραιά.

Η διαπίστωση αυτή πρακτικά σημαίνει ότι οι τιμές του παράγοντα F δεν πρέπει να ερμηνεύονται μονοσήμαντα αλλά σχετικά, καθώς απαιτείται βαθμονόμηση για διαφορετικά χαρακτηριστικά περιβάλλοντα. Με αυτή την παραδοχή, εκτιμήθηκε η υφή με βάση τις τιμές του παράγοντα F σε όλη την περιοχή μελέτης, εντοπίζοντας την αμμώδη υφή του δυτικού τμήματος σε σχέση με το ανατολικό.



Σχήμα 5.48. Εκτιμούμενη υφή ιζήματος πυθμένα με βάση τον ραδιολογικό παράγοντα F.

Συμπερασματικά, διαπιστώνεται ότι η ραδιολογική χαρτογράφηση του πυθμένα μικρής κλίμακας στην περιοχή του Κόλπου της Θεσσαλονίκης και ευρύτερης στην περιοχή του καναλιού Σαλαμίνας-Πειραιά, έδωσαν σημαντικές πληροφορίες τόσο για τις περιοχές μελέτης κάθε αυτές όσο και ευρύτερα για την συμπεριφορά των ραδιονουκλιδίων σε σχέση με άλλες φυσικοχημικές παραμέτρους. Τα συμπεράσματα της μελέτης και η εφαρμογή της παραπάνω μεθοδολογίας σε συνδυασμό με τις πρόσφατες προσπάθειες για άμεσες in-situ μετρήσεις ραδιονουκλιδίων στο ίζημα μπορούν να αποτελέσουν ένα πολύ χρήσιμο εργαλείο στην εκτίμηση της φυσικής κατάστασης του ιζήματος και τον εντοπισμό ανωμαλιών που συσχετίζονται με φυσικά ή ανθρωπογενή αίτια (π.χ. εκλύσεις τεχνιτών ραδιονουκλιδίων, υποθαλάσσιες εκροές υπογείων υδάτων, αποθέσεις TENORM).

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 6

ΜΟΝΤΕΛΟΠΟΙΗΣΗ ΧΩΡΟΧΡΟΝΙΚΗΣ ΔΙΑΣΠΟΡΑΣ ΡΑΔΙΟΝΟΥΚΛΙΔΙΩΝ

6.1 Πρότυπο ραδιενεργού διασποράς στον Θερμαϊκό Κόλπο

Οι πιθανές προσεγγίσεις για τη διαχείριση του κινδύνου στη ραδιοοικολογία πρέπει να λαμβάνουν υπόψη τις γεωγραφικές και κλιματικές συνθήκες, τον τρόπο διαβίωσης και τις διατροφικές συνήθειες των κατοίκων, καθώς και τα χαρακτηριστικά του οικοσυστήματος. Ένα αποτελεσματικό εργαλείο που μπορεί να συνδυάσει αυτές τις παραμέτρους και να δώσει αξιόπιστες εκτιμήσεις διασποράς ραδιονουκλιδίων και συνεπακόλουθων επιπτώσεων στους έμβιους οργανισμούς είναι η μοντελοποίηση. Εφαρμογές ραδιολογικών μοντέλων έχουν δώσει σημαντικές πληροφορίες για την ευαισθησία διαφορετικών περιβαλλόντων [Hakanson et al., 1996]. Έτσι, η περιβαλλοντική ευαισθησία (Κεφάλαιο 1.1.4) κάθε περιοχής μπορεί να είναι μια επιστημονική παράμετρος στην διαχείριση του περιβάλλοντος και την χάραξη πολιτικής [Howard, 2000; IAEA, 2001].

Για τον εξαρμονισμό στην περιγραφή της ραδιολογικής κατάστασης του περιβάλλοντος μετά από τυχαία ραδιομόλυνση και για την ανάπτυξη μιας κλίμακας ραδιοοικολογικής ευαισθησίας για χρήση στο σχεδιασμό έκτακτων καταστάσεων και ετοιμότητας, ο IAEA διοργάνωσε το πρόγραμμα EMRAS II (Environmental Modelling for Radiation Safety) μεταξύ 2009-2011 [EMRAS II, 2014]. Στο πλαίσιο των εργασιών της ομάδας εργασίας για περιβαλλοντική ευαισθησία (Environmental Sensitivity WG 8), με στόχο να διερευνηθεί ποια περιβάλλοντα, ποια στοιχεία στο κάθε περιβάλλον, και ποιές εποχές του χρόνου είναι πιο ευαίσθητα σε μια σημαντική διασπορά ραδιονουκλιδίων στο περιβάλλον, αναπτύχθηκε το ραδιολογικό μοντέλο του Θερμαϊκού Κόλπου και υλοποιήθηκαν σενάρια ατμοσφαιρικής απόθεσης ραδιονουκλιδίων.

Ο Κόλπος του Θερμαϊκού, που βρίσκεται στο Βόρειο Αιγαίο Πέλαγος, επιλέχθηκε για την προσομοίωση σεναρίων ραδιομόλυνσης με σκοπό τον προσδιορισμό της ριαδιολογικής του ευαισθησίας, δεδομένου ότι είναι ένα τυπικό παράκτιο περιβάλλον της Μεσογείου και τα εξαγόμενα συμπεράσματα μπορούν να έχουν ευρύτερο ενδιαφέρον. Η επιλεγμένη της περιοχής είναι χαρακτηριστική, καθώς αποτελεί την παράκτια ζώνη της Θεσσαλονίκης, το δεύτερο πιο πυκνοκατοικημένο αστικό κέντρο στην Ελλάδας, με σημαντικές καλλιέργειες μυδιών και την μεγαλύτερη αλιευμάτων στη χώρα. Το σενάριο επιφανειακής παραγωγή απόθεσης ραδιονουκλιδίων ενισχύεται από το γεγονός ότι είναι ρεαλιστικό, καθώς δύο πυρηνικά εργοστάσια που λειτουργούν στο Kozloduy (Βουλγαρία) και στη Cernavoda (Ρουμανία) βρίσκονται σε απόσταση 360 και 580 km αντίστοιγα, ενώ ακόμα δύο έχουν προγραμματιστεί να κατασκευαστούν σε γειτονικές χώρες, στο Scutari της Αλβανίας και το Akkuyu της Τουρκίας. Ενδεικτικό είναι το γεγονός ότι οι επιπτώσεις του πυρηνικού ατυχήματος του Chernobyl στην περιοχή ήταν ιδιαίτερα σημαντικές [Petridou et al., 1996], παρόλο ότι ο πυρηνικός αντιδραστήρας βρίσκονταν πολύ πιο μακριά (~1200 km).

Το ραδιολογικό πρότυπο του οικοσυστήματος του Θερμαϊκού Κόλπου, αναπτύχθηκε με βάση το σύστημα υποστήριξης αποφάσεων MOIPA-PLUS, τροποποιημένο κατάλληλα για την εφαρμογή του στο θαλάσσιο περιβάλλον. Η απόδοση του μοντέλου βαθμονομήθηκε, λαμβάνοντας υπόψη τις διαθέσιμες εκτιμήσεις εναπόθεσης και πειραματικές τιμές συγκεντρώσεων ενεργότητας ¹³⁷Cs στο ίζημα, το νερό και τα ψάρια του κόλπο, από τη στιγμή του ατυχήματος του Chernobyl μέχρι τώρα. Κατόπιν υλοποιήθηκαν σενάρια επιφανειακής διασποράς ¹³⁷Cs και ⁹⁰Sr στην περιοχή μελέτης, εκτιμήθηκαν οι συγκεντρώσεις στα βιοτικά και αβιοτικά στοιχεία του συστήματος και υπολογίστηκαν οι δόσεις στον πληθυσμό και στα ψάρια, ενώ τα αποτελέσματα συγκρίθηκαν ως προς την συνάφιά τους με τις εκτιμήσεις και άλλων μοντέλων στη Βόρεια Θάλασσα και ΒΑ Αιγαίο.

6.2 Ανάπτυξη προτύπου

Όπως έχει ήδη αναφερθεί (Κεφάλαιο 1.3.2), ο Θερμαϊκός Κόλπος είναι μια μεγάλη ημίκλειστη σχετικά ρηχή θαλάσσια περιοχή που κλείνεται από τα Ανατολικά έως τα Δυτικά από ξηρά, ενώ στα Νότια είναι ανοικτή προς το Αιγαίο Πέλαγος. Η υδρολογία της περιοχής επηρεάζεται σε μεγάλο βαθμό από την είσοδο υδάτων από τη Μαύρης Θάλασσας και τις εκροές μεγάλων ποταμών που σχετίζονται με ευρείες λεκάνες απορροής. Τα τοπογραφικά χαρακτηριστικά του Βορείου Αιγαίου συμβάλλουν στο σχηματισμό μιας σχετικά μόνιμης αριστερόστροφης κυκλοφορίας των υδάτων και συγκεκριμένων παράκτιων ρευμάτων με μεταβλητή κατεύθυνση μέσα στο χρόνο, με αποτέλεσμα την υψηλή ομογενοποίηση των υδάτινων μαζών σε όλο τον κόλπο [Olson et al., 2007].

Παρά το γεγονός ότι το Βόρειο Αιγαίο είναι ένα ολιγοτροπικό θαλάσσιο οικοσύστημα, είναι μία από τις πιο παραγωγικές περιοχές της Ανατολικής Μεσογείου, κυρίως λόγω της επιρροής από το πλούσιο σε θρεπτικά, χαμηλής αλατότητας, νερό της Μαύρης Θάλασσας και των απορροών των ποταμών. Στην περιοχή κυριαρχούν τα μικρά πελαγικά ψάρια, κυρίως γαύροι (Engraulis encrasicolus) και σαρδέλες (Sardina pilchardus), ενώ σημαντική είναι και η παραγωγικότητα σε ευρωπαϊκό μπακαλιάρο (Merluccius merluccius), μπαρμπούνια (Mullus barbatus), εμπορικές γαρίδες (Parapenaeus longirostris) και κεφαλόποδα (όπως Octopus vulgaris και Eledone spp.) [Tsagarakis et al., 2010]. Επιπλέον, σύμφωνα με τα στοιχεία του Ελληνικού Υπουργείου Γεωργίας, το 2002, ο Θερμαϊκός Κόλπος κατείχε το 70% του συνόλου της ελληνικής παραγωγής των ειδών δίθυρων μαλακίων υδατοκαλλιέργειας, κυρίως μύδια και στρείδια. Η ετήσια παραγωγή αλιευμάτων και μυδιών μέσα στον κόλπο είναι της τάξης των 23 και 10 tones/y, αντίστοιχα, δεδομένου ότι η περίοδος αλιείας διαρκεί σχεδόν όλο το χρόνο (Ιανουάριο - Οκτώβριο).

Στην ακτογραμμή του Θερμαϊκού Κόλπου εδρεύουν πέντε δήμοι. Ο συνολικός αριθμός των κατοίκων, σύμφωνα με την απογραφή του 2001, που ζουν στην ευρύτερη περιοχή είναι 1.589.327, με ηλικιακή κατανομή: (α) από 0-5 ετών, 131.096 άτομα, (β) από 6-15 ετών, 90.281 άτομα και από 15 ετών και πάνω, 1.367.950 άτομα. Η διατροφή και οι ψυχαγωγικές συνήθειες του πληθυσμού είναι τυπικές μεσογειακές και χαρακτηρίζεται από υψηλή κατανάλωση ψαριών (περίπου 16 kg/y ανά άτομο) και θαλάσσιες δραστηριότητες που περιλαμβάνουν αλιεία, ναυσιπλοΐα, κωπηλασία, παράκτιες δραστηριότητες και κολύμπι (της τάξης των 0.3 d/month ανά άτομο).

6.2.1 Μοντελοποίηση περιοχής μελέτης

Για την υλοποίηση του ραδιολογικού προτύπου της περιοχής μελέτης έγινε επιλογή κατάλληλης πλατφόρμας μοντελοποίησης. Αυτές περιλαμβάνουν από επιμέρους αλγόριθμους έως και ολοκληρωμένες εφαρμογές με σκοπό την ανάπτυξη προτύπων που μέσω της προσομοίωσης εκτιμούν τις ραδιολογικές επιπτώσεις πραγματικών και δυνητικών αποθέσεων ραδιονουκλιδίων στο περιβάλλον. Κριτήριο για την επιλογή αποτελεί η αξιοπιστία του, ο βαθμός δηλαδή στον οποίο οι προβλέψεις είναι σε συμφωνία σε σύγκριση με τις μετρούμενες πειραματικές τιμές ή με τις προβλέψεις και άλλων μοντέλων. Για το λόγο αυτό, μια σειρά από προσράμματα αξιολόγησης που πραγματοποιούνται εδώ και αρκετά χρόνια για την, με σκοπό την επικύρωση τέτοιου είδους μοντέλα αναφορικά με την πρόβλεψη της συμπεριφοράς των ραδιονουκλιδίων στο περιβάλλον. Ο ΙΑΕΑ ήδη από την δεκαετία από του 1980 διοργανώνει προγράμματα διεθνών δοκιμών ραδιολογικών μοντέλων, όπου πολλά state-of-the-art μοντέλα έχουν αξιολογηθεί, ιδίως στο πλαίσιο του προγράμματος EMRAS Ι. Μέρος του συγκεκριμένου προγράμματος ήταν η επικύρωση μοντέλων για την πρόβλεψη της συμπεριφοράς των ραδιονουκλιδίων στο περιβάλλον του γλυκού νερού και των παράκτιων περιοχών, με αποτέλεσμα τη δημιουργία λίστας εξειδικευμένων ραδιοοικολογικών μοντέλων [ΙΑΕΑ, 2007b].

Στα πλαίσια της παρούσας εργασίας, εξετάστηκαν λεπτομερώς τα διαθέσιμα περιβαλλοντικά μοντέλα για την επιλογή του πιο κατάλληλου στην προσομοίωση ρηγών παράκτιων θαλάσσιων περιογών. Ο ολοκληρωμένος κώδικας μοντελοποίησης MOIPA-PLUS του Ινστιτούτου ΕΝΕΑ της Ιταλίας, βρέθηκε να είναι ο πλέον κατάλληλος, δεδομένου ότι δίνεται έμφαση στην οικολογία και την διατροφική αλυσίδα των έμβιων οργανισμών της περιοχής μελέτης. Ωστόσο, ορισμένες τροποποιήσεις του κώδικα ήταν απαραίτητες προκειμένου να είναι συμβατές με τις ιδιαιτερότητες του θαλάσσιου περιβάλλοντος, δεδομένου ότι ήταν αρχικά σχεδιασμένος για την εφαρμογή του στα υδάτινα οικοσυστήματα γλυκού νερού. Οι τροποποιήσεις αυτές αναφέρονται σε προσαρμογές των μοντέλων μετανάστευσης των ραδιονουκλιδίων, έτσι ώστε να μπορούν να περιγραφούν τα υδάτινα σώματα που γαρακτηρίζονται από αμφίδρομες ροές ύδατος μεταξύ των διαφόρων τμημάτων τους και από την επιπρόσθετη κυκλοφορία λόγω ρευμάτων, χαρακτηριστική του θαλάσσιου περιβάλλοντος. Με αυτές τις αλλαγές, προσομοιώνεται ουσιαστικά η κίνηση των υδάτινων μαζών μέσα από όλα τα επιμέρους τμήματα και περιλαμβάνονται στην τελευταία έκδοση του MOIPA-PLUS 4.1.2. Η ευρύτερη δομή,

οι απαραίτητες τροποποιήσεις, καθώς και πλήθος εφαρμογών του κώδικα περιγράφονται αναλυτικά σε προηγούμενο κεφάλαιο (Κεφάλαιο 2.3.2).

Το πρότυπο που αναπτύχθηκε αποτελείται από τα κύρια μορφολογικά, υδρολογικά και βασικά περιβαλλοντικά-κοινωνιολογικά χαρακτηριστικά της περιοχής. Τα απαραίτητα δεδομένα μοντελοποίησης προέρχονται από τη βιβλιογραφία, αδημοσίευτα επιστημονικά δεδομένα ή εκτιμώμενες τιμές από υπολογισμούς μοντέλων για τη συγκεκριμένη περιοχή. Για τις παραμέτρους που αφορούν στη συμπεριφορά των ραδιονουκλιδίων στα βιοτικά και αβιοτικά στοιχεία του περιβάλλοντος, επιλέχθηκαν οι προτεινόμενες από τους διεθνείς επιστημονικούς οργανισμούς (ICRP, IAEA, USEPA, WHO κτλ.) μέσες τιμές ή ελαφρώς τροποποιημένες, ώστε να μειωθεί η πολυπλοκότητα και μεγιστοποιηθεί η αποτελεσματικότητα του μοντέλου.

Η περιοχή μελέτης παραμετροποιήθηκε σε 5 τμήματα που αντιπροσωπεύουν τα κύρια ποτάμια που εκβάλουν στον κόλπο (R1-R5) και 5 θαλάσσιες υποπεριοχές (1-5) (Σχήμα 1.14), με βάση τα υδρολογικά χαρακτηριστικά του κόλπου και την παραγωγή ψαριών. Ένα τμήμα χρησιμοποιήθηκε για την προσομοίωση του Κόλπου της Θεσσαλονίκης (υποπεριοχή 1), που παρουσιάζει μικρή κυκλοφορία νερού, σημαντική εισροή υδάτων από το Γαλλικό ποταμό και μηδαμινή παραγωγή ψαριών, δύο για τον εσωτερικό Θερμαϊκό Κόλπο (υποπ. 2 και 4) που χαρακτηρίζεται από μια σχεδόν σταθερή κυκλωνική κυκλοφορία υδάτων, έντονη εισροή γλυκού νερού (υποπ. 4) και σημαντική παραγωγή ψαριών, κυρίως λόγω των καλλιεργειών μυδιών στις εκβολές του Αλιάκμονα και του Αξιού, και δύο για τον εξωτερικό Θερμαϊκό Κόλπο (υποπ. 1 και 5) με την κύρια αλιευτική παραγωγή, το χαρακτηριστικό, σχεδόν αμετάβλητο, αντιωρολογιακό κυκλωνικό ρεύμα και μεγάλη διακύμανση στην ένταση της κυκλοφορίας του νερού λόγω των εισερχόμενων από την Μαύρη Θάλασσα υδάτων.

Για τη μοντελοποίηση της υδρολογίας της περιοχής χρησιμοποιήθηκαν οι μέσες ετήσιες ροές των ποταμών, οι υπολογιζόμενες υπόλοιπες εισροές υδάτων από τις λεκάνες απορροής (υποθαλάσσιες εκροές υπογείων υδάτων, εποχιακοί χείμαρροι, μικρότερα ποτάμια κτλ.), οι τιμές της ποσότητας των κατακρημνίσεων και της εξάτμισης την τελευταία δεκαετία, ενώ υπολογίστηκαν οι μέσες μηνιαίες τιμές των ροών μεταξύ των θαλάσσιων υποπεριοχών έτσι ώστε να προσομοιωθούν η εισροή του νερού της Μαύρης Θάλασσας, οι διαδικασίες κυκλοφορίας και ανάμειξης, και η εκροή υδάτων από τον κόλπο. Όσον αφορά τις σταθερές μετακίνησης των ραδιονουκλιδίων μεταξύ των αβιοτικών στοιχείων (λεκάνες απορροής-στήλη νερούίζημα) του περιβάλλοντος χρησιμοποιήθηκαν οι προεπιλεγμένες τιμές του κώδικα για υποπεριοχές τύπου δεξαμενής υδάτων, ενώ όλες οι υπόλοιπες παράμετροι προέρχονται είτε από συγκεκριμένα στοιχεία για την περιοχή μελέτης είτε από εκτιμήσεις λαμβάνοντας υπόψη τη σχετική βιβλιογραφία [ICRP, 1995; IAEA, 2004].



Σχήμα 6.1. Μοντέλο-κουτιών πέντε ποταμών (R1-R5) και πέντε θαλάσσιων τμημάτων (1-5) του Θερμαϊκού Κόλπου, μέχρι την ισοβαθή γραμμή των 150 m, με την κύρια κυκλοφορία υδάτων.

6.2.2 Δεδομένα εισόδου

Για την υλοποίηση των προσομοιώσεων διασποράς ραδιονουκλιδίων μια σειρά από στοιχεία συλλέχθηκαν, διαχειρίστηκαν, τροποποιήθηκαν ή υπολογίστηκαν, προκειμένου να σχηματίσουν το απαραίτητο σύνολο δεδομένων εισόδου του μοντέλου. Τα στοιχεία αυτά περιλαμβάνουν ωκεανογραφικές, μετεωρολογικές, τοπογραφικές, βιολογικές, υδρολογικές, ραδιολογικές και κοινωνιολογικές πληροφορίες από την περιοχή ενδιαφέροντος. Προέρχονται από την σχετική επιστημονική βιβλιογραφία, εθνικές και διεθνείς βάσεις δεδομένων ανοικτής πρόσβασης (Poseidon-LAS του ΕΛΚΕΘΕ, NESDIS της NOAA, ISCCP D2 της NASA, ERA-Interim Reanalyis της ECMWF), αρχεία εθνικών αρχών (Εθνική Στατιστική Υπηρεσία Ελλάδας, Ελληνικό Υπουργείο Περιβάλλοντος, Ινστιτούτο Γεωλογικών και Μεταλλευτικών Ερευνών) και αδημοσίευτα δεδομένα πειραματικών μετρήσεων ή αποτελέσματα μοντέλων που προσφέρθηκαν, κατόπιν προσωπικής συνεννόησης, από τους ερευνητές του ΕΛΚΕΘΕ.

Τα απαραίτητα από το μοντέλο προσομοίωσης δεδομένα εισόδου για κάθε υποπεριοχή περιλαμβάνουν δύο τύπους δεδομένων:

α) τα περιβαλλοντικά δεδομένα, που συνοπτικά είναι

 - η μορφολογία (μέσο βάθος, πλάτος και μήκος) και η τοπολογία (γεωγραφική θέση, συνολική επιφάνεια και γειτνιάζουσες λεκάνες απορροής) των υποπεριοχών.

- η κλιματολογία (κατακρημνίσεις, εξάτμιση και θερμοκρασία).

- η χημεία του νερού (συγκεντρώσεις Ca και K, ποσοστό αιωρούμενων σωματιδίων, συνολικές συγκεντρώσεις φωσφόρου, pH).

ο τύπος του πυθμένα (όξινος, βασικός, προκάμβριος, ιζηματογενής ή μεταμορφωτικός) και τη σύνθεση του εδάφους (ποσοστό αργίλου, άμμου και μάργες, οργανική σύσταση),

 - η ροή και η κυκλοφορία των υδάτων (μέσες ροές ποταμών, αποστραγγίσεις λεκανών απορροής, εισροές και εκροές υδάτων από και προς την ανοιχτή θάλασσα, ποσοτικές ροές υδάτων λόγω ρευμάτων).

β) τα βιολογικά δεδομένα, που με τις σειρά τους περιλαμβάνουν

 - την πυκνότητα του ανθρώπινου πληθυσμού (όχι των ατόμων ανά νομό) και την ηλικιακή κατανομή τους (0-5, 6-15 και >16 ετών).

- την θαλάσσια διατροφή (κατανάλωση ψαριών) και συνήθειες (χρόνος ναυσιπλοΐας, κωπηλασίας, παραθερισμού, κολύμπι και ψυχαγωγική χρήση της θάλασσας ανά άτομο) του πληθυσμού.

 - την διατροφική ταξινόμηση των ψαριών (θηρευτές, λεία) και την παραγωγή (αλιεία, παραγωγή ιχθυοτροφείων/ καλλιεργειών μυδιών).

Τα μορφολογικά δεδομένα των υποπεριοχών και τα δεδομένα των λεκανών απορροής που αποστραγγίζουν σε κάθε μία από αυτές (Σχήμα 1.15A) εισήχθηκαν στο μοντέλο αφού πρώτα υπολογίστηκαν εξωτερικά με τεχνικές γεωγραφικών πληροφοριακών συστημάτων (Geographic Information Systems) GIS με το πρόγραμμα ArcMAP[®] 10.0 ή ανακτήθηκαν από τη βιβλιογραφία [Poulos et al., 2000]. Οι μηνιαίες εισροές στον κόλπο από τους κυριότερους ποταμούς προσδιορίστηκαν για κάθε υποπεριοχή με βάση πειραματικά βιβλιογραφικά δεδομένα για την περίοδο 1997-1998 (Πίνακας 6.1 και 6.2).

Μήνας		εκροή	νερού (m³/s)		εκροή ιζ	ήματος (g /s)	
ινιηνας	Αξιός	Λουδίας	Αλιάκμονας	Πηνειός	Αξιός	Λουδίας	Αλιάκμονας	Πηνειός
Σεπτέμβριος	38	23	34	10	368	163	200	26
Οκτώβριος	108	17	25	20	30	9	13	14
Νοέμβριος [*]	166	27	29	136	5985	146	324	97500
Δεκέμβριος	223	37	33	252	11939	284	636	195000
Ιανουάριος	174	35	79	65	6651	0	635	500
Φεβρουάριος	150	14	97	62	1390	0	0	1555
Μάρτιος	155	12	32	80	5967	428	388	6214
Απρίλιος	97	40	11	31	4406	888	179	115
Μάιος	85	35	37	58	1203	70	74	1787
Ιούνιος	11	11	10	6	1364	96	282	1708
Ιούλιος	0.5	11	10	12	12	0	184	116
Αύγουστος	1.5	16	17	10	62	352	344	130
Σεπτέμβριος	57	18	22	20	693	118	200	188

Πίνακας 6.1. Μέση μηνιαία εισροή υδάτων και ιζήματος από τους κύριους ποταμούς στον Θερμαϊκό Κόλπο, για την περίοδο Σεπτέμβριος 1997 έως Σεπτέμβριος 1998 (δεδομένα του προγράμματος METROMED, ΕΛΚΕΘΕ) [Kourafalou et al., 2004].

^{*}λόγω έλλειψης στοιχείων για Νοέμβριο, χρησιμοποιήθηκε η μέση τιμή μεταξύ Οκτωβρίου και Δεκεμβρίου.

Στοιχείο	Αξιός	Γαλλικός	Αλιάκμονας	Πηνειός	
Ca (mval/l)	2.7	3.1	1.1	3.1	
Mg (mval/l)	0.8	1	1.3	1.5	
Na (mval/l)	0.8	1.4	0.2	0.3	
K (mval/l)	0.1	0.1	0.1	0.1	
CI (mval/l)	0.4	0.6	0.2	0.3	
SO4 (mg/l)	0.7	0.6	0.3	0.3	
NO3 (mg/l)	4.9	3.7	3.1	4.3	
PO4 (mg/l)	1.6	0.1	0.2	0.3	
SiO2 (mg/l)	10.1	10.3	10.2	13.1	
DO(%)	98.7	114.3	101.9	99.7	
DOC(mg/i)	1.4	2.3	1	1.5	
POC (mg/l)	0.5	0.1	0.5	1.1	
Cu(ppb)	4.8	4	9.3	2.5	
Pb (ppb)	4.5	17	2	18.5	
Ni (ppb)	20		18.3		

Πίνακας 6.2. Μέση βιοχημική σύσταση του νερού των κύριων ποταμών στο Θερμαϊκό κόλπο[Skoulikidis, 2010].

Οι τιμές της μέσης μηνιαίας βροχόπτωσης και εξάτμισης για κάθε υποπεριοχή υπολογίστηκαν από τους κλιματολογικούς χάρτες πρόβλεψης για τα τελευταία 5 χρόνια (Σχήμα 6.2, Πίνακας 6.3, βάσεις δεδομένων ISCCP D2 [NASA, 2014] και ERA-Interim [ECMWF, 2014]).


Σχήμα 6.2. Μέση μηνιαία ατμοσφαιρική θερμοκρασία από 4 μετεωρολογικούς σταθμούς στο Βόρειο Αιγαίο (Εθνική Μετεωρολογική Υπηρεσία) [HNMS, 2014].

Πίνακας 6.3. Μέση μηνιαία βροχόπτωση (mm) από το μετεωρολογικό σταθμό Θεσσαλονίκης για την περίοδο 2002-2008 (Εθνική Μετεωρολογική Υπηρεσία) [HNMS, 2014].

Μήνας	2006	2007	2008	2009	2010
Ιανουάριος	39	4.6	19.2	68.8	10.6
Φεβρουάριος	30.6	15.8	17	4.2	89.8
Μάρτιος	30.4	14.6	10.4	45.4	27.2
Απρίλιος	51	9.4	64.4	17.6	22.2
Μάιος	20.8	53.4	21.8	11.4	40.8
Ιούνιος	0	40.2	12	41	48.6
Ιούλιος	37.4	0	9.6	4.8	45.4
Αύγουστος	5.6	42.8	0	98.6	0
Σεπτέμβριος	42.2	26.4	69.2	14.6	10
Οκτώβριος	58.4	52.8	23.2	28.4	150.4
Νοέμβριος	22.6	40	15.4	24.4	25.2
Δεκέμβριος	24.6	12.8	50.6	91.2	20

Η συνολική εισροή και εκροή υδάτων από και προς την ανοιχτή θάλασσα και η κυκλοφορία του νερού, υπό τη μορφή λόγων ανταλλαγής ροών μεταξύ υποπεριοχών στην εξίσωση ισορροπίας μάζας νερού, μέσα στον κόλπο υπολογίστηκαν με βάση δεδομένα ενός έτους (2008) από το υδροδυναμικό μοντέλο του Αιγαίου Πελάγους του συστήματος Poseidon-LAS του ΕΛΚΕΘΕ [HCMR, 2014b]. Το μοντέλο υπολογίζει το 3D πεδίο ταχυτήτων σε μορφή πλέγματος, επιφανειακής διακριτικής ικανότητας 1/30° και κατακόρυφης ανάλυσης 24 επιπέδων σιγμοειδούς κατανομής που γίνεται λογαριθμική (μεγαλύτερη διακριτική ικανότητα) κοντά στην επιφάνεια και τον

πυθμένα της ταχύτητας 3D πλέγμα πεδίου με μια οριζόντια ανάλυση και 24 στρώσεις σίγμα κατά μήκος του [Korres et al., 2002]. Με βάση το πεδίο ροών αναπτύχθηκε κατάλληλος αλγόριθμος με σκοπό τον υπολογισμό της μέσης μηνιαίας απόλυτης ροής νερού στις συνοριακές επιφάνειες (m³/s m⁻²) μεταξύ των υποπεριοχών (Παράρτημα 6). Κατά συνέπεια, εκτιμήθηκε η μηνιαία ροή υδάτων (m³/month) μεταξύ κάθε υποπεριοχής, καθώς και η ροή νερού από την ανοικτή θάλασσα στον κόλπο και από τον κόλπο στην ανοικτή θάλασσα στις εξωτερικές θαλάσσιες υποπεριοχές (υποπ. 1 και 5, αντίστοιχα).

Οι τιμές της μέσης παραγωγής ψαριών για τα τελευταία 20 χρόνια, συμπεριλαμβάνοντας την παραγωγή από καλλιέργειες μυδιών κοντά στις εκβολές των μεγάλων ποταμών καθώς και όλα τα αλιεύματα (Πίνακας 6.4), κατανεμήθηκαν στις επιμέρους θαλάσσιες υποπεριοχές σύμφωνα με τον όγκο του κάθε διαμερίσματος στα πλαίσια των επιτρεπόμενων περιοχών αλιείας, ενώ οι θαλάσσιοι οργανισμοί με βάση την οικολογική τους συμπεριφορά ταξινομήθηκαν σε δύο βασικές ομάδες (Σχήμα 6.3), τους κινούμενους μεταξύ υποπεριοχών και τους στατικούς. Τελικά, δεδομένου ότι στην περιοχή δεν υπάρχουν μεγάλοι θηρευτές, συμπεριλήφθησαν μόνο δύο ομάδες θαλάσσιων οργανισμών τα ψάρια, ως κινούμενοι θηρευτές και τα μύδια ως στατική λεία.

		Ψάρια				Κεφαλόποδ	α
Βακαλάοι	581.8	Μαρίδες	79.4	Σαρδέλλες	1374.5	Θράψαλα	106.4
Βάτοι	48.7	Μελανούρια	38.5	Σαυρίδια	522	Καλαμάρια	41.9
Βλάχοι	2.9	Μένουλες	24	Σκαθάρια	16.8	Μοσκιοί	34,8
Βραστόψαρα	36.8	Μπαλάδες	26.6	Σκορπιοί	30.8	Σουπιές	762.9
Γαλέοι	17	Μπαρμπούνια	165.9	Σκουμπριά	55.1	Χταπόδια	489.5
Γαύροι	3247.7	Μυλοκόπια	1.7	Σκυλόψαρα	5.5		
Γλώσσες	406.3	Νταούκια	46.9	Σπάροι	119.7	Μαλακόστρα	κα
Γόπες	105.4	Ξιφίες	22.2	Συναγρίδες	25.8	Αστακοί	4
Γοφάρια	41.8	Παλαμίδες	15.7	Σφυρίδες	1.1	Γαρίδες (γάμπαρη)	215.4
Ζαργάνες	33.8	Παπαλίνες	35.5	Τόνοι	42.2	Γαρίδες (λοιπές)	20.9
Καλκάνια	1.1	Πεσκανδρίτσες	161.8	Τσέρουλες	166.2	Καβούρια	33.6
Καπόνια	18.9	Προσφυγάκια	80.4	Τσιπούρες	22	Καραβίδες	31.7
Κέφαλοι	1187.1	Ράσσες	0.9	Φαγγριά	20.1		
Κοκκινόψαρα	9.6	Ροφοί	1.1	Φρίσσες	1530.8	Οστρακοειδ	ή
Κολιοί	375.8	Ρίκια	0	Χάνοι	1.9	Κυδώνια	227.1
Κουτσομούρες	325.8	Ρινόβατοι	5.2	Χέλια	3.7	Μύδια	154.3
Λαυράκια	416.1	Σάλπες	36.4	Χριστόψαρα	16.1	Στρείδια	5.7
Λιθρίνια	34.9	Σαμπανοί	40	Λοιπά	4175.8	Χτένια	4.5
Μαγιάτικα	18.8	Σαργοί	14.4			Λοιπά	169.7

Πίνακας 6.4. Ταξινόμηση της ετήσιας παραγωγής ψαριών (τόνοι) στο Θερμαϊκό Κόλπο για το έτος 2008 (Εθνική Στατιστική Υπηρεσία της Ελλάδα) [NSSG, 2014].



Σχήμα 6.3. Διάγραμμα ροής του Βόρειου Αιγαίουυ οργανωμένο σε 40 λειτουργικές ομάδες ανάλογα με το τροφικό επίπεδο και τον πελαγικό ή βενθοπελαγικό οικότοπο διαβίωσης. Οι σύνδεσμοι δείχνουν ροές >10% για κάθε ομάδα [Tsagarakis, et al., 2010].

Σχετικά με τα πληθυσμιακά δεδομένα, συμπεριλήφθη μια ζώνη επιρροής 30-60 km από την ακτή, σύμφωνα με την μορφολογία της περιοχής και τις εκτιμώμενες συνήθειες διαβίωσης των κατοίκων, ενώ για το χρόνο έκθεσης λόγω της ψυχαγωγικής χρήσης της θάλασσας χρησιμοποιήθηκαν οι προεπιλεγμένες τιμές του MOIPA-PLUS για τις συγκεκριμένες συντεταγμένες, λαμβάνοντας υπόψη την ηλικιακή κατανομή των κατοίκων σε κάθε διαμέρισμα (Πίνακας 6.5).

Πίνακας 6.5. Ηλικιακή κατανομή του πληθυσμού από την απογραφή του 2001 στη Βόρεια Ελλάδα και στο νομό Θεσσαλονίκης (Εθνική Στατιστική Υπηρεσία της Ελλάδα) [NSSG, 2014].

Περιοχή	Σύνολο	0-14 y	15-24 у	25-39 y	40-54 y	55-64 y	65-79 у	>80 y
Θεσσαλονίκη	363987	45387	63450	84584	70665	39660	50004	10237
Βόρεια Ελλάδα	3540691	554609	506833	780882	687181	415953	504044	91189

Οι μέσες τιμές της ρυθμού ιζηματογένεσης προήλθαν από εκτιμήσεις μοντέλων βαθμονομημένων με πειραματικά δεδομένα και από μετρήσεις πεδίου, συμπεριλαμβανομένων και αυτών της παρούσας εργασίας (Κεφάλαιο 5.2.2). Οι συγκεντρώσεις του Ca και K υπολογίστηκε από τον κώδικα μοντελοποίησης με βάση τη μέση τιμή της αλατότητας των υποπεριοχών για περίοδο 10 ετών [NOAA, 2014] και οι συγκεντρώσεις των αιωρούμενων σωματιδίων για κάθε υποπεριοχή προήλθαν επίσης από εκτιμήσεις μοντέλου που βασίζονται σε μετρήσεις πεδίου (Σχήμα 6.4).



Σχήμα 6.4. Εκτιμήσεις μοντέλων της (α) ετήσιας μέσης συγκέντρωσης αιωρούμενων σωματιδίων στην υδάτινη στήλη (μέσο όρος) σε mg /l (επάνω δεξιά), (β) ο ρυθμός ιζηματογένεσης σε mm/10 y (επάνω αριστερά), (γ) επιφανειακή μέση ταχύτητα ροής σε και θερμοκρασία σε °C (κάτω αριστερά) και (δ) μέση αλατότητα σε psu (κάτω δεξιά) για περίοδο προσομοίωσης 1 y [Kourafalou et al., 2004].

⁶Οσον αφορά τους συντελεστές μετανάστευσης και μεταφοράς των ραδιονουκλιδίων που εξετάστηκαν (137 Cs και 90 Sr) στο θαλάσσιο περιβάλλον, καθώς και για τους συντελεστές βιοσυσσώρευσής τους στις διαφορετικές κατηγορίες ψαριών χρησιμοποιήθηκαν οι προτεινόμενες από διεθνείς οργανισμούς (IAEA, ICRP) τιμές.

6.2.3 Βαθμονόμηση προτύπου

Για την επαλήθευση της λειτουργικότητας και τη μεγιστοποίηση της αξιοπιστίας του προτύπου που αναπτύχθηκε, πραγματοποιήθηκε βαθμονόμηση με προσομοίωση της διασποράς ¹³⁷Cs, μετά το ατύχημα του Chernobyl, στα βιοτικά και αβιοτικά στοιχεία του περιβάλλοντος. Για την βαθμονόμηση του μοντέλου, συγκεντρώθηκαν όλα τα διαθέσιμα πειραματικά δεδομένα, από την πριν το Chernobyl εποχή μέχρι και σήμερα, της ενεργότητας ¹³⁷Cs στο νερό, το ίζημα, τα ψάρια και τα μύδια για την ευρύτερη περιοχή του κόλπου (Πίνακας 6.6).

		Ενεργ (Βαίζει	γότητο ά Βα (π	L 31	- '	
Περιοχή δειγματοληψία	ςΧρονολογία	(Bq/kg	ח Bd/r	n°)	Τύπος	Αναφορά
ΡΑ Αυγαίο	100/ 1005	νιεση τιμη	$E \Lambda \alpha \chi$	νιεγ.	νεοό	Eloroy 1996
ΒΑ Αιγαίο	1006 1007	2.7	17.0	2.90 22 E	νερό	10100, 1990
	1900-1907	20.7	17.9 6	25.5 25.4	νερό	
Δυστ Μεσόμειος	1005 1007	20.7	22	55.4 1	νερό	Delfanti et al. 2002
Αναι. Νιεουγειος Κόλπος Θεσσαλουίκος	2005	2.0	5.5 2.7	4	νερό	σειιαιτί ετ αι.,2003
κολπος Θεοσαλονικης	2003	5.0	5.Z	4 E	νερό	παρουσα εργασία
Εζωτ. Θερμαϊκός κολπός	2005	4.4 5 5	5.0	כ כד	νερό	Evangeliou et al 2009
ΒΑ Αιγαίο	2005	5.5 10.2	4.0 9 E	7.5 17.0	νερό	Evangenoù et al., 2009
Κόλπος Θεσσαλουίκος	2000	10.5 E 7	0.5 2 1	14.7	νερό	Elorou et al 2010
κολπος Θεοσαλονικης	2009	5.7	2.1	14.7	νεμο	
ΒΑ Αιγαίο	1984-1985	2.42	2.08	2.76	ίζημα	Florou, 1996
	1986-1987	4.54	2.55	6.53	ίζημα	
	1988-1995	1.88	0.92	2.84	ίζημα	
Εσωτ. Θερμαϊκός Κόλπος	2001	38	34	41	ίζημα	Karagiorgis et al.,
Εξωτ. Θερμαϊκός Κόλπος	2001	20	5	35	ίζημα	2005
Θερμαϊκός Κόλπος	2005	15	5	30	ίζημα	Florou et al., 2011
Κόλπος Θεσσαλονίκης	2005	44.6	0.5	74.3	ίζημα	παρούσα εργασία
Θερμαϊκός Κόλπος	2007	25	5	35	ίζημα	Florou et al., 2011
Ανατ. Θερμαϊκός Κόλπος	2009	10.4	9.3	11.5	ίζημα	παρούσα εργασία
ΒΑ Αιγαίο	1984-1985	0.34	0.27	0.41	ψάρια	Florou, 1996
	1986	10.14	2.69	17.59	ψάρια	
Αιγαίο	1985	0.93	0.31	1.55	ψάρια	Pappuci and Delfanti,
	1987	0.37	0.06	1.24	ψάρια	1996
	1988	0.66	0.31	1.28	ψάρια	
	1989	0.9			ψάρια	
	1990	0.51	0.31	1.13	ψάρια	
ΒΑ Αιγαίο	1987-1995	0.65	0.28	1.02	ψάρια	Florou, 1996
Β Αιγαίο	1984-1985	0.68	0.58	0.78	μύδια	Florou et al., 2002
Αιγαίο	1985	0.63			μύδια	Pappuci and Delfanti, 1996
Β Αιγαίο	1986-1987	7.1	5.3	8.9	μύδια	Florou et al., 2002
Αιγαίο	1987	0.55			μύδια	Pappuci and Delfanti,
	1988	0.53			μύδια	1996
	1989	0.3			μύδια	
Β Αιγαίο	1988-1995	0.46	0.18	0.74	μύδια	Florou et al., 2002
Δυτ. Θερμαϊκός Κόλπος	2000	1.4	1.11	1.69	μύδια	Catsiki and Florou, 200
Θερμαϊκός Κόλπος	1999-2001	0.92	0.24	1.6	μύδια	Florou et al., 2002
Δυτ. Θερμαϊκός Κόλπος	2004 - 2006	0.1	0.07	0.13	μύδια	Thebaultt et al., 2008

Πίνακας 6.6. Πειραματικά δεδομένα της συγκέντρωσης ¹³⁷Cs στο νερό, το ιζήμα, τα ψάρια και τα μύδια από την ευρύτερη περιοχή του Θερμαϊκού Κόλπου.

Στον παραπάνω πίνακα οι συγκεντρώσεις στο νερό αναφέρονται είτε σε επιφανειακές συγκεντρώσεις είτε στον μέσο όρο της υδάτινης στήλης, ενώ αυτές στα ιζήματα αναφέρονται μόνο σε επιφανειακές συγκεντρώσεις ή αν πρόκειται για πυρήνες ιζήματος, στα πρώτα 5 cm. Η χρονική διακύμανση των συγκεντρώσεων ¹³⁷Cs στο νερό του κόλπου επηρεάζεται έντονα από τις υψηλότερες συγκεντρώσεις του νερού της Μαύρης Θάλασσας, που εισρέουν στον κόλπο, αφού προηγουμένως έχουν εισέλθει στο Αιγαίο από τα στενά Δαρδανελίων. Επιπλέον, η οριζόντια διακύμανση των συγκεντρώσεων στα επιφανειακά ιζήματα εξαρτάται σε μεγάλο βαθμό από το βάθος και την γειτνίαση με εκβολές ποταμών. Στις εκβολές των ποταμών παρατηρούνται αυξημένες συγκεντρώσεις λόγω της έκπλυσης του ¹³⁷Cs από τις λεκάνες απορροής, ενώ σε μεγαλύτερα βάθη οι συγκεντρώσεις εμφανίζονται μειωμένες λόγω της μεγάλης διασποράς και διάχυσης του ¹³⁷Cs στην υδάτινη στήλη. Οι διακυμάνσεις των συγκεντρώσεων στην στήλη του ιζήματος μεταξύ διαφορετικών πυρήνων αποδίδεται στους κατά τόπους ρυθμούς ιζηματογένεσης και τα χαρακτηριστικά του εδάφους του βυθού στα σημεία δειγματοληψίας.

Στα πλαίσια της βαθμονόμησης του προτύπου, εκτιμήθηκε και η μέση ετήσια εισροή ¹³⁷Cs στο Θερμαϊκό Κόλπο, από το ατύχημα του Chernobyl και μετά, λόγω της κυκλοφορίας του νερού της Μαύρης Θάλασσας. Η ροή αυτή (Bq/m³ y⁻¹) υπολογίστηκε ως κλάσμα της συνολικής συγκέντρωσης στο νερό της Μαύρης Θάλασσας που εισέρχεται από τα Δαρδανέλλια και κατευθύνεται προς το Βόρειο Αιγαίο [Egorov et al., 1999], με βάση ωκεανογραφικές εκτιμήσεις.



Σχήμα 6.5. Συγκέντρωση ¹³⁷Cs στο νερό της Μαύρης Θάλασσας που εισέρχονται στο Αιγαίο Πέλαγος ως συνάρτηση του χρόνου.

Οι εκτιμώμενες συγκεντρώσεις ¹³⁷Cs στα ανώτερα 50 m των υδάτων που εισέρχονται στο Αιγαίο από τα Δαρδανέλια απεικονίζονται στο Σχήμα 6.5, ενώ ο αντίστοιχος ρυθμός εισροής ¹³⁷Cs μετά από εκθετική προσαρμογή στα πειραματικών δεδομένων, μειώνεται με το χρόνο σύμφωνα με τη σχέση:

$$v = 2.6 \cdot 10^{123} e^{-0.145 \cdot t} \left(R^2 = 0.93 \right) \tag{6.1}$$

όπου ν ταχύτητα εκροής 137 Cs από τη Μαύρη Θάλασσα (0-50 m βάθος) σε TBq/y και t ο χρόνος σε χρονολογία.

Σύμφωνα με τις εκτιμήσεις, η αρχική επίπτωση του ραδιενεργού νέφους ¹³⁷Cs στο νερό του κόλπου και στις λεκάνες απορροής θεωρήθηκε ως ομοιογενής επιφανειακή εναπόθεση 30 kBq/m² [NCSR, 2014]. Επίσης, συμπεριελήφθη πρόσθετη μηνιαία εισροή ¹³⁷Cs, μειούμενη εκθετικά σύμφωνα με την σχέση 6.1, από την ανοιχτή θάλασσα προς τον κόλπο, εξαιτίας της επίδρασης του νερού της Μαύρης Θάλασσας στην υδρολογία της περιοχής. Χρησιμοποιήθηκαν οι προεπιλεγμένες τιμές του κώδικα MOIPA-PLUS για τις παραμέτρους μετανάστευσης του ¹³⁷Cs όπως αναφέρονται στον Πίνακας 6.7, ενώ οι τιμές εισόδου του μοντέλου για τα κύρια μορφολογικά και υδρολογικά χαρακτηριστικά παρατίθενται στον Πίνακα 6.8. Η βαθμονόμηση των αποτελεσμάτων προσομοίωσης του μοντέλου έγινε σε σύγκριση με τα διαθέσιμα εμπειρικά δεδομένα (Πίνακας 6.6) και, κατά συνέπεια, τροποποιήθηκαν κατάλληλα οι τιμές ορισμένων παραμέτρων, εντός καθορισμένων από τη σχετική βιβλιογραφία ορίων (Πίνακας 6.7).

Πίνακας 6.7. Προεπιλεγμένες τιμές συντελεστών μετανάστευσης ραδιονουκλιδίων για υποπεριοχές τύπου δεζαμενής, του μοντέλου MOIPA-PLUS.

Παράμετρος	Μονάδα	¹³⁷ Cs	⁴⁰ Sr
Ταχύτητα μετανάστευσης στο ίζημα (v)	m/s	10 ⁻⁶	3.5·10 ⁻⁷
Ρυθμός μετανάστευσης στο βαθύ ίζημα(K _{ds})	s^{-1}	1.2·10 ⁻⁸	-
Ρυθμός μετανάστευσης από τον πυθμένα (K _{sw})	s ⁻¹	1.5·10 ⁻⁸	1.5·10 ⁻⁸
Γρήγορη αλληλεπίδραση νερού-επιφανιακού ιζήματος (h _Δ)	m	6	0
Συντελεστής μεταφοράς από λεκάνες απορροής (ε)	m⁻¹	0.2	0.2

	, , , , , ,	Μέσο	Μέσο	Μέσο	Μέση	Λεκάνη
Υποπεριοχή	Τοποθεσία	βάθος	μήκος	πλάτος	ροή	απορροής
		(m)	(km)	(km)	(m²/month)	(km²)
R1	Γαλλικός Ποταμός	0.49	65	0.03	$3.09 \cdot 10^{7}$	$9.30E \cdot 10^{2}$
R2	Αξιός Ποταμός	1.29	388	0.08	$2.64 \cdot 10^{8}$	$2.37E \cdot 10^4$
R3	Λουδίας Ποταμός	0.67	130	0.04	$6.10 \cdot 10^7$	1000
R4	Αληάκμονας Ποταμός	0.71	322	0.05	$6.97 \cdot 10^{7}$	$9.25 \cdot 10^{3}$
R5	Πηνειός Ποταμός	1.04	216	0.07	$1.64 \cdot 10^{8}$	$1.08 \cdot 10^{4}$
1	Ανατ. Εξωτ. Θερμαϊκός Κόλπος	72.5	67.3	22.7		750
2	Ανατ. Εσωτ. Θερμαϊκός Κόλπος	16.32	17.4	7.8		30
3	Κόλπος Θεσσαλονίκης	40.37	14.5	19.3		
4	Δυτ. Εσωτ. Θερμαϊκός Κόλπος	31.23	16.4	9.4		
5	Δυτ. Εξωτ. Θερμαϊκός Κόλπος	81.2	67.3	25.6		

Πίνακας 6.8. Κύρια μορφολογικά και υδρολογικά χαρακτηριστικά των υποπεριοχών που περιλαμβάνονται στο ραδιολογικό πρότυπο του Θερμαϊκού Κόλπου.

Αντίστοιχα, στον Πίνακα 6.9 παρουσιάζονται οι βαθμονομημένες τιμές της μέσης ροής ανάμειξης μεταξύ των θαλάσσιων υποπεριοχών, του ρυθμού ιζηματογένεσης και των συντελεστών μεταφοράς και βιοσυσσώρευσης του ¹³⁷Cs στους θαλάσσιους οργανισμούς, ενώ για το ⁹⁰Sr, όπου εμπειρικά δεδομένα δεν ήταν διαθέσιμα για αντίστοιχη βαθμονόμηση, χρησιμοποιήθηκαν οι προεπιλεγμένες τιμές του κώδικα για υποπεριοχές τύπου δεξαμενής.

Πίνακας 6.9. Βαθμονομημένες τιμές παραμέτρων ¹³⁷Cs και προεπιλεγμένες τιμές ⁹⁰Sr, του ραδιολογικού προτύπου του Θερμαϊκού Κόλπου.

Παράμετρος	Μονάδα	Τιμή
Συντελεστής ανάμειξης νερού μεταξύ θαλάσσιων υποπεριοχών	m³/s	10
Ρυθμός ιζηματογένεσης	m/month	3·10 ⁻⁴
Συντελεστής βιοσυσσώρευσης (ψάρια)	kg/m ³	0.1
Συντελεστής βιοσυσσώρευσης (μύδια)	kg/m ³	3·10 ⁻²
Βιολογικός ρυθμός μεταφοράς (ψάρια)	month⁻¹	0.35
Βιολογικός ρυθμός μεταφοράς (μύδια)	month ⁻¹	5.8·10 ⁻²

Στα σχήματα που ακολουθούν (Σχήμα 6.6 έως 6.9) παρουσιάζονται οι προβλεπόμενες συγκεντρώσεις του βαθμονομημένου προτύπου του Θερμαϊκού Κόλπου για καθεμία από τις 5 θαλάσσιες υποπεριοχές, σε σύγκριση με τις εμπειρικές συγκεντρώσεις του ¹³⁷Cs στο νερό, το ίζημα, τα ψάρια και τα μύδια για περίοδο 25 ετών από την αρχική επιφανειακή απόθεση. Οι διακεκομμένες οριζόντιες γραμμές αναφέρονται σε πειραματικά δεδομένα που δεν διευκρινίζεται η ημερομηνία δειγματοληψίας ή αναφέρονται σε χρονοσειρές δεδομένων.



Σχήμα 6.6. Εκτιμήσεις προτύπου για τις συγκεντρώσεις ¹³⁷Cs στο νερό των θαλάσσιων υποπεριοχών για τους μήνες μετά το ατύχημα στο Chernobyl.



Σχήμα 6.7. Εκτιμήσεις προτύπου για τις συγκεντρώσεις ¹³⁷Cs στο ίζημα των θαλάσσιων υποπεριοχών για τους μήνες μετά το ατύχημα στο Chernobyl.



Σχήμα 6.8. Εκτιμήσεις προτύπου για τις συγκεντρώσεις ¹³⁷Cs στα ψάρια των θαλάσσιων υποπεριοχών για τους μήνες μετά το ατύχημα στο Chernobyl..



Σχήμα 6.9. Εκτιμήσεις προτύπου για τις συγκεντρώσεις ¹³⁷Cs στα μύδια των θαλάσσιων υποπεριοχών για τους μήνες μετά το ατύχημα στο Chernobyl.

Δεδομένης της πολυπλοκότητας του περιβάλλοντος, τους περιορισμούς στην μοντελοποίηση και τις απλουστεύσεις του προτύπου, τις αβεβαιότητες των μετρήσεων, τη χωρική διασπορά και τις συνθήκες δειγματοληψίας, τα αποτελέσματα κρίνονται ικανοποιητικά, με τις αποκλίσεις από τις αναμενόμενες τιμές μικρότερες από μία τάξη μεγέθους. Εξαίρεση είναι η προβλεπόμενη συγκέντρωση στα ιζήματα, όπου οι μεγαλύτερες αποκλίσεις αποδίδονται στο γεγονός ότι τα χαρακτηριστικά των ιζημάτων στις παράκτιες περιοχές και τα βαθιά ύδατα είναι εντελώς διαφορετικά (ρυθμός ιζηματογένεσης, χημική σύσταση, κοκκομετρικά χαρακτηριστικά, σύνθεση, ρυθμός εναπόθεσης ραδιονουκλιδίων κλπ.) και δεν μπορούν να ενσωματωθούν σε μία ενιαία υποπεριοχή. Παρ' όλα αυτά, οι πραγματικές συγκεντρώσεις των ιζημάτων είναι πρακτικά αδιάφορες, όσον αφορά τους στόχους της υλοποίησης του μοντέλου.

6.3 Προσομοιώσεις διασποράς ¹³⁷Cs και ⁹⁰Sr

Μετά την βαθμονόμηση του μοντέλου, πραγματοποιήθηκαν προσομοιώσεις σεναρίων ραδιομόλυνσης λόγω επιφανειακής απόθεσης ραδιενεργού νέφους, στο πλαίσιο της ανάλυσης της ραδιολογικής περιβαλλοντικής ευαισθησίας του Θερμαϊκού Κόλπου. Μια ομοιόμορφη και ενιαία, στιγμιαία εναπόθεση 1000 Bq/m² ¹³⁷Cs και ⁹⁰Sr, θεωρήθηκε ως αρχική συνθήκη της ραδιενεργού επιβάρυνσης για την περιοχή μελέτης. Η αρχική επιφανειακή απόθεση των ραδιονουκλιδίων του ραδιενεργού νέφους, προσομοιώθηκε ως μια σταθερού ρυθμού εναπόθεση για διάστημα 1 μήνα για όλα τα στοιχεία της περιοχής μελέτης (λεκάνες απορροής, θαλάσσιες και ποτάμιες υποπεριοχές), λόγω περιορισμών του κώδικα μοντελοποίησης. Για την επίπτωση της διασποράς ραδιονουκλιδίων στους έμβιους οργανισμούς, μόνο το θαλάσσιο υδάτινο περιβάλλον λήφθηκε υπόψη στην ανάλυση,

με βάση τα πρόσθετα κοινωνικά και περιβαλλοντικά, στοιχεία που επίσης συμπεριλήφθησαν στο μοντέλο. Η ηλικιακή ταξινόμηση του πληθυσμού και η χωρική κατανομή κατά μήκος της ακτής, καθώς και η μέση παραγωγή σε ψάρια και μύδια της περιοχής μελέτης φαίνονται στο Πίνακα 6.10.

Θαλάσσια	Πληθ	υσμός (κάτ	τοικοι)	Παραγωγή (kg/y)		
υποπεριοχή	0-5y	6-15y	>16y	ψάρια	μύδια	
1	5224	3527	55860	10116901		
2	3083	2062	31141	247713		
3	76043	53391	812982	217342		
4	14429	9594	147443	422918	6551750	
5	32317	21707	320524	12243426	3527865	

Πίνακας 6.10. Ηλικιακή κατανομή του ανθρώπινου πληθυσμού για τους δήμους γύρω από το Θερμαϊκό Κόλπο και η παραγωγικότητα σε ψάρια και σε μύδια, σε κάθε θαλάσσιο διαμέρισμα.

Κατόπιν, προσομοιώθηκε η χρονική εξέλιξη των συγκεντρώσεων στο νερό της θάλασσας, τα ιζήματα του θαλάσσιου βυθού, τα ψάρια και τα μύδια, σε κάθε υποπεριοχή. Με βάση αυτά τα εκτιμούμενα δεδομένα, κατόπιν υπολογίστηκαν οι απορροφούμενες δόσεις για τις τρεις διαφορετικές ηλικιακές ομάδες του πληθυσμού (0-5, 6-15 και >16 ετών) κατά το 1°, 2° και 10° έτος, μετά την διασπορά των ραδιονουκλιδίων, υποθέτοντας ότι ολόκληρη η πρόσληψη τροφής τους από το θαλάσσιο περιβάλλον προέρχεται από την περιοχή μελέτης.

6.3.1 Εκτίμηση επιπτώσεων ραδιολογικής επιβάρυνσης

Η εξέλιξη του συλλογικού ρυθμούς δόσης πληθυσμού για το ¹³⁷Cs και το ⁹⁰Sr όπως προκύπτουν από την εφαρμογή του μοντέλου απεικονίζεται στο Σχήμα 6.10, με την διάκριση της επιμέρους συμμετοχής από εξωτερική και εσωτερική έκθεση λόγω δραστηριοτήτων αναψυχής και κατανάλωσης θαλάσσιων οργανισμών (ψάρια και μύδια), αντίστοιχα. Στο Σχήμα 6.11 απεικονίζεται η σωρευτική εξέλιξη της συνολικής δόσης αντιπροσωπευτικού ατόμου του πληθυσμού για διαφορετικές ηλικιακές ομάδες, ενώ αντίστοιχα στο Σχήμα 6.12 φαίνεται ο προβλεπόμενος μέγιστος ρυθμός δόσης για τα ψάρια. Στον Πίνακας 6.11 παρουσιάζονται τα αποτελέσματα της αναφέρθηκαν προηγουμένως, ως το μέτρο των προβλεπόμενων επιπτώσεων (δηλαδή, εν προκειμένω η δόση και ο ρυθμός δόσης) διαιρούμενο με την αρχική επιβάρυνση στο περιβάλλον, που είναι η εναπόθεση 1000 Bq/m² ¹³⁷Cs ή ⁹⁰Sr. Προφανώς σε περίπτωση συνδυαστικού σεναρίου ταυτόχρονης διασποράς ραδιονουκλιδίων τα αποτελέσματα απλά αθροίζονται.



Σχήμα 6.10. Συλλογικοί ρυθμοί δόση, για τα χρόνια μετά την ραδιενεργό διασπορά λόγω του θαλάσσιου περιβάλλοντος.



Σχήμα 6.11. Συνολικές συσωρευτικές δόσεις σε διαφορετικές ηλικιακές ομάδες του πληθυσμού για ραδιομόλυνση από ¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr ως προς το χρόνο.



Σχήμα 6.12. Μέγιστος ρυθμός δόσης στα ψάρια ως προς το χρόνο. Πίνακας 6.11. Ανάλυση περιβαλλοντικής ευαισθησίας για το¹³⁷Cs και το 90 Sr.

			Ει	επίδρασης/1000 Bq/m²				
Μέτρο επίδρασης	Μονάδα Ηλ	λικία		¹³⁷ Cs			⁹⁰ Sr	
		(y)	1 [°] χρόνο	2 [°] χρόνο	10 [°] χρόνο	1 [°] χρόνο	2 [°] χρόνο	10 [°] χρόνο
Μέγιστη δόση (αντιπρ/τικό άτομο)	mSv/y		7.23·10 ⁻⁷	2.02·10 ⁻⁷	8.84·10 ⁻⁹	8.76·10 ⁻⁶	4.62·10 ⁻⁶	1.85·10 ⁻⁶
Συνολική δόση πληθυσμού	mSv/y		5.76·10 ⁻⁵	1.92·10 ⁻⁵	9.96·10 ⁻⁷	2.62·10 ⁻⁵	4.08·10 ⁻⁵	2.91·10 ⁻⁵
Εξωτερική δόση	mSv/y		1.42·10 ⁻⁵	4.38·10 ⁻⁶	2.74·10 ⁻⁷	4.49·10 ⁻⁶	4.54·10 ⁻⁶	2.06·10 ⁻⁶
Εσωτερική δόση (κατανάλωση ψαριού)	mSv/y)		4.33·10 ⁻⁵	1.48·10 ⁻⁵	7.22·10 ⁻⁷	2.17·10 ⁻⁵	3.64·10 ⁻⁵	2.71·10 ⁻⁵
Μέγιστη δόση στα ψάρια	mGy/y		3.83·10 ⁻⁶	2.41·10 ⁻⁶	7.49·10 ⁻⁷	1.72·10 ⁻⁶	2.45·10 ⁻⁶	1.69·10 ⁻⁶
Συνολική δόση	Sv/y (0-5	7.39·10 ⁻¹¹	5.10.10 ⁻¹¹	1.36.10 ⁻¹¹	5.98·10 ⁻¹¹	1.15·10 ⁻¹⁰	1.08·10 ⁻¹⁰
(αντιπρ/τικό άτομο)	5	5-15	1.85·10 ⁻¹⁰	1.25·10 ⁻¹⁰	3.41·10 ⁻¹¹	1.26.10-10	$2.43 \cdot 10^{-10}$	$2.15 \cdot 10^{-10}$
	>	>16	3.32·10 ⁻¹⁰	2.29·10 ⁻¹⁰	5.88·10 ⁻¹¹	$1.56 \cdot 10^{-10}$	$2.54 \cdot 10^{-10}$	1.87·10 ⁻¹⁰

Η ανάλυση των αποτελεσμάτων του σεναρίου εναπόθεσης ραδιονουκλιδίων έδειξε ότι η κύρια συμβολή στη συνολική συλλογική δόση για τον πληθυσμό είναι η πρόσληψη ψαριών για τους ενήλικες. Οι παράγοντες περιβαλλοντικής ευαισθησίας ⁹⁰Sr και ¹³⁷Cs είναι της ίδιας τάξης μεγέθους (Πίνακας 6.11). Κατά το πρώτο έτος η τιμή για το ¹³⁷Cs είναι ελαφρώς αυξημένη, σε σύγκριση με αυτή του ⁹⁰Sr. Ωστόσο, με την πάροδο του χρόνου η επίδραση της ρύπανσης από το ⁹⁰Sr καθίσταται πιο σημαντική, καθώς ο ρυθμός δόσης αυξάνεται αισθητά σε αντίθεση με τον ρυθμό δόσης λόγω του ¹³⁷Cs όπου μειώνεται αργά με το χρόνο. Η κυρίαρχη επίδραση του ⁹⁰Sr, από άποψη περιβαλλοντικής ευαισθησίας, φαίνεται επίσης και στη μέγιστη δόση για αντιπροσωπευτικό άτομο του πληθυσμού, όπου οι τιμές για τα δύο ραδιονουκλίδια είναι της ίδιας τάξης μεγέθους το 1° χρόνια, αλλά μετά από μία δεκαετία, η διαφορά είναι σημαντικά μεγαλύτερη (3 τάξεις μεγέθους).

Η εξωτερική δόση, που οφείλεται στη συγκέντρωση των ραδιονουκλιδίων στο νερό και στα παράκτια ιζήματα, μειώνεται αργά για το ¹³⁷Cs, ενώ είναι σχεδόν σταθερή στο χρόνο για το ⁹⁰Sr. Η τάση αυτή μπορεί να εξηγηθεί από το γεγονός ότι η συμβολή του ⁹⁰Sr από τις λεκάνες απορροής των ποταμών που εκβάλλουν στον κόλπο είναι υψηλότερη από ότι για το ¹³⁷Cs. Η δόση από την κατανάλωση ψαριών, που αντιστοιχεί στη συγκέντρωση των ραδιονουκλιδίων στα ψάρια, μπορεί να εξηγηθεί από τη μακροπρόθεσμη συσσώρευση του ⁹⁰Sr στα οστά των ψαριών σε σχέση με τη γρήγορη συγκέντρωση του ¹³⁷Cs στη σάρκα των ψαριών [IAEA, 2004]. Η υψηλή περιεκτικότητα σε κάλιο και η επακόλουθη χαμηλή τιμή του συντελεστή βιοσυσσώρευσης οδηγεί σε χαμηλά επίπεδα συγκεντρώσεων ¹³⁷Cs στα ψάρια, ενώ τα σταθερά επίπεδα συσσώρευσης για το ⁹⁰Sr δείχνουν μεγαλύτερη ευαισθησία σε μακροπρόθεσμη βάση.

Διαφορετικές μετεωρολογικές συνθήκες είχαν αμελητέα επίδραση στις προβλέψεις του μοντέλου, με αποτέλεσμα η εποχικότητα να μην περιλαμβάνεται στην ανάλυση. Η εποχιακή συμπεριφορά των ραδιονουκλιδίων οφείλεται κυρίως στη θερμική διαστρωμάτωση της στήλης του νερού. Λόγω του ρηχού βάθους του νερού και του υψηλού ποσοστού ανάμειξης στη διάρκεια όλου του έτους, το θερμοκλινές της υδάτινης στήλης στον κόλπο είναι σχεδόν ομοιόμορφο και σταθερό. Έτσι, οι θηρευτές (πελαγικά ψάρια) της περιοχής κινούνται αναγκαστικά στο σύνολο της στήλης του νερού και εποχιακές διαφορές στις συγκεντρώσεις των ραδιονουκλιδίων δεν είναι εμφανή στη ραδιομόλυνση των ψαριών. Το γεγονός αυτό αποτυπώνεται ξεκάθαρα στην εξέλιξη του μέγιστου ρυθμού δόσης στα ψάρια, που αυξάνεται σταθερά με το χρόνο και για τα δύο ραδιονουκλίδια (Σχήμα 6.12).

Επιπλέον, είναι σημαντικό να σημειωθεί ότι και στα δύο σενάρια ραδιομόλυνσης όλες οι υπόλοιπες οδοί πρόσληψης ραδιονουκλιδίων εκτός από το θαλάσσιο περιβάλλον, έχουν αποκλειστεί. Οι επίδραση από άλλες περιβαλλοντικές οδούς αναμένεται να είναι πολύ πιο σημαντική, όχι μόνο λόγω των άμεσων χερσαίων οδών (κατανάλωση τροφίμων και εξωτερική ακτινοβόληση από το έδαφος), αλλά και από την μακροπρόθεσμη επίδραση των υδρόβιων οδών γλυκού νερού (κατανάλωση πόσιμου νερού και άρδευση), λόγω της γεωργικής παραγωγής στις μεγάλης έκτασης λεκάνες απορροής της περιοχής.

6.3.2 Αβεβαιότητα και ευαισθησία προτύπου

Η ραδιολογική ανάλυση περιλαμβάνει μόνο τη ραδιολογική επίδραση από τη θαλάσσια οδό (κατανάλωση ψαριών και μυδιών και εξωτερική ακτινοβολία από τη θάλασσα), από την άποψη του ρυθμού δόσης σε ζώντες οργανισμούς όσον αφορά μια αρχική ακαριαία εναπόθεση ραδιονουκλιδίων για το 1°, το 2° και το 10° έτος μετά την ραδιομόλυνση. Ειδικότερα, η ανάλυση εστιάζεται στην συνολική συλλογική δόση, η οποία είναι το άθροισμα της εξωτερικής δόσης και της δόσης για τη θαλάσσιο πρόσληψη τροφής για το σύνολο του πληθυσμού. Αυτές οι δύο δόσεις άμεσα και αποκλειστικά, στα πλαίσια της μοντελοποίησης, σχετίζονται με τη συγκέντρωση των ραδιονουκλιδίων στο νερό και στα ψάρια, που υπό αυτή την έννοια θα πρέπει να ερμηνευθούν και ως οι δείκτες αβεβαιότητας για τις συνιστώσες αυτές. Επιπλέον, η συνολική δόση σε διαφορετικές ομάδες του πληθυσμού (βρέφη, παιδιά και ενήλικες), οι μέγιστες δόσεις σε αντιπροσωπευτικό άτομο και στα ψάρια συνυπολογίζονται επίσης κατά την ανάλυση της αβεβαιότητας.

Η αβεβαιότητα στο τελικό αποτέλεσμα οφείλεται κυρίως στην επιλογή των παράμετροι μεταφοράς των ραδιονουκλιδίων. Από τη βαθμονόμηση του μοντέλου, η αβεβαιότητα για το ¹³⁷Cs θεωρείται ότι είναι λιγότερο από μία τάξη μεγέθους σε όλους τους υπολογισμούς, ενώ για ⁹⁰Sr αναμένεται η τιμή να είναι μεγαλύτερη από μία τάξη για την εκτίμηση των συγκεντρώσεων στο νερού και ακόμη μεγαλύτερη για τις συγκεντρώσεις ραδιενέργειας στα ψάρια και στα μύδια, γεγονός που οφείλεται στην διάδοση των σφαλμάτων από τους υπολογισμούς του μοντέλου και την πρόσθετη αβεβαιότητα που προκαλείται από τους παράγοντες της βιοσυσσώρευσης. Επιπλέον, οι περιβαλλοντικές συνθήκες έχουν σημαντικές επιπτώσεις στην αξιοπιστία των αποτελεσμάτων. Η παραδογή στάσιμου ετήσιου υδρολογικού κύκλου κυκλοφορίας του νερού ενισχύει ιδιαίτερα την αβεβαιότητα στις συγκεντρώσεις ραδιονουκλιδίων στο νερό σε μακροπρόθεσμη βάση, ενώ αυτό ενισχύεται περαιτέρω από το γεγονός ότι η υδρολογία του παράκτιου θαλάσσιου περιβάλλοντος είναι έντονα δυναμική και απρόβλεπτη. Αντίθετα, οι διαδικασίες καθίζησης έχουν αμελητέα επίδραση στις τελικές δόσεις, ακόμη και αν οι συγκεντρώσεις των ιζημάτων μπορούν να έχουν την μεγαλύτερη αβεβαιότητα στις προβλέψεις του μοντέλου.

6.3.3 Σύγκριση μοντέλων προσομοίωσης

Για να είναι έγκυρη η συνέπεια των εκτιμήσεων του μοντέλου, τα αποτελέσματα συγκρίθηκαν με ανάλογες εκτιμήσεις των δύο μοντέλων που εφαρμόστηκαν σε διάφορες παράκτιες θαλάσσιες περιοχές στα πλαίσιο του προγράμματος EMRAS II το, επίσης, box-model NRPA [Iosjpe et al, 2002] που έχει χρησιμοποιηθεί σε μοντελοποιήσεις πολλών παράκτιων περιοχών της Βόρειας Θάλασσας και το υδροδυναμικό μοντέλο NTUA 3D [Psaltaki et al., 2010] που εφαρμόστηκε στο BA Αιγαίο.

Όπως παρουσιάζεται και στο Σχήμα 6.13, τα αποτελέσματα της δόσης από το ¹³⁷Cs και ⁹⁰Sr σε ένα αντιπροσωπευτικό άτομο του πληθυσμού μετά το 1° έτος της στιγμιαίας απόθεσης 1000 Bq/m² είναι της ίδιας τάξης μεγέθους για ¹³⁷Cs, υποδηλώνοντας ικανοποιητική συμφωνία μεταξύ των μοντέλων. Στην περίπτωση του ⁹⁰Sr, όπου η δόση είναι μία τάξη μεγέθους μεγαλύτερη στο Θερμαϊκό κόλπο σε σύγκριση με τις Βόρειες Θάλασσες, η διαφορά μπορεί να αποδοθεί στη μεγάλη ποσότητα νερού από τους ποταμούς που λαμβάνει ο Θερμαϊκός Κόλπος και στη προσέγγιση μοντελοποίησης του κώδικα MOIPA-PLUS που επιτρέπει την είσοδο ⁹⁰Sr από τις λεκάνες απορροής των ποταμών.



Σχήμα 6.13. Σύγκριση της δόσης (μSv) σε αντιπροσωπευτικό άτομο μετά το 1° έτος κοινής στιγμιαίας επιφανειακής εναπόθεσης ραδιονουκλιδίων (1000 Bq/m²), όπως εκτιμάται από τρία διαφορετικά μοντέλα σε παράκτιες περιοχές στη Βόρεια Θάλασσα (NRPA Box-model), στο BA Αιγαίο (NTUA 3D) και στον Θερμαϊκό Κόλπο (MOIPA-PLUS).

Παράλληλα, στα πλαίσια των τελικών αποτελεσμάτων του προγράμματος EMRAS II, κατέστη δυνατό να συγκριθούν τα αποτελέσματα της προσομοίωσης για το ¹³⁷Cs και με αντίστοιχα σενάρια διασποράς σε διαφορετικά περιβάλλοντα (Σχήμα 6.14), έτσι ώστε να μπορεί να χρησιμεύσει ως μια καλή ένδειξη της διαφορετικής περιβαλλοντικής ευαισθησίας [IAEA, 2014].



Σχήμα 6.14. Παγκόσμια διασπορά των περιοχών και λεπτομερής χάρτης των Ευρωπαϊκών τοποθεσιών που πραγματοποιήθηκαν προσομοιώσεις ραδιολομόλυνσης στα πλαίσια του προγράμματος περιβαλλοντικής ευαισθησίας EMRAS ΙΙ της IAEA.

Στο Σχήμα 6.15 παρουσιάζονται οι δόσεις στους ενήλικες από ¹³⁷Cs κατά τη διάρκεια του πρώτου έτους μετά από επιφανειακή διασπορά 1000 Bq/m², τοποθετημένες σε σειρά μειούμενης τιμής για κάθε σενάριο. Αν και υπάρχουν κάποιες διακυμάνσεις, η τάση είναι υψηλότερες τιμές για τα γεωργικά περιβάλλοντα, ακολουθείται από τα δασικά περιβάλλοντα που είναι στο ίδιο επίπεδο και με το περιβάλλον της τούνδρας, κατόπιν από τα λιμναία περιβάλλοντα, με τις χαμηλότερες δόσεις ¹³⁷Cs να παρατηρούνται στο παράκτιο θαλάσσιο περιβάλλον.



Σχήμα 6.15. Σύγκριση των δόσεων (μSv) σε ενήλικες μεταξύ διαφορετικών οικοσυστημάτων μετά τον πρώτο χρόνο επιφανιακής εναπόθεσης 1000 Bq/m^{2 137}Cs [Tracy et al., 2013].

Οι δόσεις ¹³⁷Cs στα παράκτια θαλάσσια περιβάλλοντα είναι γενικά πολύ γαμηλότερες σε σύγκριση με άλλα σενάρια. Αυτό μπορεί να αποδοθεί στο μεγαλύτερο βάθος του νερού και στο βαθμό ανάμειξης από τα θαλάσσια ρεύματα. Αυτό ενισχύεται από το γεγονός ότι τόσο το 137 Cs όσο και το 90 Sr εμφανίζουν υψηλότερες δόσεις στις θαλάσσιες περιοχές Ob Bay και Gulf of Riga με το μικρότερο βάθος (με εξαίρεση τον Κόλπο του Θερμαϊκού για την περίπτωση του ⁹⁰Sr για λόγους που εξηγήθηκαν νωρίτερα). Αξίζει επιπλέον να σημειωθεί ότι στα πλαίσια της διερεύνησης της περιβαλλοντικής ευαισθησίας των παράκτιων θαλάσσιων περιοχών από τα αποτελέσματα μοντελοποίησης στις Βόρειες Θάλασσες (μοντέλο NRPA) βρέθηκε ότι οι εκτιμούμενες δόσεις, μετά από ένα χρόνο της διασποράς ¹³¹Ι και ²³⁹Pu, είναι της ίδιας τάξης μεγέθους με το 137 Cs και 90 Sr για το 131 I και σχεδόν 2 τάξεις για το ²³⁹Pu [Tracy et al., 2013]. Το ¹³¹I αν και έχει πολύ μικρό χρόνο ημιζωής ($T_{1/2}$ =8.05 d), η επίδρασή του στο θαλάσσιο περιβάλλον γίνεται ιδιαίτερα σημαντική λόγω της ενισχυμένης πρόσληψης του από τα φύκια, ενώ αντίστοιχα οι ιδιαίτερα αυξημένες δόσεις του ²³⁹Pu μπορούν να αποδοθούν στην αυξημένη πρόσληψή του από τα μαλάκια, ιδιαίτερα από αυτά του γλυκού νερού [ΙΑΕΑ, 2010].

Εν κατακλείδι, από τα συνολικά αποτελέσματα μπορεί να εξαχθεί το συμπέρασμα ότι το ραδολογικό πρότυπο που αναπτύχθηκε είναι συνεπές και αξιόπιστο για την πρόβλεψη της διασποράς του ¹³⁷Cs και του ⁹⁰Sr στο θαλάσσιο περιβάλλον του Θερμαϊκού Κόλπου. Αποτελεί ένα χρήσιμο εργαλείο για ρεαλιστικές εκτιμήσεις των συγκεντρώσεων των ραδιονουκλιδίων στο χώρο και στο χρόνο, καθώς και των δόσεων στο ανθρώπινο πληθυσμό και τα ψάρια, μετά από ατμοσφαιρικές αποθέσεις ή εκλύσεις (ποτάμια, λεκάνες απορροής θαλάσσια ρεύματα) ραδιενεργών.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 7

ΣΥΜΠΕΡΑΣΜΑΤΑ ΚΑΙ ΠΡΟΟΠΤΙΚΕΣ

Σκοπός της διδακτορικής διατριβής ήταν η παρογή αξιόπιστων δεδομένων ραδιολογικών μετρήσεων στο υδάτινο περιβάλλον, η αξιοποίησή τους ως ραδιοϊχνηθέτες για τον χαρακτηρισμό υδάτινων περιοχών και η εκτίμηση της διασποράς των ραδιονουκλιδίων στο χώρο και το χρόνο. Σε αυτά τα πλαίσια, αναπτύχθηκε ολοκληρωμένη μεθοδολογία που περιλαμβάνει ραδιολογικές μετρήσεις δειγμάτων ιζήματος και νερού, μελέτη του κατακόρυφου προφίλ διασποράς ραδιονουκλιδίων στη στήλη νερού και ιζήματος, επιφανειακή ραδιολογική χαρτογράφηση του πυθμένα θαλάσσιων περιοχών και μοντελοποίηση της χωροχρονικής διασποράς ραδιονουκλιδίων για την εκτίμηση των ραδιοοικολογικών επιπτώσεων στο περιβάλλον και τον άνθρωπο. Η πλήρης μεθοδολογία υλοποιήθηκε ενδεικτικά στο Θερμαϊκό Κόλπο περιλαμβάνοντας μετρήσεις υποβάθρου (νερό και ίζημα), ραδιολογική εκτίμηση περιβαλλοντικών χαρακτηριστικών (χρόνος παραμονής υδάτων και ρυθμού ιζηματογένεσης), ερμηνεία και συσχέτιση ραδιολογικών (φυσικοχημικά χαρακτηριστικά και τοπολογία), συγκεντρώσεων ανάπτυξη ραδιολογικού προτύπου (για ¹³⁷Cs και ⁹⁰Sr) και αξιολόγηση των αποτελεσμάτων της μοντελοποίησης με βάση επιστημονικά και κοινωνικά κριτήρια, ενώ οι πειραματικές μετρήσεις στο σύνολό τους παρέχουν σύγχρονα ποιοτικά δεδομένα σε ένα σύνολο περιοχών ενδιαφέροντος στη ΒΑ Μεσόγειο.

Συγκεκριμένα, στα πλαίσια της διδακτορικής διατριβής πραγματοποιήθηκαν:

 πλήρης βιβλιογραφική ανασκόπηση σχετικά με τις φαινομενολογικές προσεγγίσεις της διασποράς των ραδιονουκλιδίων και των πειραματικών μεθόδων φασματοσκοπίας-γ στο υδάτινο περιβάλλον.

 εφαρμογή και βελτιστοποίηση ολοκληρωμένης μεθοδολογίας φασματοσκοπίας-γ περιβαλλοντικών δειγμάτων που περιλαμβάνει δειγματοποίηση (ιζήματος και προσυγκέτρωση ¹³⁷Cs στο νερό), παραγωγή πηγών αναφοράς (¹⁵²Eu/¹⁵⁴Eu και ⁴⁰K), βαθμονομήσεις και προσομοιώσεις (γεωμετρίες ιζήματος και νερού), πειραματικές και θεωρητικές διορθώσεις (πραγματική συμπτωτική άθροιση φωτοκορυφών και ενδοαπορρόφηση), φασματοσκοπία (τεχνικές ανάλυσης και διορθώσεις) και σύγκριση διαφορετικών ανιχνευτικών διατάξεων (μελέτη υποβάθρου και προσδιορισμός MDA).

μετρήσεις ενεργότητας ¹³⁷Cs με εργαστηριακές και επιτόπιες/καταγραφικές μεθόδους στην υδάτινη στήλη αντιπροσωπευτικών θαλάσσιων περιοχών του Αιγαίου σε συνδυασμό με μετρήσεις αλατότητας και θερμοκρασίας, για τον προσδιορισμό της χωρικής και χρονικής εξέλιξης των συγκεντρώσεων (με βάση βιβλιογραφικά δεδομένα), τον προσδιορισμό του οικολογικού χρόνου παραμονής του ¹³⁷Cs στο νερό (Θερμαϊκό Κόλπο) και την ωκεανογραφική ερμηνεία των αποτελεσμάτων (ταυτοποίηση θαλάσσιων μαζών).

 προσδιορισμός της κατακόρυφης διασποράς των φυσικών ραδιονουκλιδίων (NORM) και ραδιονουκλιδίων επιφανειακής εναπόθεσης (FRN) σε πυρήνες ιζήματος από διαφορετικά αντιπροσωπευτικά περιβάλλοντα της BA Μεσογείου για την γεωλογική εκτίμηση του ρυθμού ιζηματογένεσης (τεχνικές ραδιοχρονολόγησης), τον υπολογισμό της συνολικής εναπόθεσης ραδιονουκλιδίων κατακρήμνισης (²¹⁰Pb_{ex} και ¹³⁷Cs) και την παροχή ραδιολογικών πληροφοριών στις περιοχές μελέτης (τιμές υποβάθρου).

εργαστηριακές μετρήσεις σειράς επιφανειακών ιζημάτων πυθμένα (πλέγμα σημείων δειγματοληψίας) σε μητροπολιτικές αστικές περιοχές (Θεσσαλονίκη και Πειραιά) με έντονη ανθρωπογενή δραστηριότητα με σκοπό την ραδιολογική χαρτογράφηση του πυθμένα (NORM και ¹³⁷Cs) και τον εντοπισμό σημείων φόρτου, τον χαρακτηρισμό της ποιότητας του ιζήματος (λόγω πιθανής ραδιορύπανσης και τοξικολογικής επιβάρυνσης) και τη συσχέτιση ενεργότητας με άλλα χαρακτηριστικά του ιζήματος (ιζηματολογικά και φυσικοχημικά).

ανάπτυξη ραδιολογικού προτύπου (¹³⁷Cs και ⁹⁰Sr) χωροχρονικής διασποράς του Θερμαϊκού Κόλπου που περιλαμβάνει πλήρη περιβαλλοντική περιγραφή (μορφολογία, υδρολογία και οικολογία), ραδιολογική βαθμονόμηση (από πειραματικά δεδομένα), έλεγχο αξιοπιστίας εκτιμήσεων (ανάλυση ευαισθησίας και σύγκριση με άλλα πρότυπα) και προσδιορισμό της περιβαλλοντικής ευαισθησίας της περιοχής (σενάρια ραδιομόλυνσης και εκτιμούμενες δόσεις).

Με βάση τα παραπάνω, συνοψίζοντας τα κυριότερα ερευνητικά αποτελέσματα, προκύπτει ότι:

προσδιορίστηκε αναλυτικά η απόδοση και το κατώτατο όριο ανίχνευσης (MDA) για τα φυσικά ραδιονουκλίδια και το ¹³⁷Cs διαφορετικών ανιχνευτικών συστημάτων HPGe φασματοσκοπίας-γ, για εκτεταμένες γεωμετρίες περιβαλλοντικών δειγμάτων ιζήματος και νερού, ενώ πραγματοποιήθηκε και σύγκριση της ογκομετρικής απόδοσης και του MDA με επιτόπιο ανιχνευτή NaI φασματομετρίας-γ στο νερό (Παράρτημα 2 και Πίνακες 4.7 και 4.8).

• τα επίπεδα συγκεντρώσεων του ¹³⁷Cs στα επιφανειακά ύδατα σε όλες τις περιοχές μελέτης βρέθηκαν να είναι χαμηλά και ομογενοποιημένα (2-5 Bq/m³) λόγω της εποχής της δειγματοληψίας (χειμώνας) και της ρηχότητα των υδάτων, ενώ οι υψηλότερες τιμές παρατηρούνται στα μεγάλα βάθη κυρίως στην θαλάσσια Λεκάνη του Άθω (>700 m) λόγω καταβύθισης σωματιδίων με προσκολλημένο ¹³⁷Cs και λόγω του φαινομένου σχηματισμού βαθέων υδάτων (deep formation events) μετά το 1986 (Πίνακας 5.1).

ο μέσος οικολογικός χρόνος παραμονής του ¹³⁷Cs στα ύδατα του Θερμαϊκού Κόλπου (10.3±5.8 y) βρέθηκε να είναι κατά 1/3 μικρότερος από αυτόν του Σαρωνικού, γεγονός που αποδίδεται στην εντονότερη επίδραση των ρευμάτων του ΒΑ Αιγαίου που προκαλούν αναλογικά γρηγορότερη ανανέωση των υδάτων.

 ο πρότυπος υποβρύχιος ανιχνευτής φασματοσκοπίας-γ ΚΑΤΕRINA του ΕΛΚΕΘΕ υπερτερεί τεχνικά σε σχέση τον εμπορικό υποθαλάσσιο ανιχνευτή ραδιονουκλιδίων RADAM III, γεγονός που τον καθιστά ιδανικό για in situ μετρήσεις μακράς διαρκείας (monitoring).

• σε όλες τις περιοχές μελέτης παρατηρήθηκαν υψηλές τιμές ιζηματογένεσης (0.18-0.54 cm/y) λόγω δυναμικών γεωφυσικών διεργασιών, διαφορετικής φύσεως σε κάθε περίπτωση, ενώ οι τιμές τις συνολικής επιφανειακής εναπόθεσης (inventory) παρουσίαζαν μεγάλη διακύμανση (70-810 Bq/m² για το ¹³⁷Cs και 512-10996 Bq/m² για το 210 Pb_{ex}), κυρίως λόγω της τοποθεσίας και της διαφορετικής υδρογεωλογίας των περιοχών (Πίνακας 5.3).

• στο σύνολο των περιπτώσεων παρατηρήθηκε συμφωνία μεταξύ των εκτιμούμενων τιμών ιζηματογένεσης μεταξύ των μεθόδων ραδιοχρονολόγησης με 210 Pb_{ex} και 137 Cs, ενώ για να εξαχθούν αξιόπιστα αποτελέσματα τα μοντέλα ραδιοχρονολόγησης 210 Pb_{ex} και 137 Cs εφαρμόστηκαν σε όλες τις περιοχές μελέτης συμπληρωματικά.

 οι τιμές των ραδιονουκλιδίων στα επιφανειακά ιζήματα των παράκτιων περιοχών του Πειραιά και της Θεσσαλονίκης ήταν σε επίπεδα αναφοράς (Πίνακας 5.5 και 5.8, αντίστοιχα), ενώ αντίθετα στην πρώτη περίπτωση (Πορθμός Σαλαμίνας-Πειραιά) η επιβάρυνση σε βαρέα μέταλλα ήταν πολύ έντονη (Πίνακας 5.10) και σε πολλές περιπτώσεις πολύ πάνω από τα προτιμώμενα από διεθνείς οργανισμούς όρια.

• η συγκεντρώση του ¹³⁷Cs στα επιφανειακά ιζήματα φαίνεται να επηρεάζεται λιγότερο από την κοκκομετρία και περισσότερο από τις κατά τόπους αιτίες διαφορετικής χωρικής κατανομής των ραδιονουκλιδίων (ατμοσφαιρική κατακρήμνιση, έκπλυση ποταμών, θαλάσσια μεταφορά υδάτινων μαζών), ενώ αντίθετα στους πυρήνες ιζήματος, που η επίδραση των μηχανισμών της βραχυπρόθεσμης επιφανειακής διασποράς εξαλείφεται και κυριαρχούν οι θεμελιώδεις διαδικασίες προσρόφησης του ¹³⁷Cs στα λεπτόκοκκα ιζήματα, παρατηρείται αρνητική συσχέτιση του ¹³⁷Cs με το μέσο μέγεθος κόκκου του ιζήματος.

 η εφαρμογή εμπειρικού ραδιολογικού μοντέλου για τον έμμεσο χαρακτηρισμό του πυθμένα ως προς την υφή του ιζήματος, ήταν σε πολύ καλή συμφωνία με τις ιζηματολογικές εργαστηριακές μετρήσεις στην περίπτωση της Ακτής Αερολιμένα Θεσσαλονίκης (Πίνακας 5.6), ενώ για την παράκτια περιοχή του Πειραιά διαπιστώθηκε ότι απαιτείται βαθμονόμηση του μοντέλου για διαφορετικά χαρακτηριστικά περιβάλλοντα.

• το ραδιολογικό μοντέλο του Θερμαϊκού Κόλπου για ¹³⁷Cs και ⁹⁰Sr έδωσε ικανοποιητικά αποτελέσματα κατά την βαθμονόμησή του (απόκλιση < 1 τάξη μεγέθους για της συγκεντρώσεις ¹³⁷Cs στο νερό και τους θαλάσσιους οργανισμούς από όλες τις πειραματικές μετρήσεις μετά το 1986) και ήταν σε συμφωνία με τις αντίστοιχες εκτιμήσεις μοντέλων για άλλες παράκτιες θαλάσσιες περιοχές στις Βόρειες Θάλασσες και στο BA Αιγαίο, καθιστώντας το αξιόπιστο και κατάλληλο για ρεαλιστικές εκτιμήσεις της διασποράς των ραδιονουκλιδίων και των δόσεων στον πληθυσμό και τα ψάρια μετά από ακαριαίες και συστηματικές κατακρημνίσεις ή εκροές (ποτάμια, λεκάνες απορροής, θαλάσσια ρεύματα) ραδιονουκλιδίων.

• η υλοποίηση προσομοιώσεων για σενάριο διασποράς (ακαριαία επίπτωση 1000 Bq/m^2) ¹³⁷Cs και ⁹⁰Sr, έδειξε ότι σε κάθε περίπτωση η κύρια συμβολή στη συνολική συλλογική δόση για τον πληθυσμό (5.8 και 2.6 ×10⁻² mSv/y για τον πρώτο χρόνο, αντίστοιχα) είναι η πρόσληψη ψαριών για τους ενήλικες, ενώ με την πάροδο του χρόνου η επίδραση της ρύπανσης από το ⁹⁰Sr καθίσταται πιο σημαντική (κατά 3 τάξεις μεγέθους μετά από μια δεκαετία), λόγω της μακροπρόθεσμης συσσώρευσης του ⁹⁰Sr στα οστά των ψαριών σε σχέση με τη γρηγορότερη συγκέντρωση του ¹³⁷Cs στη σάρκα τους.

η εκτίμηση μικρότερης ραδιολογικής επίπτωσης από ραδιομόλυνση για το ¹³⁷Cs στην περιοχή του Θερμαϊκού Κόλπου σε σύγκριση με τις άλλες παράκτιες περιοχές αποδίδεται στο μεγάλο βάθος και τα έντονα θαλάσσια ρεύματα της περιοχής που μειώνουν τις συγκεντρώσεις του ¹³⁷Cs στο νερό. Αντίθετα, η υψηλότερη επίδραση για το ⁹⁰Sr (κατά μία τάξη μεγέθους), οφείλεται στη μεγάλη ποσότητα νερού που λαμβάνει ο κόλπος από ποταμούς και στην προσέγγιση μοντελοποίησης του κώδικα MOIRA PLUS που χρησιμοποιήθηκε και επιτρέπει την είσοδο ⁹⁰Sr από τις λεκάνες απορροής των ποταμών.

οι παράκτιες θαλάσσιες περιοχές παρουσιάζουν χαμηλή περιβαλλοντική ευαισθησία, σε σχέση με άλλα φυσικά περιβάλλοντα (δάση, λίμνες, αγροτικές περιοχές, τούντρα), λόγω της μεγάλης διασποράς των ραδιονουκλιδίων στο νερό και της περιορισμένης επίδρασης των θαλάσσιων οδών πρόσληψης δόσης στον πληθυσμό.

Τέλος, στους μελλοντικούς στόχους και στις προτεινόμενες προοπτικές που απορρέουν από την παρούσα εργασία περιλαμβάνονται:

η συστηματική χρήση του ¹³⁷Cs ως ιχνηθέτη ωκεανογραφικών φαινομένων όπως
η ταυτοποίηση, η ανάμειξη και η καταβύθιση υδάτινων μαζών, με τακτικές
δειγματοληψίες σε συγκεκριμένους σταθμούς ενδιαφέροντος ή εγκατάσταση μόνιμων
iεπιτόπιων αισθητήρων ανίχνευσης ραδιονουκλιδίων.

 η εφαρμογή σε ευρύτερη κλίμακα των μεθόδων ραδιοχρονολόγησης με συμπληρωματικό τρόπο για τον προσδιορισμό πρόσφατων ρυθμών ιζηματογένεσης και την ανάδειξη γεωλογικών φαινομένων.

 η συνδυαστική και συστηματική μέτρηση φυσικών παραμέτρων και ραδιονουκλιδίων στο ίζημα για την επαρκή στατιστική μελέτη των συσχετιζόμενων στοιχείων σε μεγαλύτερο όγκο δεδομένων, τόσο σε αδιατάρακτα όσο και σε δυναμικά υδάτινα περιβάλλοντα.

ο περαιτέρω ραδιολογικός χαρακτηρισμός του πυθμένα επιβαρημένων περιοχών
ή περιοχών με πιθανή μελλοντική επιβάρυνση για την παροχή πληροφοριών
υποβάθρου, με την εφαρμογή ειδικευμένων στρατηγικών δειγματοληψίας και

γεωστατικής ανάλυσης των δεδομένων για την εκτίμηση της επιφανειακής διασποράς των ραδιονουκλιδίων (ραδιολογική χαρτογράφηση πυθμένα).

 η συνδυαστική εφαρμογή της μεθοδολογίας ραδιολογικής χαρτογράφησης πυθμένα με την ανάπτυξη τεχνικών in situ μετρήσεων ραδιονουκλιδίων στο ίζημα, ώστε να είναι δυνατή η γρήγορη και άμεση εκτίμηση της φυσικής κατάστασης του ιζήματος και ο εντοπισμός ανωμαλιών που σχετίζονται με φυσικά ή ανθρωπογενή αίτια (π.χ. εκλύσεις τεχνητών ραδιονουκλιδίων, υποθαλάσσιες εκροές υπογείων υδάτων, αποθέσεις TENORM).

επέκταση του ραδιολογικού μοντέλου χωροχρονικής διασποράς ώστε να περιλαμβάνει και άλλα ραδιονουκλίδια ραδιοοικολογικού ενδιαφέροντος (π.χ. το τεχνητά ¹³¹Ι και ²³⁹Pu και τα φυσικά ²²⁶Ra και τον ²¹⁰Pb) και περαιτέρω αναβάθμιση ώστε να περιλαμβάνει και άλλες φυσικές διεργασίες που συνεισφέρουν στην συνολική δόση πέρα από το θαλάσσιο περιβάλλον (π.χ. έδαφος και τα ποτάμια).

ανάπτυξη αντίστοιχων ραδιολογικών μοντέλων και σε άλλους αστικούς κόλπους,
που παρουσιάζουν ιδιαίτερο ενδιαφέρον από άποψη ραδιοπροστασίας και διαχείρισης
κρίσεων (π.χ. Σαρωνικός και Κορινθιακός Κόλπος).

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑΤΑ

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ 1: Κατάλογος ακτίνων-Χ και -γ

Στους πίνακες που ακολουθούν παρουσιάζονται κατάλογοι επιλεγμένων ραδιονουκλιδίων που εκπέμπουν ακτίνες-Χ και -γ. Στον πρώτο πίνακα προλαμβάνονται τα ραδιονουκλίδια με τις αντίστοιχες εντονότερες ακτίνες που εκπέμπουν οι πηγές αναφοράς που χρησιμοποιήθηκαν στις βαθμονομήσεις των ανιχνευτών φασματοσκοπίας-γ. Ο χρόνος ημιζωής εκφράζεται σε μέρες ενώ στον τρόπο εκπομπής περιλαμβάνονται και οι πιθανές ακτίνες-Χ πάνω από τα 10 keV των θυγατρικών πυρήνων, ενώ μετά τις τιμές της ενέργειας, της πιθανότητας εκπομπής και του χρόνου ημιζωής μέσα σε παρένθεση δηλώνεται η αβεβαιότητα των τελευταίων κάθε φορά ψηφίων. Στον δεύτερο πίνακα περιλαμβάνονται τα ραδιονουκλίδια που απαντώνται σε περιβαλλοντικά δείγματα εν γένει, που και μετρήθηκαν στην παρούσα εργασία. Συμπεριλαμβάνονται μόνο οι εντονότερες κορυφές με πιθανότητα εκπομπής πάνω από 1% και ενέργεια μεγαλύτερη από 40 keV που και πρακτικά μπορούν να αναλυθούν με αξιοπιστία. Με έντονα γράμματα σημειώνονται οι φωτοκορυφές που τελικά χρησιμοποιήθηκαν για τις αναλύσεις των δειγμάτων και των πηγών αναφοράς. Όλες οι τιμές που συμπεριλαμβάνονται προέργονται από αξιολογημένα και προτεινόμενα δεδομένα από διεθνώς επιστημονικά αποδεκτές βιβλιοθήκες [XGAMMA, 2007; LARA, 2014; ENSDF, 2014; NuData 2.3, 2014].

Ραδιονουκλίδιο	Χρόνος Τ _{1/}	ημιζωής ₂ (d)	Τρόπος εκπομπής	Ενέργεια (keV)		Πιθανότητο Ι _γ (%)	
Πηγή ⁴⁰ Κ							
⁴⁰ K	4.66	(3) ×10 ¹¹	ArKα2	2.955		0.31	(3)
			ArKa1	2.957		0.62	(6)
			ArKβ1	3.190		0.049	(5)
			ArKβ3	3.190		0.025	(3)
			EC,β⁺	1460.822	(6)	10.66	(18)
Πηγή ¹³⁴ Cs							
¹³⁴ Cs	753.5	(10)	β⁻	563.243	(3)	8.37	(3)
			β ⁻	569.327	(3)	15.38	(4)
			β⁻	604.72	(3)	97.65	(18)
			β⁻	795.83	(3)	85.5	(3)
			β⁻	801.945	(4)	8.7	(3)
			β	1365.186	(4)	3.17	(12)

Πηγή ¹⁵² Eu/ ¹⁵⁴ E	Eu						
¹⁵² Eu	4941	(7)	SmKα2	39.522	9	20.8	(3)
			SmKa1	40.118	6	37.7	(5)
			SmKβ1	45.289-45	.731	11.78	(19)
			SmKβ2	46.575-46	.813	3.04	(8)
			EC	121.7817	(3)	28.41	(13)
			EC	244.6974	(4)	7.55	(4)
			EC	344.2785	(5)	26.58	(12)
			β⁻	411.1165	(6)	2.237	(10)
			EC	443.965	(7)	3.125	(14)
			β⁻	778.9045	(8)	12.96	(6)
			EC	867.38	(9)	4.241	(23)
			EC	964.072	(10)	14.62	(6)
			EC	1085.837	(11)	10.13	(6)
			β	1089.737	(12)	1.731	(10)
			EC	1112.076	(13)	13.4	(6)
			EC	1212.948	(14)	1.415	(9)
			β	1299.142	(15)	1.632	(9)
154 c	2120 1	(1.1)	EC	1408.013	(10)	20.85	(9) (2)
Lu	5150.1	(14)		42.509	5 7	1.2	(2) (2)
			GUKUI GUKUI	42.990	/	13	(3) (1)
			GdKB2	48.550-49	219	1 08	(1)
			B ⁻	123 0706	(9)	40.4	(5)
			β- β-	2/17 0288	(7)	6 80	(7)
			β- P		(7)	4.05	(7) (E)
			p p-	591.755	(5)	4.95	(5)
			p o-	722.204.4	(18)	1.79	(3)
			β	/23.3014	(22)	20.05	(21)
			β	756.802	(23)	4.53	(5)
			β⁻	873.1834	(23)	12.17	(12)
			β⁻	996.262	(6)	10.5	(10)
			β⁻	1004.725	(7)	17.85	(17)
			β⁻	1246.121	(4)	0.862	(8)
			β⁻	1274.429	(4)	34.9	(3)
			β⁻	1596.4804	(28)	1.783	(17)
Πηγή ²⁰⁷ Bi							
²⁰⁷ Bi	11.18	(3)×10 ⁴	PbL	9.18-15.	84	33.2	(14)
		()	ΡbΚα2	72.805	;	21.69	(24)
			ΡbΚα1	74.97		36.5	(4)
			PbKβ1	84.451-85	.470	12.46	(23)
			ΡbKβ2	87.238-88	.003	3.76	(10)
			EC	569.698	(2)	97.76	(3)
			EC	1063.656	(3)	74.58	(49)
			EC	1770.228	(9)	6.87	(3)

a (210 b) (14 c)	2041						
Ι Ιηγη Ρb (IAEA-	384)						
²¹⁰ Pb	8108	(80)	BiL	10.8		23.6	(10)
			β⁻	46.539	(1)	4.25	(4)
Πηγή PER2B (²³⁸ U	/ ²³⁵ U) [*]						
²³⁴ Th(²³⁸ U)	24.10	(3)	β⁻	63.29	(2)	4.8	(5)
			β⁻	92.38	(2)	2.81	(15)
			β⁻	92.8	(1)	2.77	(15)
²¹⁰ Pb(²³⁸ U)	8108	(80)	β⁻	46.539	(1)	4.25	(4)
²³⁵ U	2.571	(2)×10 ¹¹	α	143.764	(2)	10.96	(8)
			α	163.358	(2)	5.08	(4)
			α	185.712	(2)	57.2	(5)
			α	205.309	(2)	5.01	(5)
²³¹ Th(²³⁵ U)	1.0633	(4)	β⁻	25.646	(4)	14.5	(3)
²²⁷ Th(²³⁵ U)	18.718	(20)	α	235.971	(20)	12.3	(9)
			α	256.25	(2)	7.0	(4)

*αναφέρονται μόνο οι φωτοκορυφές που χρησιμοποιήθηκαν στις βαθμονομήσεις

Πίνακας Π1.2. Κυριότερες φωτοκορυφές ραδιονουκλιδίων που απαντώνται σε φάσματα περιβαλλοντικών δειγμάτων.

Ραδιονουκλίδιο	Ενέργεια (keV)	Πιθανότητα Ι _γ (%)	Παρατηρήσεις
Σειρά ²³⁸ U			
^{234m} Pa	1001.03	1.02	Πολύ ασθενής, σπάνια ανιχνεύσιμη
²³⁴ Th	63.28	4.80	Πολύ ασθενής, σπάνια ανιχνεύσιμη
	92.58	5.58	Διπλή κορυφή ²³⁴ Th, αλληλεπίδραση με ακτίνες-Χ
²²⁶ Ra	186.21	3.56	Συνέλιξη με 185.72 keV του ²³⁵ U
²²⁴ Ra	240.89	4.12	Αλληλεπίδραση με ²¹⁴ Ρb
²¹⁴ Pb	242.00	7.27	Αλληλεπίδραση με ²²⁴ Ra, συνέλιξη με 238.63 keV του ²¹² Pb
	295.22	18.50	Μικρή αλληλεπίδραση με ²¹² Βi
	351.93	35.60	
²¹⁴ Bi	609.31	45.49	Πραγματική συμπωτική άθροιση
	768.36	4.89	
	806.17	1.26	Πολύ ασθενής, σπάνια ανιχνεύσιμη
	934.06	3.10	
	1120.29	14.91	Πραγματική συμπωτική άθροιση
	1155.19	1.64	Πολύ ασθενής, σπάνια ανιχνεύσιμη
	1238.11	5.83	Πραγματική συμπωτική άθροιση
	1377.67	3.97	Πολύ ασθενής, σπάνια ανιχνεύσιμη
	1407.98	2.39	Πολύ ασθενής, σπάνια ανιχνεύσιμη
	1729.60	2.84	Εκτός ορίου βαθμονόμησης, αβέβαιη απόδοση
	1764.49	15.28	-//-
	1847.42	2.02	Εκτός ορίου βαθμονόμησης, αβέβαιη απόδοση
	2204.21	4.91	-//-
²¹⁰ Pb	46.54	4.25	Μικρή αλληλεπίδραση με ²³¹ Ρa

225			
Σειρά ²³³ U			230-1
2330	143.76	10.96	Αλληλεπίδραση με 200Th
	163.33	5.08	Σπάνια ανιχνεύσιμη
	185.72	57.20	Συνέλιξη με 186.21 keV του ²²⁰ Ra
227	205.31	5.01	Πολλές αλληλεπιδράσεις
²²⁷ Th	50.13	8.20	Αλληλεπίδραση με 238
	235.97	12.30	Σπάνια ανιχνεύσιμη
	256.25	7.00	Σπάνια ανιχνεύσιμη
²²³ Ra	122.32	1.19	
	269.49	13.70	Έντονη αλληλεπίδραση με ²²⁸ Αc
	338.28	2.79	Πολύ ασθενής, σπάνια ανιχνεύσιμη
²¹⁹ Rn	271.23	10.80	Αλληλεπίδραση με ²²⁸ Ας και ²²³ Ra
	401.81	6.40	Σπάνια ανιχνεύσιμη
²¹¹ Pb	832.01	3.52	Σπάνια ανιχνεύσιμη
Σειοά ²³² Th			λ
²²⁸ Ac	209.26	3.89	Σπάνια ανιχνεύσιμη
	328.00	2.95	Σπάνια ανιχνεύσιμη
	338.32	11.27	Πραγματική συμπωτική άθροιση, αλληλεπίδραση με ²²³ Βa και ²¹⁴ Βi
	409.46	1.92	Πολύ ασθενής, σπάνια ανιχνεύσιμη
	463.00	4.40	
	794.95	4.25	
	835.71	1.61	Πολύ ασθενής, σπάνια ανιχνεύσιμη
	911 20	25.80	Ποανιματικά συμπωτικά άθοριση
	911.20	4 00	
	904.77	4.99	$με^{214}$ Bi
	968.97	15.80	Πραγματική συμπωτική άθροιση
	1588.20	3.22	Εκτός ορίου βαθμονόμησης, αβέβαιη απόδοση
212	1630.63	1.51	-//-
²¹² Bi	727.33	6.74	Έντονη αλληλεπίδραση με 228Αc, πραγματική συμπωτική άθροιση
	1620.74	1.51	Εκτός ορίου βαθμονόμησης, αβέβαιη απόδοση
²¹² Pb	238.63	43.60	Συνέλιξη με του 242 keV ²¹⁴ Pb
	300.09	3.18	Μικρή αλληλεπίδραση με ²³¹ Ρa και ²²⁷ Th,
208*	- :	.	πραγματική συμπωτική άθροιση
²⁰⁰ TI	277.37	2.37	Πολύ ασθενής, σπάνια ανιχνεύσιμη
	510.70	6.29	Αλληλεπιδραση με την κορυφή εξαϋλωσης 511 keV
	583.19	30.60	Πραγματική συμπωτική αθροισή
	860.56	4.48	Πραγματική συμπωτική άθροιση
	2614.51	35.85	Εκτός ορίου βαθμονόμησης, πραγματική συμπωτική άθροιση
Κοσμογονικής	προέλευσης (εκ	τός φυσικά	νν ραδιενεργών σειρών)
[≁] ″K	1460.82	10.66	Μικρή αλληλεπίδραση με ²²⁰ Αc
Κοσμικής προέ.	Λευσης	10 / 4	
Be	447.60	10.44 20 jún gyớg	πολυ μικρή ενεργοτήτα, σπανία παρατηρείται
137 Cs	, προεπευσης (π 661-66	84.99	157
	υριιένες πιθανό		μπής, ως ποος τα μπόλοιπα της σειοάς του ²³² Th

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ 2: Αποτελέσματα βαθμονόμησης ανιχνευτών HPGe

Στους πίνακες που ακολουθούν παρατίθενται όλες οι πειραματικές τιμές απόδοσης των βαθμονομήσεων των ανιχνευτών HPGe που παρουσιάζονται στα γραφήματα στο Κεφάλαιο 3, καθώς και οι αντίστοιχες τιμές των ελευθέρων μεταβλητών των καμπύλων παρεμβολής που προσαρμόστηκαν στα πειραματικά δεδομένα. Αν και τα δεδομένα που παρουσιάζονται είναι ενδεικτικά, καθώς κατά την διάρκεια των μετρήσεων πραγματοποιήθηκαν σειρά πανομοιότυπων βαθμονομήσεων κατά τακτά χρονικά διαστήματα, οι τιμές αυτές μπορούν να θεωρηθούν αντιπροσωπευτικές καθώς οι διακυμάνσεις ήταν πάντα εντός των ορίων αβεβαιότητας.

Πίνα	κας Π2	.1. Па	ειρο	ματικε	ές τιμ	ές κο	α σχε	ετικό	ά σφά.	λματα	από	λυτης	απόδ	δοση	ς φωτα	σκορι	φής
για ση	μειακή	πηγή	σε	απόστα	xση 2	?5 cm	από	ό τον	κρύσ	ταλλο	του	ανιχν	ευτή,	που	παροι	σιάζι	ονται
							στο	Σχή	иα 3	26.							

Ανιχνευτής	GEM-F	X8530P4	GC	8023	GC	5021
Ενέργεια (keV)	(כי Απόλυτη απόδοση	Σχ. Σφάλμα (%)	ο Απόλυτη απόδοση	Σχ. Σφάλμα (%)	(⊃ Απόλυτη απόδοση	Σχ. Σφάλμα (%)
72.81	0.00502	0.6	0.00181	0.3	0.00097	0.5
74.97	0.00509	0.4	0.00192	0.2	0.00106	0.3
85.00	0.00510	0.7	0.00217	0.3	0.00124	0.5
87.30	0.00532	1.5	0.00225	0.6	0.00127	1.0
121.78	0.00423	3.2	0.00296	0.4	0.00209	0.9
244.70	0.00265	4.6	0.00267	0.7	0.00185	0.8
344.28	0.00186	3.6	0.00216	0.4	0.00153	0.4
443.96	0.00147	1.8	0.00181	1.5	0.00131	1.5
569.70	0.00124	0.4	0.00156	0.1	0.00103	0.2
778.92	0.00085	1.8	0.00123	0.8	0.00085	0.8
867.39	0.00079	2.5	0.00115	1.6	0.00078	1.7
964.05	0.00071	1.5	0.00111	0.8	0.00073	0.8
1063.66	0.00085	0.6	0.00103	0.2	0.00068	0.2
1085.84	0.00065	2.1	0.00100	1.0	0.00068	1.1
1112.09	0.00062	1.7	0.00098	0.8	0.00068	0.9
1408.02	0.00051	1.6	0.00083	0.7	0.00057	0.8
1770.24	0.00042	0.9	0.00072	0.7	0.00048	0.9

Πίνακας Π2.2	. Πειραματιι	κές τιμές και σ	χετικά σφάλ	ματα απόλυτης	ς απόδοσης φ	οωτοκορυφής
για την μικρή	γεωμετρία (.	5.4 cm³) μέτρη	σης ιζήματο	ς, που παρουσι	ιάζονται στο	Σχήμα 3.28.
Ανιχνευτής	GEM-F	X8530P4	GEM-F	X8530P4	GC	5021
	(H(CMR)	(N	TUA)	(N	FUA)
Ενέργεια	Απόλυτη	Σχ. Σφάλμα	Απόλυτη	Σχ. Σφάλμα	Απόλυτη	Σχ. Σφάλμα

Ενέργεια (keV)	Απόλυτη απόδοση	Σχ. Σφάλμα (%)	Απόλυτη απόδοση	Σχ. Σφάλμα (%)	Απόλυτη απόδοση	Σχ. Σφάλμα (%)
46.54	0.180	10.5	0.182	11.0	0.0003	25.0
121.78	0.193	2.2	0.213	5.0	0.130	0.3
244.70	0.131	2.7	0.118	4.8	0.109	0.9
344.28	0.078	2.2	0.087	4.2	0.080	0.5
443.96	0.073	4.2	0.069	5.0	0.064	2.0
778.92	0.043	2.5	0.042	5.1	0.042	1.0
867.39	0.042	5.4	0.038	5.0	0.041	1.7
964.05	0.035	2.8	0.034	4.9	0.036	1.0
1112.09	0.030	2.8	0.030	4.8	0.032	1.0
1408.02	0.025	2.6	0.024	5.2	0.028	0.9
1460.83	0.024	4.9	0.023	5.5	0.021	3.7

Πίνακας Π2.3. Πειραματικές τιμές και σχετικά σφάλματα απόλυτης απόδοσης φωτοκορυφής για την μεγάλη γεωμετρία (65.4 cm³) μέτρησης ιζήματος, που παρουσιάζονται στο Σχήμα 3.28.

Ανιχνευτής	GEM-FX8530P4		GEM-FX8	GEM-FX8530P4		021	GC8023		
	(HCM	IR)	(NTU	JA)	(NT	UA)	(NCN	IR)	
Ενέργεια (keV)	Απόλυτη απόδοση	Σχ. Σφάλ. (%)	Απόλυτη απόδοση	Σχ. Σφάλ. (%)	Απόλυτη απόδοση	Σχ. Σφάλ. (%)	Απόλυτη απόδοση	Σχ. Σφάλ. (%)	
46.54	0.115	10.7	0.116	3.8	0.0001	34.0	-	-	
121.78	0.149	2.9	0.155	3.0	0.061	0.2	0.075	0.2	
244.70	0.101	2.7	0.107	2.7	0.051	0.6	0.062	0.6	
344.28	0.059	3.6	0.061	4.2	0.040	0.3	0.054	0.3	
443.96	0.051	3.5	0.055	2.9	0.035	1.3	0.041	1.3	
778.92	0.029	4.2	0.031	5.0	0.022	0.7	0.029	0.7	
867.39	0.025	4.5	0.026	6.0	0.021	1.5	0.025	1.5	
964.05	0.025	4.3	0.025	5.5	0.020	0.7	0.026	0.7	
1112.09	0.022	4.5	0.023	4.1	0.018	0.7	0.024	0.8	
1408.02	0.020	4.6	0.021	4.5	0.015	0.6	0.019	0.8	
1460.83	0.016	4.6	0.016	4.9	0.012	1.6	-	-	

Η σχετικά μεγαλύτερη αβεβαιότητα στην τιμής της κορυφής του ²¹⁰Pb στα 46.54 keV οφείλεται τόσο στην χαμηλή αναλογικά ενεργότητας της πηγής IAEA-138, που προέρχεται από δείγμα ιζήματος αναφοράς, όσο και στη έντονη παρουσία υποβάθρου σε αυτή την ενεργειακή περιοχή από της αιχμές Compton των φωτοκορυφών μεγαλύτερων ενεργειών που αυξάνουν το τελικό σχετικό σφάλμα. Προφανώς στους ανιχνευτές με παράθυρο Al το σφάλμα είναι ακόμα μεγαλύτερο.

Πίνακας Π2.4. Πειραματικές τιμές και σχετικά σφάλματα απόλυτης απόδοσης φωτοκορυφής
για την μεγάλη γεωμετρία μέτρησης ιζήματος στον ανιχνευτής του ΕΛΚΕΘΕ (HCMR) για
διαφορετικές τάσεις λειτουργίας καθώς και βιβλιογραφικές τιμές αναφοράς, όπως
παρουσιάζονται στο Σχήμα 3.30.

Ανιχνευτής	GEM-FX853	30P4 (@3.8kV)	GEM-FX853	80P4 (@4.8kV)	(Kayser and	Twomey, 2007)*
Ενέργεια (keV)	Απόλυτη απόδοση	Σχ. Σφάλμα (%)	Απόλυτη απόδοση	Σχ. Σφάλμα (%)	Ενέργεια (keV)	Απόλυτη απόδοση
25.64	0.023	9.2	-	-	22.19	0.074
46.54	0.070	11.1	0.115	10.7	24.80	0.099
63.29	0.094	9.4	-	-	59.27	0.170
92.50	0.110	7.5	-	-	87.73	0.175
121.78	0.099	11.6	0.149	2.9	121.93	0.161
143.76	0.096	2.1	-	-	165.80	0.118
163.33	0.090	2.1	-	-	392.09	0.060
185.72	0.088	2.1	-	-	662.86	0.037
205.31	0.079	2.0	-	-	896.70	0.027
236.00	0.077	2.1	-	-	1172.75	0.020
244.70	0.062	3.2	0.101	2.7	1330.99	0.017
256.25	0.063	3.2	-	-	1832.09	0.012
344.28	0.057	3.5	0.059	3.6		
443.96	0.035	5.7	0.051	3.5		
778.92	0.024	8.2	0.029	4.2		
867.39	0.020	8.8	0.025	4.5		
964.05	0.018	10.2	0.025	4.3		
1112.89	0.016	5.6	0.022	4.5		
1408.02	0.013	4.0	0.020	4.6		
1460.83	0.013	3.8	0.016	4.6		

*στο Σχήμα 3.30 θεωρήθηκε σφάλμα ανάκτησης από το πρωτότυπο γράφημα ίσο με 3%

Πίνακας Π2.5. Πειραματικές τιμές και σχετικά σφάλματα απόλυτης απόδοσης φωτοκορυφής για την μικρή (0.6 L) και την μεγάλη γεωμετρία (2.2 L) μέτρησης νερού στον ανιχνευτή του ΕΛΚΕΘΕ, που παρουσιάζονται στο Σχήμα 3.31.

Γεωμετρία	Μεγάλ	.η (2.2 L)	Μικρή	(0.6 L)
Ενέργεια (keV)	Απόλυτη απόδοση	Σχ. Σφάλμα (%)	Απόλυτη απόδοση	Σχ. Σφάλμο (%)
121.78	0.0101	2	0.0177	4
244.70	0.0067	2.2	0.0116	4.2
344.28	0.0052	2	0.0094	4.1
443.96	0.0045	2.9	0.0066	5.4
778.92	0.0029	2.2	0.0049	4.2
867.39	0.0028	3.1	0.0045	3.1
964.05	0.0026	2.2	0.0041	4.2
1085.84	0.0025	2.3	0.0038	4.4
1112.09	0.0023	2.2	0.0037	4.3
1408.02	0.0020	2.1	0.0032	4.1

Ανιχνευτής	а	δα	b	δb	с	δς	d	δd	χ²
Σημειακή πηγή στα 2	5 ст								
GEM-FX8530P4	0.51	0.07	2.50	0.31	1.9E+03	2.7E+03	3.44	0.36	6.25
GC8023	1.2E-01	7.6E-03	2.23	0.11	6.9E+02	3.4E+02	2.92	0.12	14.06
GC5021	0.094	0.017	2.70	0.28	8.0E+03	1.1E+04	3.41	0.33	30.02
Μικρή πηγή ιζήματος									
GEM-FX8530P4	16.96	0.56	2.96	0.05	5.3E+03	1.2E+03	3.86	0.06	0.002
GC5021	9.6E-17	2.7E-16	-0.78	0.02	1.2E-20	3.5E-20	-8.30	0.56	12.88
Μεγάλη πηγή ιζήματος									
GEM-FX8530P4	20.1	5.6	1.84	0.81	1.6E+02	5.1E+02	2.82	0.89	5.55
GC5021	2.6	4.0	6.52	0.87	4.9E+11	2.7E+12	7.2	1.4	28.16
GC8023	5.4	1.7	1.3	1.8	1.9E+01	1.5E+01	2.12	1.85	31.79
GEM-FX8530P4 (@3.8kV)	14.60	0.01	1.78	0.01	1.8E+02	1.6E+01	2.74	0.01	3.08
(Kayser and Twomey, 2007)	25.9	5.7	1.26	0.15	14.8	5.5	2.27	0.13	4.08
Μικρή πηγή νερού									
GEM-FX8530P4	0.7	1.5	6.3	1.4	3.8E+10	3.5E+11	7.0	2.1	0.98
Μεγάλη πηγή νερού									
GEM-FX8530P4	0.28	0.38	7.04	0.72	6.9E+11	3.9E+12	7.2	1.1	1.14

Πίνακας Π2.6. Συντελεστές της σχέσης (3.15) και δείκτες ποιότητας χ² των καμπύλων προσαρμογής απόδοσης φωτοκορυφής όλων των πειραματικών δεδομένων, που εμφανίζονται στα Σχήματα 3.26, 3.28, 3.30 και 3.31.

Όπως αναφέρθηκε νωρίτερα και στο κείμενο (Κεφάλαιο 3.3.3.1) σε κάθε περίπτωση το σφάλμα της απόδοσης κατά τον υπολογισμό της ενεργότητας των δειγμάτων, που αφορά στις τιμές της εμπειρικής καμπύλης μετά από προσαρμογή στα πειραματικά δεδομένα, θεωρήθηκε 5% σε όλες τις περιπτώσεις. Η τιμή αυτή προκύπτει από την θεωρητική αξιολόγηση του σφάλματος της καμπύλης προσαρμογής που αποτελεί μια φαινομενολογική προσέγγιση των πειραματικών δεδομένων και σε καμία περίπτωση δεν είναι μια θεωρητική μαθηματική σχέση, η οποία εν γένει δεν έχει σφάλμα.

Συγκεκριμένα, οι ελεύθερες παράμετροι μιας καμπύλης προσαρμογής πρακτικά προσδιορίζονται με την μέθοδο της ελαχιστοποίησης των μερικών παραγώγων της μαθηματικής εξίσωσης που την εκφράζει για τον εντοπισμό ακρότατου. Είναι δε προφανές ότι κατά την προσαρμογή οφείλεται να λαμβάνεται υπόψη ως βάρος το σφάλμα των πειραματικών σημείων (weighted fitting), καθώς τα σφάλματα παρουσιάζουν καθαυτά κατανομή πιθανότητας, με μεγαλύτερη αβεβαιότητα προς τα άκρα τους. Τα σφάλματα των ελεύθερων παραμέτρων εμπεριέχουν όλη την πληροφορία των επιμέρους σφαλμάτων, των πειραματικών σημείων και της απόκλισης μεταξύ καμπύλης και πειραματικών σημείων. Μεγάλο σφάλμα σε μία ή περισσότερες παραμέτρους υποδηλώνει ότι η παράμετρος αυτή (ή κάποια γενικότερα) είναι έντονα εξαρτημένη και συνεπώς υπάρχουν παραπάνω ελεύθεροι παράμετροι απ' ότι είναι αναγκαίο σε σχέση με το πλήθος των πειραματικών σημείων. Σε κάθε

περίπτωση η σύγκριση μεταξύ πειραματικών τιμών και καμπύλης είναι απλά ενδεικτική και δεν δίνει κάποια πληροφορία για το τελικό σφάλμα της καμπύλης, ενώ δεν νοείται ο προσδιορισμός του σφάλματος της εξίσωσης της καμπύλης με τη θεωρία διάδοσης σφαλμάτων, καθώς, εξ ορισμού, η ανεξαρτησία των μεταβλητών είναι προαπαιτούμενη. Η καμπύλη προσαρμογής λοιπόν αναμένεται να έχει σφάλμα μικρότερο των πειραματικών δεδομένων, καθώς συσχετίζει όλες τις τιμές μεταξύ τους προς μία αναμενόμενη συμπεριφορά εξομαλύνοντας τις αβεβαιότητες τους.

Εδώ για την υλοποίηση των προσαρμογών χρησιμοποιήθηκε το λογισμικό OriginPro[®] v8.0724 (OriginLab Co.) με μαθηματικό κριτήριο ελαχιστοποίησης εν προκειμένω το χ^2 (τιμές κοντά στο 1 υποδηλώνουν πολύ καλή προσαρμογή θεωρητικών υπολογισμών στα πειραματικά δεδομένα). Είναι γεγονός ότι μπορεί να υπάρχουν πολλά τοπικά ελάχιστα, που όμως δεν παρουσιάζουν το ίδιο "καλή" μαθηματική συμπεριφορά με το ολικό ελάχιστο. Οι κώδικες που βασίζονται στον εντοπισμό του ελαχίστου με την μέθοδο του χ^2 εξαρτώνται έντονα από την αρχική τιμή ή τους περιορισμούς των παραμέτρων που θέτουμε έτσι ώστε κάθε φορά να οδηγούμαστε σε κάποιο από τα τοπικά ελάχιστα, χωρίς να μπορούμε να ξέρουμε με βεβαιότητα αν είναι το ολικό ελάχιστο. Για το λόγο αυτό, για κάθε καμπύλη πραγματοποιούνταν περισσότερες της μίας προσαρμογές με διαφορετικές αρχικές τιμές κάθε φορά και επιλέγονταν αυτή που παρουσίαζε το βέλτιστο χ^2 . Για τον προσδιορισμό του σφάλματος σε κάθε σημείο της καμπύλης προσδιορίστηκε ένα εύρος τιμών εμπιστοσύνης (confidence bandwidth) – με επίπεδο εμπιστοσύνης (confidence level) 95% – με βάση τις κεντρικές τιμές και τα σφάλματα των ελεύθερων παραγόντων της καμπύλης. Το σφάλμα σε όλες τις περιπτώσεις κυμαίνονταν από 2-5%, ανάλογα την ενεργειακή περιοχή, και για λόγους μεγαλύτερης ακρίβειας και ομοιογένειας θεωρήθηκε σταθερό ως 5%.

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ 3: Δεδομένα εισόδου στον κώδικα EFFTRAN

Στο παράρτημα αυτό δίνεται αναλυτικά η περιγραφή, σύμφωνα με τις απαιτήσεις για τα δεδομένα εισόδου του κώδικα EFFTRAN, των ανιχνευτών, των δειγμάτων και των δοχείων που χρησιμοποιήθηκαν στις εργαστηριακές μετρήσεις.

Ανιχνευτής			GEM-FX 8530P4	GC5021	GC8023
Κρύσταλλος	Υλικό		Ge	Ge	Ge
	Διάμετρος		84.8	63.5	74
	Μήκος		32.1	63.5	71
	Διάμετρος καμ	πύλωσης	2.66	1.85	5
	Ανενεργή	Πάνω	0.01	1	1.2
	ζώνη	Πλάγια	0.6	1	1.6
	Εσωτερική	Διάμετρος	8.5	3.56	8.5
	οπή	Μήκος	16.5	46.7	16.5
Περίβλημα	Εσωτερικό	Υλικό	Al	Al	Al
		Πάχος	1	0.5	1
	Εξωτερικό	Υλικό	Al	Al	Al
		Διάμετρος	105	82	95
		Πάχος	1	1.8	1
Παράθυρο	Υλικό		C*	Al	Al
	Πάχος		0.8	1.8	1
	Κενό από κρύσταλλο		5	5.72	5
	Απορροφητής	Υλικό	H_2C^{**}	Cu	Cu
		Διάμετρος	106	0	95
		Πάχος	2	0	0

Πίνακας Π3.1. Η περιγραφή της γεωμετρίας (διαστάσεις σε mm) και της σύστασης των υλικών των ανιχνευτών HPGe που χρησιμοποιήθηκαν, όπως εισήχθηκαν στον κώδικά EFFTRAN.

^{*}ανθρακονήμα (2.27 gr/cm³) ^{**}πολυαιθυλένιο (0.92 gr/cm³)

Πίνακας Π3.2. Οι διαστάσεις (σε mm) και η σύσταση των δοχείων δειγμάτων του αρχείου εισόδου του κώδικα.

Δείγμα	Νερό		Ίζημα		AMP
Γεωμετρία	Μικρή	Μεγάλη	Μικρή	Μεγάλη	Φίλτρου
Υλικό	$7SiO_2:B_2O_3^*$	7SiO ₂ :B ₂ O ₃	$C_5O_2H_8^{**}$	$C_8 H_8^{***}$	C_8H_8
Διάμετρος	45	45	36.22	69	69
Ύψος	200	130	5.25	19	3
Πάχος Πλάγιο	6.9	6.9	0.5	1	1
Πάτου	6.9	6.9	1	1	1
Κενό από απορροφητή	2	2	0	0	0

*pyrex (2.23 gr/cm³) **πολυεστέρας (1.09 gr/cm³) ***plexiglass (1.18 gr/cm³)

Πίνακας Π3.3. Η βασική σύσταση (κύρια στοιχεία) των υλικών και η πυκνότητα του
αντιπροσωπευτικού δείγματος (ίζημα) και των πηγών αναφοράς PER2B (πέτρωμα), ^{152/154} Eu
(ρητίνη), IAEA-385 (ίζημα) και ¹³⁴ Cs (AMP) όπως δόθηκαν στον κώδικα EFFTRAN. Η
σύσταση της πηγής IAEA-385 θεωρήθηκε ίδια με αυτή του ιζήματος, ενώ οι τιμές πυκνότητας
του αντιπροσωπευτικού δείγματος ήταν 0.5,0.8,1, 1.2 και 1.5 gr/cm ³ .

Σύσταση	Υλικό			
(w.t.%)	Ίζημα	Πέτρωμα (ουρανιούχο)	Ρητίνη (talk)	AMP
SiO ₂	43.92	1.62	-	-
Al_2O_3	6.61	0.56	-	-
Fe ₂ O ₃	9.55	0.1	-	-
MgO	6.83	0.26	-	-
CaO	14.09	52.79	-	-
Na ₂ O	0.85	1.25	-	-
K ₂ O	0.28	0.18	-	-
TiO ₂	0.47	0.03	-	-
P_2O_5	0.04	27.53	-	-
MnO	0.08	0.01	-	-
SO ₃	3.6	-	-	-
Cr_2O_3	-	0.004	-	-
$C_6H_{10}O_5$	-	-	100	-
$N_{3}H_{14}PMo_{12}O_{41}$	-	-	-	100
Πυκνότητα (gr/cm³)				
Μεγάλη γεωμ.	1.18^{*}	1.78	0.02	-
Μικρή γεωμ.	0.96*	-	1.47	-
Γεωμ. φίλτρου	-	-	-	0.81

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ 4: Αρχεία εισόδου στον κώδικα MCNP5

Παρακάτω παρατίθενται δύο τυπικά αρχεία εισόδου των γεωμετριών εκτεταμένης γεωμετρίας νερού 0.6 και 2.2 L για τις δύο διαφορετικής περιπτώσεις εφαρμογής του κώδικα MCNP5, αναπαραγωγής φάσματος και υπολογισμού απόλυτης απόδοσης φωτοκορυφής σε συγκεκριμένη ενέργεια.

Τυπικό αρχείο εισόδου προσομοίωσης ενεργειακής απόδοσης για μπουκάλι 0.6 L.

c HPGe detector with 0.6 L Bottle in conta	ct - absolute efficiency (FEP) at 867.39 keV
c cell cards	
1 1 -2.6989 -1 2 3 4 \$	Al outside
2 2 -2.207 -3 3 3 3 -0 001205 -4 \$	C IIDer WINdow
4 4 -5 32 29 -7·-31 \$	Ge
5 1 -2.6989 -5 6 17	Al inside
6 6 -11.35 -27 26 \$	cubic shielding Pb
7 4 -5.32 -8 9 #4 \$	inactive dead layer
8 3 -0.001205 -9 28 \$	void (hole)
9 9 -1.032 -14 \$	plastic cap (bottle)
10 10 -2.23 -13 12 #23 \$	glass cylinder
11 10 -2.23 -15 16 \$	glass cone
12 13 -0.94 -10 11 1 \$	-plastic-polyethylene
$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	mylar Volumo sourco
14 11 -1 $#24$ -10 -12 $715 12 -22 -628 17 33 \%$	teflon
16 3 -0.001205 -2 5 30 \$	void in detector
17 3 -0.001205 -11 \$	air in the cap
18 3 -0.001205 -99 1 10 14 15 13 #6 \$	universe air
19 15 -8.96 -28 \$	pin
20 4 -5.32 -32 31	
21 3 -0.001205 -30	
22 14 -1.4 -33 32	
23 3 -0.001205 -35 36	
24 10 -2.23 -37 38	Curring and Limit
g end cell cards	suniverse limit
c end cerr cards	
c surfase	
1 rcc 0 0 -13 0 0 26.2 5.4	\$Al shield out
2 rcc 0 0 -12.8 0 0 25.8 5.3	\$Al shield in
3 rcc 0 0 13.12 0 0 0.08 5.1	\$C fiber window
4 rcc 0 0 13 0 0 0.12 4.44	\$void to window
5 rcc 0 0 7.2 0 0 5.30 4.44	\$Al inside-detector
6 rcc 0 0 7.84 0 0 4.66 4.29	Steilon Sdead Jawar Ii (0, 12am (0, 006am)
7 100 0 9.41 0 0 2.555 4.179	Sce
9 rcc 0 0 9.29 0 0 1.65 0.425	Shole
10 rcc 0 0 11 0 0 2.5 5.6	\$plastic cap
11 rcc 0 0 13.2 0 0 0.1 5.4	\$air between cap-detector
12 rcc 0 0 14.0 0 0 10.5 3.61	\$glass bottle in
13 rcc 0 0 13.5 0 0 11 4.30	\$glass bottle out
14 rcc 0 0 28.5 0 0 3.8 2.1	\$cap bottle
15 trc 0 0 24.5 0 0 4.0 4.30 2.1	\$cone-outside
16 trc 0 0 24.5 0 0 4.0 3.61 1.41	Scone-inside
$17 \text{ rcc} = 0.9.29 \pm 0.02.675 \pm 4.24$	Smylar(U.UUICM)
20 $1pp = 9.01$ $9.01 = 9.01$ 9.01 0.2427 $rpp = 15.45$ 15.45 15.45 0.24	Sshielding out
$28 \text{ rcc} = 0.7.84 \pm 0.3.10.16$	Spin
29 rcc 0 0 9.41 0 0 1.53006 0.42506	\$inactive Ge-Boron
30 rcc 0 0 0 0 0 0.002 5.25	\$tally 4
31 trc 0 0 11.965 0 0 0.532 4.179 3.7589	\$(0.01cone)dead layer
32 trc 0 0 11.965 0 0 0.533 4.239 3.7689	\$ (cone) Ge
33 trc 0 0 11.965 0 0 0.535 4.24 3.7689	\$(cone)mylar
35 ell 0 0 13.49 0 0 0.25 -3.9	
30 pz 13.5	
37 ELL U U L4 U U U.L9 -3.6L	
DO PATA	
99 rp -50 100 -50 200 -100 200	Suniverse
MODE P E IMP:P 1 23r 0 TMP:E 1 2.3r 0 SDEF POS= 0 0 25.145 ERG=d1 AXS= 0 0 1 EXT=d2 RAD=d3 cell=14 SI1 L 0.86739 \$source energy SP1 1. \$isntencity SI2 11.155 SI3 0. 5.611 F8:P,E \$energy dtrib cell-4 4 e8 0 0.001 0.86458 0.87020 1.5 \$4096 cannels ft8 geb 8.0056e-4 1.2913e-3 0.4217 \$resolution SB1550BqNET.SPE M1 13000 -1 \$A1 M2 6000 -1 \$C fiber 7000 -0.755267 8000 -0.231781 18000 -0.012827 6000 -0.000124 M3 M4 32000 -1 ŚGe M6 82000 -1 ŚPb M9 1000 -0.085 6000 -0.915000 \$plastic (vinyltoluene) M10 14000 1 8000 2 \$SiO2(glass) M11 1000 2 8000 1 \$H2O M12 6000 1 9000 3 \$teflon M13 1000 2 6000 1 \$polye M14 1000 -0.041959 6000 -0.625017 8000 -0.333025 \$mylar \$polyethylene m15 29000 1 \$Cu NPS 500000 \$histories

Αρχείο εισόδου προσομοίωσης φάσματος βαθμονόμησης ^{152/154}Ευ για μπουκάλι 2.2 L.

c HPGe detector with 2.2 L Bottle- 152/154Eu spectrum simulation (5710 Bq, 86400s) c cell cards 1 -2.6989 -1 2 3 4 2 -2.267 -3 1 2 3 3 -0.001205 -4 4 -5.32 29 -7:-31 1 -2.6989 -5 6 17 4 5 6 6 -11.35 -27 26 -5.32 -8 9 #4 7 4 8 3 -0.001205 -9 28 9 -1.032 -14 10 -2.23 -13 12 #23 10 -2.23 -15 16 9 10 11 -0.94 -10 11 1 -1.4 -17 8 13 12 13 14 #24 -16 : -12 14 11 -1 15 12 -2.2 -6 28 17 33 3 -0.001205 -2 5 30 16 3 -0.001205 -11 17 3 -0.001205 -99 1 10 14 15 13 #6 18 19 15 -8.96 -28 -5.32 -32 31 20 4 3 -0.001205 -30 14 -1.4 -33 32 21 2.2 23 3 -0.001205 -35 36 24 10 -2.23 -37 38 99 0 99 c end cell cards c surfase 1 rcc 0 0 -13 0 0 26.2 5.4 2 rcc 0 0 -12.8 0 0 25.8 5.3 rcc 0 0 13.12 0 0 0.08 5.1 3 rcc 0 0 13 0 0 0.12 4.44 4 rcc 0 0 7.2 0 0 5.30 4.44 5 rcc 0 0 7.84 0 0 4.66 4.29 6 rcc 0 0 9.41 0 0 2.555 4.179 7 8 rcc 0 0 9.29 0 0 2.675 4.239 9 rcc 0 0 9.29 0 0 1.65 0.425 10 rcc 0 0 11 0 0 2.5 5.6 11 rcc 0 0 13.2 0 0 0.1 5.4 12 rcc 0 0 14.0 0 0 16.5 5.61 13 rcc 0 0 13.5 0 0 17 6.3 14 rcc 0 0 36.5 0 0 3.8 2.1 15 trc 0 0 30.5 0 0 6 6.3 2.1 16 trc 0 0 30.5 0 0 6 5.61 1.41 17 rcc 0 0 9.29 0 0 2.675 4.24) 26 rpp -9.61 9.61 -9.61 9.61 0 24 27 rpp -15.45 15.45 -15.45 15.45 0 24

28 rcc 0 0 7.84 0 0 3.1 0.16 29 rcc 0 0 9.41 0 0 1.53006 0.42506 30 rcc 0 0 0 0 0 0.002 5.25 \$tally 4 31 trc 0 0 11.965 0 0 0.532 4.179 3.7589 32 trc 0 0 11.965 0 0 0.533 4 239 3 7699 trc 0 0 11.965 0 0 0.533 4.239 3.7689 33 trc 0 0 11.965 0 0 0.535 4.24 3.7689 35 ell 0 0 13.49 0 0 0.25 -4.9 36 pz 13.5 37 ell 0 0 14 0 0 0.19 -5.61 38 pz 14 99 rpp -50 100 -50 200 -100 200 c end surface MODE P E IMP:P 1 23r 0 IMP:E 1 23r 0 SDEF POS= 0 0 25.145 ERG=d1 AXS= 0 0 1 EXT=d2 RAD=d3 cell=14 SI1 L 0.121782 0.123071 0.244698 0.247925 0.295939 0.329425 0.344279 0.367789 0.411116 0.416048 0.44396 0.443965 0.444484 0.488679 0.503474 0.557581 0.56399 0.56643 0.582096 0.586265 0.591763 0.625257 0.656487 0.674675 0.678623 0.68867 0.692421 0.719349 0.723304 0.756763 0.7649 0.778904 0.810451 0.815507 0.84157 0.84546 0.867378 0.87319 0.89278 0.904076 0.91933 0.926317 0.96339 0.964079 0.996262 1.004725 1.005272 1.084 1.085869 1.089737 1.109174 1.112074 1.128558 1.212948 1.24615 1.249938 1.274436 1.292778 1.29914 1.408006 1.457643 1.494048 SP1 0.1763100 0.0067900 0.0467800 0.0011580 0.0017800 0.0007897 0.1635000 0.0053100 0.0137800 0.0006800 0.0020170 0.01741 0.0000941 0.0025840 0.0009200 0.0000450 0.0030000 0.0007960 0.0001490 0.0028315 0.0008311 0.0000540 0.0008930 0.0010610 0.0029060 0.0052881 0.0003000 0.0017160 0.0033650 0.0007610 0.0013260 0.0798500 0.0012780 0.0000868 0.0010245 0.0000980 0.0262000 0.0021000 0.0000862 0.0001490 0.0026300 0.0017160 0.0008300 0.0900000 0.0017600 0.0029969 0.0039850 0.0015200 0.0629700 0.0106500 0.0011510 0.0841810 0.0000540 0.0087730 0.0001450 0.0011500 0.0059100 0.0006500 0.0100131 0.1296000 0.0031000 0.0001170 SI2 11.155 SI3 0. 5.611 F8:P.E 4 4095I 1.51091 e8 0 1e-03 ft8 geb 8.0056e-4 1.2913e-3 0.4217 \$resolution Eu BB5710BqNET.SPE M1 13000 -1 M2 6000 -1 7000 -0.755267 8000 -0.231781 18000 -0.012827 6000 -0.000124 MЗ M4 32000 - 1M6 82000 -1 M9 1000 -0.085 6000 -0.915000 M10 14000 1 8000 2 M11 1000 2 8000 1 M12 6000 1 9000 3 M13 1000 2 6000 1 1000 -0.041959 6000 -0.625017 8000 -0.333025 M1 4 m15 29000 1 NPS 10000000

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ 5: Κώδικας υπολογισμού MDA (C++)

Στη συνέχεια παρατίθεται ο κώδικάς υπολογισμού σε C++ του γινομένου MDA·I_γ ως προς την ενέργεια. Από την μεταγλώτιση (compile) του κώδικα προκύπτει η αντίστοιχη εφαρμογή υπολογισμού. Ως είσοδο δέχεται το βαθμονομημένο φάσμα υποβάθρου ακτινοβολίας-γ σε μορφή μονής στήλης ακεραίων που είναι τα γεγονότα κάθε καναλιού ανά σειρά. Στο παράδειγμα που ακολουθεί πραγματοποιείται εφαρμογή του κώδικα για φάσμα δείγματος εκτεταμένης γεωμετρίας νερού 0.6 L, ενώ για κάθε διαφορετικό δείγμα εισάγονταν οι κατάλληλες σταθερές βαθμονόμησης και ο όγκος του αντίστοιχου δείγματος κάθε φορά.

Κώδικας υπολογισμού MDA·I_ν σε κάθε ενέργεια για το μικρό μπουκάλι 0.6 L.

```
#include <stdio.h>
#include <math.h>
void main()
int i,sum1,sum2,N[4096],de,time;
float FWHM, energy[4096], MDA[4096], BGR[4096], calib, offset, eff;
double v:
int nd[4096];
char name_in[30],name_out[30];
char *aa[30],*bb[30];
FILE* fid;
FILE* out;
v=0.000615;//the volume of the sample container in m^3
printf("give T (the time of measurement in sec)\n");scanf("%d",&time);
printf("give a(offset) and b(calibration constant)\n");scanf("%f %f",&offset,&calib);
printf("give input file and path, in one-column format\n");scanf("%s",name in);
printf("give the output file name\n");scanf("%s",name out);
*aa=name in;*bb=name out;
fid=fopen(*aa,"r");out=fopen(*bb,"w");
for(i=0;i<4096;i++)
energy[i]=offset+calib*(float)(i)+(float)0.000000837672*(float)(i)*(float)(i);
for(i=0;i<4096;i++)
       fscanf(fid, "%d", &nd[i]);
       if (nd[i]<10)
           nd[i]=10;
for (i=1;i<4096;i++)
       BGR[i]=0; MDA[i]=0;
for(i=1;i<4096;i++)
eff=(float)(0.97334071*pow(energy[i],5.3325661)/((99999168)+pow(energy[i],6.1391032)))
;FWHM=(float)sqrt(0.5636+0.0036*(float)energy[i]);// calibration constants
       de=(int)(2.55*FWHM);
       N[i]=(int)(de/calib);
       sum1=0;sum1=nd[i-1];sum2=0;sum2=nd[i+1];
       BGR[i]=(float)((sum1+sum2)*N[i]/2);
       MDA[i]=(float) (2.71+4.65*sqrt(BGR[i]))/(eff*(float)time*(float)v);
       printf("%f\t %f\t %f\n",BGR[i],MDA[i],eff);
for (i=1;i<4096;i++)
        if (energy[i]>=100) // working test
       fprintf(out,"%d\t %.2f\t %d\t %f\t %.2f\n",i,energy[i],nd[i],BGR[i],MDA[i]);
       printf("%d\t %.2f\t %d\t %f\t %.2f\n",i,energy[i],nd[i],BGR[i],MDA[i]);
fclose(fid);
fclose(out);
```

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ 6: Κώδικας υπολογισμού ροών (ΜΑΤLAB)

Στο παράρτημα αυτό παρατίθενται τεχνικές λεπτομέρειες για τον τρόπο υπολογισμό της μέσης μηνιαίας απόλυτης ροή νερού μεταξύ των συνοριακών επιφανειών μεταξύ των θαλάσσιων υποπεριοχών του ραδιολογικού μοντέλου του Θερμαϊκού Κόλπου. Τα δεδομένα εισόδου ήταν οι μηνιαίες μέσες τιμές το 3D πεδίο ταχυτήτων σε μορφή πλέγματος στο χώρο, επιφανειακής διακριτικής ικανότητας 1/30° και κατακόρυφης ανάλυσης 24 επιπέδων, για του 12 μήνες του 2008 στην περιοχή του Θερμαϊκού Κόλπου, όπως υπολογίστηκαν από το υδροδυναμικό μοντέλο του Poseidon-LAS και προσφέρθηκαν ευγενικά από τον ερευνητή του ΕΛΚΕΘΕ Δρ. Γ. Κορρέ. Κατόπιν τα δεδομένα αυτά εισήχθηκαν και επεξεργάστηκαν κατάλληλα από κώδικα που αναπτύχθηκε στο πρόγραμμα MATLAB[®], με την βοήθεια του συναδέλφου του ΕΜΠ Δρ. Ν. Μαραγκού, που υπολογίζει την συνολική μέση μηνιαία ροή στην κατακόρυφη επιφάνια μεταξύ δύο υποπεριοχών.

Στη συνέχεια περιγράφονται τα στοιχεία των αρχείων εισόδου, τα βήματα της επεξεργασίας των δεδομένων καθώς και ο κώδικας σε γλώσσα προγραμματισμού MATLAB.

Αρχεία εισόδου

Τα δεδομένα δόθηκαν σε μορφή 12 ASCII αρχείων που αντιστοιχούν στις μέσες τιμές του πεδίου ταχυτήτων για τους 12 μήνες του χρόνου. Κάθε αρχείο εισόδου περιέχει τα παρακάτω δεδομένα:

- $[alat_{ij}, alon_{ij}]$: δύο δισδιάστατους πίνακες τιμών που εκφράζουν τις γεωγραφικές συντεταγμένες των σημείων του πλέγματος διακριτοποίησης του Θερμαϊκού Κόλπου. Σε κάθε σημείο του πλέγματος αντιστοιχούν τιμές υδάτινης ροής (m/s) σε 24 σημεία της κατακόρυφης στήλης από την επιφάνεια της θάλασσας μέχρι τον πυθμένα. Οι πίνακες τιμών, γεωγραφικού πλάτους και γεωγραφικού μήκους αντίστοιχα, έχουν διαστάσεις 28×31, 28 ισαπέχοντα γεωγραφικά μήκη και 31 ισαπέχοντα γεωγραφικά πλάτη. Τα γεωγραφικά μήκη των διαδοχικών σημείων έχουν σταθερή διαφορά 2 λεπτά της μοίρας που αντιστοιχεί σε μέση απόσταση 2.831 km για το εύρος του γεωγραφικού πλάτους της υπό εξέτασης περιοχής του Θερμαϊκού Κόλπου (2.810 km στα βορειότερα σημεία και 2.852 km στα νοτιότερα). Τα γεωγραφικά πλάτη των διαδοχικών σημείων έχουν επίσης σταθερή διαφορά 2 λεπτά της μοίρας που αντιστοιχεί σε μέση απόσταση 2.831 km

- [depth_{ij}] : έναν δισδιάστατο πίνακα τιμών διάστασης 28×31 που εκφράζει τα
 24 βάθη του πυθμένα στα διάφορα σημεία του πλέγματος.



Σχήμα Π6.1. Το δισδιάστατο πλέγμα των 28×31 σημείων με την πληροφορία των γεωγραφικών συντεταγμένων (γεωγραφικά πλάτη και μήκη) και το αντίστοιχο με επιπλέον την βαθυμετρία της περιοχής (τιμών βάθους ανά σημείο).

- $[z_k]$: ένα διάνυσμα με 24 τιμές μεταξύ μηδέν και -1. Οι τιμές του διανύσματος είναι γενικά σιγμοειδής, ενώ προσεγγίζει λογαριθμικά το μηδέν και το -1. Πολλαπλασιάζοντας το διάνυσμα αυτό με τα βάθη του πυθμένα στα διάφορα σημεία του πλέγματος παίρνουμε τα βάθη των σημείων στα οποία δύνονται οι τιμές της υδάτινης ροής για κάθε κατακόρυφο επίπεδο.



Σχήμα Π6.2. Απεικόνιση των τιμών του πίνακα $[z_k]$ διαφοροποίησης του βάθους.



Σχήμα Π6.3. Δεδομένα ροής στα διάφορα βάθη στις στήλες των σημείων του πλέγματος σε μια κατακόρυφη διατομή στο γεωγραφικό μήκος 23°23.33' (άσπρη γραμμή).

- $[u_{ijk}, v_{ijk}]$: δύο τρισδιάστατους πίνακες τιμών που αντιστοιχούν στις δύο κάθετες συνιστώσες των ταχυτήτων του νερού σε κάθε σημείο του πλέγματος για 24 βάθη.

Επεξεργασία δεδομένων

Η διαδικασία υπολογισμού των μέσων ροών σε κάθε επιφάνεια υλοποιείται ακολουθώντας τα ακόλουθα βήματα:

ορισμός του γεωγραφικού πλέγματος. Για κάθε σημείο του γεωγραφικού πλέγματος θεωρούμε ορθογώνια περιοχή γύρω από αυτό με διαστάσεις όσο η απόσταση των διαδοχικών σημείων του πλέγματος (2'→ 3.706 km στο γεωγραφικό πλάτος και 2'→ 2.831 στο γεωγραφικό μήκος). Τις περιοχές αυτές τις ονομάζουμε στοιχεία του πλέγματος.

- υπολογισμός των συνιστωσών της μέσης ταχύτητας του νερού σε κάθε στοιχείο του γεωγραφικού πλέγματος. Σε κάθε σημείο του γεωγραφικού πλέγματος (i, j) υπάρχουν δεδομένα των συνιστωσών των ταχυτήτων (u_{ijk}, v_{ijk}) του νερού για 24 βάθη $(depth_{ij} \cdot z_k)$ μέχρι τον πυθμένα. Για την εκτίμηση της μέσης ταχύτητας σε κάθε σημείο του γεωγραφικού πλέγματος χωρίζουμε την στήλη νερού που αντιστοιχεί στο σημείο αυτό σε 24 στοιχεία όγκου νερού όπως φαίνεται στην παρακάτω εικόνα και θεωρούμε ομοιόμορφη κατανομή των ταχυτήτων του νερού στον όγκο του κάθε στοιχείου.



Σχήμα Π6.4. Σχηματική απεικόνιση του υπολογισμού της μέσης ταχύτητας σε κάθε στοιχείο του γεωγραφικού πλέγματος στο κατακόρυφο άζονα ενός πλεγματικού σημείου.

Έτσι οι συνιστώσες της μέσης ταχύτητας στην στήλη νερού για κάθε σημείο του γεωγραφικού πλέγματος υπολογίζονται από τις σχέσεις:

$$\bar{u}_{ij} = \sum_{k=1}^{24} u_{ijk} \cdot z_k$$
$$\bar{v}_{ij} = \sum_{k=1}^{24} v_{ijk} \cdot z_k$$

Με τον τρόπο αυτό ουσιαστικά το πρόβλημα του υπολογισμού της συνολικής ροής στο επίπεδο των συνόρων μετατρέπεται σε δισδιάστατο.



Σχήμα Π6.5. Παράδειγμα υπολογισμού των διανυσμάτων της μέσης ταχύτητας ροής στην στήλη του κάθε στοιχείου γεωγραφικού πλέγματος (δεξιά) από το αρχικό διακριτοποιημένο, ως προς το βάθος (24 επίπεδα), πεδίο ταχυτήτων. Στο σχήμα του αρχικού πεδίου (αριστερά) απεικονίζεται το επιφανειακό επίπεδο ταχυτήτων για το μήνα Νοέμβριο.

 ορισμός περιοχών πραγματοποίησης των υπολογισμών. Σε αυτό το σημείο ο κώδικας δέχεται ως δεδομένα εισόδου τις συντεταγμένες των αρχικών και τελικών σημείων που ορίζουν τις ευθείες που αποτελούν τα σύνορα των υποπεριοχών.

ενεργοποίηση των στοιχείων που διαπερνούνται από τα όρια των περιοχών.
 Με αυτό τον τρόπο επιλέγονται μόνο τα σημεία του γεωγραφικού πλέγματος από τα οποία διέρχονται οι ευθείες που ορίζουν τα σύνορα των υποπεριοχών καθώς και οι υπολογιζόμενες τιμές του διανύσματος των ταχυτήτων.

υπολογισμός της κάθετης στα όρια των περιοχών συνιστώσας των ταχυτήτων.
 Για τα επιλεγμένα στοιχεία του πλέγματος, το διάνυσμα της ταχύτητας αναλύεται στην κάθετη και παράλληλη με την διερχόμενη συνοριακή γραμμή συνιστώσα και κατόπιν η κάθετη συνιστώσα αποθηκεύεται σε νέο πίνακα στοιχείων γεωγραφικού πλέγματος που ανήκουν στην ίδια συνοριακή γραμμή.

 υπολογισμός επιφάνειας ορίων. Για κάθε στοιχείο γεωγραφικού πλέγματος που ανήκει στα ενεργοποιημένα σημεία της γραμμής υπολογίζεται το μήκους των ορίων που διέρχεται από αυτό. Κατόπιν, το μήκος πολλαπλασιάζεται με το βάθους που αντιστοιχεί στο στοιχείο αυτό και προσδιορίζεται η επιμέρους επιφάνεια.



Σχήμα Π6.6. Ενεργοποίηση των στοιχείων του γεωγραφικού πλέγματος που αντιστοιχούν στα σύνορα των υποπεριοχών και υπολογισμός των επιμέρους κάθετων συνιστωσών της μέσης ταχύτητας και του μήκους του συνόρου που διέρχεται από το κάθε στοιχείο.

- υπολογισμός ροής. Οι επιμέρους επιφάνειες που προσδιορίστηκαν στο προηγούμενο βήμα, πολλαπλασιάζονται με την αντίστοιχη κάθετη συνιστώσα της ταχύτητας που αντιστοιχεί στο κάθε ενεργοποιημένο στοιχείο γεωγραφικού πλέγματος, υπολογίζοντας έτσι τις επιμέρους κάθετες ροές. Αθροίζοντας αλευρικά της επιμέρους ροές των ενεργοποιημένων στοιχείων της κάθε συνοριακής γραμμής, προκύπτει η μέση ροή σε κάθε σύνορο, ενώ από το πρόσημο προσδιορίζεται και η κατεύθυνσή του (από ή προς δεδομένη υποπεριοχή).



Σχήμα Π6.7. Υπολογισμός των μέσων ροών σε κάθε υποπεριοχή για τον μήνα Νοέμβριο.

Κώδικας υπολογισμού

(στο αρχείο εισόδου Input.xls δίνονται οι συντεταγμένες σε δεκαδική μορφή των αρχικών και τελικών σημείων των συνοριακών γραμμών που ορίζουν της υποπεριοχές)

```
function pro
delete(findobj('UserData', 'pro'))
month = {'JAN', 'FEB', 'MAR', 'APR', 'MAY', 'JUN', 'JUL', 'AUG', 'SEP', 'OCT', 'NOV', 'DEC'};
InputFile='Input.xls';
In = xlsread(InputFile,1);
for ii=1:size(month,2)
    DataFile=['THER ',month{ii},'2008'];
Figure(ii)=figure('UserData', 'pro', 'Name', DataFile, 'units', 'normalized', 'outerposition
',[0 0 1 1]);
    for jj=1:size(In,1)
BeginPoint=In(jj,1:2);
EndPoint=In(jj,3:4);
[depth,alat,alon,zz,u,v]=ReadData(DataFile);
[Surface, duVelo, dvVelo, uVelo, vVelo, dFlux, Flux]=FluxCal(u, v, zz, depth, alon, alat, BeginPoi
nt,EndPoint);
F(ii,jj)=Flux;
size(dFlux)
[umean,vmean]=MeanVelocities(u,v,zz,depth);
Gr=selection(alon,alat,BeginPoint,EndPoint,DataFile);
plots(Flux,umean,vmean,alon,alat,depth,BeginPoint,EndPoint)
    end
end
xlswrite(InputFile, zeros(100, 12), 2)
output=[1:12; F'];
xlswrite(InputFile,output,2)
winopen (InputFile)
    function [depth,alat,alon,zz,u,v]=ReadData(file)
        f=fopen(file,'r');
A = fscanf(f, '%f',[5,inf]);
        im=28;jm=31;kbm1=24;
        k=1;
        for j=1:jm
             for i=1:im
                 depth(j,i) = A(k);
                 k=k+1;
             end
        end
        for j=1:jm
             for i=1:im
                 alat(j,i) = A(k);
                 k=k+1;
             end
        end
        for j=1:jm
             for i=1:im
                 alon(j,i) = A(k);
                 k=k+1;
             end
        end
        for i=1:kbm1
             zz(i)=A(k);
             k=k+1;
        end
        for q=1:kbm1
             for j=1:jm
                 for i=1:im
                     u(j,i,q)=A(k);
                     k=k+1;
                 end
             end
             for j=1:jm
                 for i=1:im
                     v(j,i,q)=A(k);
                     k=k+1;
                 end
             end
        end
        fclose('all')
    end
    function plots (Flux, umean, vmean, alon, alat, depth, BeginPoint, EndPoint)
```

```
plotArrows(umean, vmean, alon, alat)
        hold on
        plotBorders (BeginPoint, EndPoint)
        plotFlux (Flux, BeginPoint, EndPoint)
        w=-double(Gr);
        plot3(alon(w~=0), alat(w~=0), w(w~=0), 'o')
        axis equal
        function plotArrows(umean, vmean, alon, alat)
            quiver(alon,alat,umean.*depth,vmean.*depth,'Color','b')
            lim=[min(min(alon)) max(max(alon)) min(min(alat)) max(max(alat))];
            set(gca, 'XLim', lim(1:2), 'YLim', lim(3:4))
        end
        function plotBorders(BeginPoint,EndPoint)
           p=plot([BeginPoint(1) EndPoint(1)],[BeginPoint(2)
EndPoint(2)],'Color','red');
            set(p,'Linewidth',2)
        end
        function plotFlux(Flux,BeginPoint,EndPoint)
            A=[BeginPoint(1) BeginPoint(2) 0];
            B=[EndPoint(1) EndPoint(2) 0];
            G=[(EndPoint(1)+BeginPoint(1))/2 (EndPoint(2)+BeginPoint(2))/2];
            text(G(1),G(2),['\leftarrow b',num2str(jj)
                                                         ' = '
num2str(round(Flux),7)], 'HorizontalAlignment', 'left')
            Z=cross(A,B)/(sqrt(dot(A,A))*sqrt(dot(B,B)));
            AB=B-A:
            V=-cross(AB,Z)*Flux*5000/Surface/(sqrt(dot(AB,AB)));
            %p=quiver(G(1),G(2),uVelo/10000,vVelo/10000);
            p=quiver(G(1),G(2),V(1),V(2));
            set(p,'Linewidth',2)
        end
        function plotDepth(alon,alat,depth)
                mesh(alon, alat, depth)
            end
    end
    function GridPoints=selection(alon,alat,BeginPoint,EndPoint,file)
        xA=BeginPoint(1);
        yA=BeginPoint(2);
        xB=EndPoint(1):
        vB=EndPoint(2);
        AB=[xB-xA yB-yA 0];
        for i=1:size(alon,1)
            for j=1:size(alon,2)
                xG=alon(i,j);
                yG=alat(i,j);
                AG=[xG-xA yG-yA 0];
                q=cross(AG,AB)/sqrt(dot(AB,AB));
                Dist(i,j) = abs(q(3));
            end
        end
        pix=abs(alat(1,1)-alat(2,1))
        if abs(yA-yB)>=pix
            GridPoints=( alat>=min(yA,yB) & alat<=max(yA,yB) & Dist<=sqrt(2)*pix/2);</pre>
        elseif abs(xA-xB)>=pix
        GridPoints=(alon<=max(xA,xB) & alon>=min(xA,xB) & Dist<=sqrt(2)*pix/2);</pre>
        else
            'dggffg'
        A=sqrt((alat-yA).^2+(alon-xA).^2);
        B=sqrt((alat-yB).^{2}+(alon-xB).^{2});
            GridPoints= (A<=sqrt(2)*pix/2 | B<=sqrt(2)*pix/2) & Dist<=sqrt(2)*pix/2;
            aaaa=sum(sum(GridPoints))
        end
    end
    function [umean, vmean]=MeanVelocities(u, v, zz, depth)
        dzz=abs(zz(1));
        for i=1:length(zz)-1
            dzz(i+1)=abs(zz(i+1)-zz(i));
        end
        for i=1:length(zz)
            u(:,:,i)=u(:,:,i)*dzz(i);
            v(:,:,i)=v(:,:,i)*dzz(i);
        end
        umean=sum(u,3);
        vmean=sum(v,3);
    end
    function [dSurf,Surface]=SurfaceCal(depth,alon,alat,BeginPoint,EndPoint)
        dSurf=0;
```

```
GridPoints=double(selection(alon, alat, BeginPoint, EndPoint));
        xA=BeginPoint(1);
        yA=BeginPoint(2);
        xB=EndPoint(1);
        yB=EndPoint(2);
        AB=[xB-xA yB-yA 0];
        a=(yB-yA)/(xB-xA);
        b=(yA*xB-yB*xA)/(xB-xA);
        pix=abs(alat(1,1)-alat(2,1));
        if a~=0 && (xB-xA)~=0
            for i=1:size(GridPoints,1)
                for j=1:size(GridPoints,2)
                     if GridPoints(i,j)==1
                         xG=alon(i,j);
                         yG=alat(i,j);
                         x1=xG-pix/2;
                         y1=a*x1+b;
                         x3=xG+pix/2;
                         y3=a*x3+b;
                         y2=yG-pix/2;
                         x2=(y2-b)/a;
                         y4=yG+pix/2;
                         x4 = (y4 - b) / a;
                         s=[x1 x2 x3 x4;y1 y2 y3 y4];
                         G=[xG xG xG xG;yG yG yG yG];
                         [~,e]=sort(dot(s-G,s-G,1));
                         s=s(:,e);
                         x1=s(1,1);
                         x2=s(1,2);
                         y1=s(2,1);
                         y2=s(2,2);
                         Distance(i,j)=sqrt(((x1-x2)*103100)^2+((y1-y2)*111200)^2);
                         dSurf(i,j)=Distance(i,j)*depth(i,j);
                    end
                end
            end
        else
            dSurf=pix*103100*(depth.*GridPoints);
        end
        Surface=sum(sum(dSurf));% in meters
    end
    function
[Surface, duVelo, dvVelo, uVelo, vVelo, dFlux, Flux]=FluxCal(u, v, zz, depth, alon, alat, BeginPoi
nt, EndPoint)
        dFlux=0;
        [umean,vmean]=MeanVelocities(u,v,zz,depth);
        [dSurf,Surface]=SurfaceCal(depth,alon,alat,BeginPoint,EndPoint);
        %size(dSurf)
        for i=1:size(dSurf,1)
            for j=1:size(dSurf,2)
                if dSurf(i,j)~=0
                     velocity=[umean(i,j) vmean(i,j) 0];
                     xA=BeginPoint(1);
                    yA=BeginPoint(2);
                     xB=EndPoint(1);
                     vB=EndPoint(2);
                    AB=[xB-xA yB-yA 0];
                    if xB-xA<0
                        AB=-AB:
                     end
                     q=cross(velocity,AB)/sqrt(dot(AB,AB));
                     VertVelo=q(3);
                    dFlux(i,j)=VertVelo*dSurf(i,j);
                    duVelo(i,j)=umean(i,j).*dSurf(i,j);
                     dvVelo(i,j) = vmean(i,j).*dSurf(i,j);
                end
            end
        end
        uVelo=sum(sum(duVelo));
        vVelo=sum(sum(dvVelo));
        Flux=sum(sum(dFlux));
    end
```

```
end
```

Λίστα Πινάκων

Πίνακας 1.1. Τα σημαντικότερα φυσικά ραδιονουκλίδια εκτός ραδιενεργών σειρών (Z<82)
Πίνακας 1.2. Ποιοτικοί συντελεστές επικινδυνότητας ακτινοβολίας [ICRP, 1991]42
Πίνακας 1.3. Μέσες τιμές ετήσιας ενεργού δόσης στις ΗΠΑ και τον Καναδά [NCRP, 1987]43
Πίνακας 1.4. Κατηγοριοποίηση των όρων της γενικής δομής του ορισμού της ευαισθησίας για διαφορετικούς τύπους εφαρμογών ραδιοοικολογικών εκτιμήσεων45
Πίνακας 2.1. Πλεονεκτήματα και μειονεκτήματα μέτρησης ²¹⁰ Pb με φασματοσκοπία- α και -γ
Πίνακας 2.2. Βασικές υποθέσεις μοντέλων ραδιοχρονολόγησης με ²¹⁰ Pb _{ex} 90
Πίνακας 3.1. Τεχνικά χαρακτηριστικά και ερευνητικός εξοπλισμός του σκάφους Ω/Κ ΑΙΓΑΙΟ116
Πίνακας 3.2. Σύγκριση τεχνικών χαρακτηριστικών τυπικών αρπαγέων ιζήματος επιφανείας117
Πίνακας 3.3. Τεχνικά χαρακτηριστικά του ανιχνευτικού συστήματος KATERINA.127
Πίνακας 3.4. Διευρυμένη κλίμακα Wentworth του μέγεθος των κόκκων του ιζήματος
Πίνακας 3.5. Χαρακτηρισμός υφής ιζημάτων σύμφωνα με την ταξινόμηση κατά Folk136
Πίνακας 3.6. Προσδιορισμός των κύριων ιχνοστοιχείων για το δείγμα αναφοράς PACS-2 με δεδομένο ότι u(C_{ref})=12.5 % και u(R_m)=5 %141
Πίνακας 3.7. Ηλεκτρονικές διατάξεις των πανομοιότυπων ανιχνευτικών διατάξεων HPGe149
Πίνακας 3.8. Τα κύρια χαρακτηριστικά και τα επίπεδα υποβάθρου των φασματόμετρων ΗPGe που χρησιμοποιήθηκαν στην παρούσα εργασία
Πίνακας 3.9. Πειραματικά τεχνικά χαρακτηριστικά των τριών συστημάτων HPGe.166
Πίνακας 4.1. Συντελεστές διόρθωσης f _a απόδοσης πηγών αναφοράς μεγάλης και μικρής γεωμετρίας για 5 διαφορετικές τιμές πυκνότητας ρ μετρούμενου δείγματος, με το σχετικό σφάλμα υπολογισμού και την μέση απόκλιση των f _a από την κεντρική τιμή για ρ=1 gr/cm ³
Πίνακας 4.2. Σύγκριση πειραματικών τιμών και θεωρητικών υπολογισμών του EFFTRAN του συντελεστή διόρθωσης πραγματικής συμπτωτικής άθροισης για τις εντονότερες φωτοκορυφές της εκτεταμένης πηγής ¹⁵² Eu/ ¹⁵⁴ Eu μεγάλης γεωμετρίας ιζήματος σε επαφή με το παράθυρο του HPGe ανιχνευτή GC5021200
Πίνακας 4.3 Συντελεστές διόρθωσης πραγματικής συμπτωτικής άθροισης f των

Πίνακας 4.3. Συντελεστές διόρθωσης πραγματικής συμπτωτικής άθροισης f_s των εντονότερων φωτοκορυφών (α) του ¹⁵²Eu και για την μικρή και μεγάλη γεωμετρία (

Πίνακας 4.5. Σύγκριση μεταξύ προσομοιωμένων και πειραματικών αποδόσεων φωτοκορυφών για τις δέκα εντονότερες ακτίνες-γ του ¹⁵²Eu......209

Πίνακας 4.6. Συντελεστές της σχέσης προσαρμογής (3.15) και του δείκτες ποιότητας R^2 των καμπύλων ογκομετρικής απόδοσης. Το σφάλμα της απόδοσης με βάση την καμπύλη προσαρμογής σε όλες τις περιπτώσεις προσδιορίζεται στο 5%......212

Πίνακας 4.8. Μέσες τιμές της ελάχιστης ανιχνευόμενης ενεργότητας MDA για δείγματα νερού (0.6 και 2.2 L) και επιτόπιας φασματοσκοπίας-γ (φασματόμετρο KATERINA) των κυριότερων ραδιονουκλιδίων μέσω ανίχνευσης των εντονότερων τους ακτίνων-γ. Συμπεριλαμβάνονται και τα MDA του ¹³⁷Cs με την μέθοδο προσυγκέντρωσης με AMP και φασματοσκοπίας-γ με διάφορους ανιχνευτές.......218

Πίνακας 5.8. Αποτελέσματα ραδιομετρίας των ιζημάτων επιφανείας του καναλιού Σαλαμίνα-Πειραιά
Πίνακας 5.9. Συγκεντρώσεις φυσικών χαρακτηριστικών και βαρέων μετάλλων στα ιζήματα επιφανείας του καναλιού Σαλαμίνα-Πειραιά
Πίνακας 5.10. Συγκεντρώσεις βαρέων μετάλλων σε διάφορες παράκτιες περιοχές της Ελλάδας
Πίνακας 6.1. Μέση μηνιαία εισροή υδάτων και ιζήματος από τους κύριους ποταμούς στον Θερμαϊκό Κόλπο, για την περίοδο Σεπτέμβριος 1997 έως Σεπτέμβριος 1998 (δεδομένα του προγράμματος METROMED, ΕΛΚΕΘΕ) [Kourafalou et al., 2004].286
Πίνακας 6.2. Μέση βιοχημική σύσταση του νερού των κύριων ποταμών στο Θερμαϊκό κόλπο[Skoulikidis, 2010]
Πίνακας 6.3. Μέση μηνιαία βροχόπτωση (mm) από το μετεωρολογικό σταθμό Θεσσαλονίκης για την περίοδο 2002-2008 (Εθνική Μετεωρολογική Υπηρεσία) [HNMS, 2014]
Πίνακας 6.4. Ταξινόμηση της ετήσιας παραγωγής ψαριών (τόνοι) στο Θερμαϊκό Κόλπο για το έτος 2008 (Εθνική Στατιστική Υπηρεσία της Ελλάδα) [NSSG, 2014].
Πίνακας 6.5. Ηλικιακή κατανομή του πληθυσμού από την απογραφή του 2001 στη Βόρεια Ελλάδα και στο νομό Θεσσαλονίκης (Εθνική Στατιστική Υπηρεσία της Ελλάδα) [NSSG, 2014]
Πίνακας 6.6. Πειραματικά δεδομένα της συγκέντρωσης ¹³⁷ Cs στο νερό, το ιζήμα, τα ψάρια και τα μύδια από την ευρύτερη περιοχή του Θερμαϊκού Κόλπου
Πίνακας 6.7. Προεπιλεγμένες τιμές συντελεστών μετανάστευσης ραδιονουκλιδίων για υποπεριοχές τύπου δεξαμενής, του μοντέλου MOIPA-PLUS
Πίνακας 6.8. Κύρια μορφολογικά και υδρολογικά χαρακτηριστικά των υποπεριοχών που περιλαμβάνονται στο ραδιολογικό πρότυπο του Θερμαϊκού Κόλπου
Πίνακας 6.9. Βαθμονομημένες τιμές παραμέτρων ¹³⁷ Cs και προεπιλεγμένες τιμές ⁹⁰ Sr , του ραδιολογικού προτύπου του Θερμαϊκού Κόλπου
Πίνακας 6.10. Ηλικιακή κατανομή του ανθρώπινου πληθυσμού για τους δήμους γύρω από το Θερμαϊκό Κόλπο και η παραγωγικότητα σε ψάρια και σε μύδια, σε κάθε θαλάσσιο διαμέρισμα
Πίνακας 6.11. Ανάλυση περιβαλλοντικής ευαισθησίας για το ¹³⁷ Cs και το 90 Sr299
Πίνακας Π1.1. Λίστα εκπεμπόμενων ακτίνων-Χ και -γ πηγών αναφοράς310
Πίνακας Π1.2. Κυριότερες φωτοκορυφές ραδιονουκλιδίων που απαντώνται σε φάσματα περιβαλλοντικών δειγμάτων312
Πίνακας Π2.1. Πειραματικές τιμές και σχετικά σφάλματα απόλυτης απόδοσης φωτοκορυφής για σημειακή πηγή σε απόσταση 25 cm από τον κρύσταλλο του ανιχνευτή, που παρουσιάζονται στο Σχήμα 3.26

Λίστα Σχημάτων

Σχήμα 1.1. Το διάγραμμα Segrè, με βάση τους χρόνους ημιζωής των πυρήνων
[BenRG, 2014]
Σχήμα 1.2. Εκθετικός νόμος ραδιενεργού αποδιέγερσης ραδιονουκλιδίων[ICT, 2010].
Σχήμα 1.3. Οι φυσικές ραδιενεργές σειρές
Σχήμα 1.4. Σχηματική αναπαράσταση του φωτοηλεκτρικού φαινομένου[FESAus,
2014
2χ ημα 1.5. 2χ ηματική αναπαραστασή της σκεσασης Compton [FESAus, 2014]32
2χ ημα 1.6. 2χ ηματική αναπαραστασή της σκεσασής Compton [Knoil, 2000]
2χ ημα 1./. 2χ ηματική αναπαραστασή της διουμης γενεσης [FESAus, 2014]33
Σχημα 1.8. Σχετική συνεισφορα της πιθανοτητάς του φωτοηλεκτρικού φαινομενου
(τ), της σκεδασης Compton (σ) και της διδυμης γενεσης (κ)κατα την αλληλεπιδραση
της ακτινοβολίας-γ με την ύλη ως συνάρτηση της ενέργειας των εκπεμπόμενων
φωτονίων [Γαζής, 2002]
Σχήμα 1.9. Ενεργειακές ζώνες ενός ενεργοποιημένου κρυσταλλικού σπινθηριστή37
Σχήμα 1.10. Απλοποιημένο ενεργειακό διάγραμμα ημιαγωγού, όπου φαίνεται το
ενεργειακό χάσμα E_g και η ενέργεια ελεύθερων ηλεκτρονίων E_{vacuum} του ημιαγώγιμου
κρυστάλλου
Σχήμα 1.11. Σταθμοί δειγματοληψιών νερού (Δ), πυρήνων ιζήματος (•) και δικτύων
επιφανειακών δειγμάτων ιζήματος (□), στην περιοχή μελέτης του ΒΑ Μεσογείου50
Σχήμα 1.12. Βαθυμετρία της περιοχής του Βόρειου Αιγαίου [Papanikolaou et. al,
2002]
Σχήμα 1.13. Σύνοψη των βασικότερων προτύπων κυκλοφορίας του Β. Αιγαίου, όπως
προέκυψε από τα αποτελέσματα ενός μεγάλου αριθμού μελετών είτε με μαθηματικές
προσομοιώσεις είτε με παρατηρήσεις πεδίου [Ανδρουλακάκης, 2011]53
Σχήμα 1.14. Βαθυμετρία (σε m) του Θερμαικού Κόλπου στο Β. Αιγαίο55
Σχήμα 1.15. (Α) Γεωγραφικός χάρτης της λεκάνης απορροής του παράκτιου
συστήματος του Θερμαϊκού Κόλπου, Β Δ Αιγαίο και (Β) Αιθολογία της περιοχής της
παράκτιας ζώνης του Θερμαϊκού κόλπου [Q: πρόσφατοι σχηματισμοί, κυρίως
προσχώσεις, αποθέσεις ποταμών, αμμόλοφοι, ηφαιστειακά συσσωματώματα; Q1:
παράκτιες, ποτάμιες, δεταϊκές και μετακινούμενες εναποθέσεις, Ρt: παλιές
προσχώσεις, σάρες, κωνικά και επίπεδα υψώματα, κυρίως Πλειστόκαινου εποχής, Ν:
μάργες, κυρίως ασβεστόλιθοι, αργιλώδεις μάργες, άμμους, ψαμμίτες, κροκαλοπαγή
Νεογενούς και,κατά τοόπους, Πλειστόκαινου εποχής, Κρ: ασβεστόλιθοι και
δολομίτες της Πελαγονικής ζώνης, Κto: ασβεστόλιθοι της ζώνης του Ολωνού και της
Πίνδου, Ba: βασικά και πολύ βασικά πυριγενή πετρώματα, Gn: γνεύσιοι,
αμφιβολίτες μαζί με κρυσταλλικούς σχιστόλιθους και κ: μάρμαρα, κρυσταλλικοί
ασβεστόλιθοι και σιπολίτες] (με βάση γεωτεκτονικό χάρτη του ΙΓΜΕ, 1989)56
Σχήμα 1.16. Βαθυμετρία του Σαρωνικού Κόλπου και του Κόλπου της Ελευσίνας58

Σχήμα 1.17. Βαθυμετρία (βάθος σε m) μαζί με τους κυριότερους ποταμούς (πανω) και σεισμο-τεκτονικός χάρτης (κάτω) του Κορινθιακού Κόλπου (• = σεισμοί >5 Σχήμα 1.18. Οι κυριότεροι ποταμοί και οι λεκάνες απορροής τους που αποστραγγίζουν στον Αμβρακικό Κόλπο (a) και απλοποιημένη γεωλογία της ευρύτερης περιοχής(b)[Kapsimalis et al., 2005]......63 Σχήμα 1.19. Βαθυμετρία (βάθος σε m) του Αμβρακικού Κόλπου (σύμφωνα με Σχήμα 1.20. (A) Τοποθεσία της λίμνης Ulubat νότια της Θάλασσας του Μαρμαρά και (B) απεικόνιση των κυριότερων ποταμών της περιοχής στης λεκάνη απορροής Susurluk, μέρος της οποίας είναι και οι μεγαλύτερες λίμνες Ulubat και Manyas [Kazanci et al., 1998].....65 Σχήμα 1.21. Βαθυμετρία (σε m) της λίμνης Ulubat [Kazanci et al., 1998]......66 Σγήμα 2.1. Παράγοντες που επηρεάζουν τη συγκέντρωση ραδιοϊσοτόπων των φυσικών ραδιενεργών σειρών στο υπόγειο νερό[Porcelli, 2008]......78 Σχήμα 2.2. Αναπαράσταση φυσικών διεργασιών εναπόθεσης ²¹⁰Pb σε υδάτινα Σχήμα 2.3. Πυκνότητα εναπόθεσης ¹³⁷Cs στο βόρειο και νότιο ημισφαίριο όπως υπολογίστηκε για την ποσότητα προϊόντων σχάσης με ατμοσφαιρικό μοντέλο Σχήμα 2.4. Παράδειγμα υλοποίησης μοντέλου περιφερειακής κλίμακας οριζόντιου πλέγματος ισαπέγωντων πεπερασμένων διαφορών (9.4 km), της Θάλασσας του Κάρα Σχήμα 2.5. Παράδειγμα πλέγματος αδόμητων πεπερασμένων στοιχείων μοντέλου τοπικής κλίμακας για τη λιμνοθάλασσα της Βενετίας, στην Ιταλία. (Στα κανάλια το πλέγμα είναι πολύ μεγαλύτερης διακριτοποίησης απ'ότι στις ευρύτερες αβαθείς Σχήμα 2.6. Παράδειγμα μοντέλου κουτιών παγκόσμιας κλίμακας, με της επιμέρους ροές βασισμένες σε υπολογισμούς HD μοντέλου, για τον Βόρειο Ατλαντικό και Σχήμα 2.7. Δομή της ροής ανάμειξης και των στοιχείων του περιβάλλοντος που εμπλέκονται στις διαδικασίες της μεταφοράς ραδιονουκλιδίων από και προς το ίζημα Σχήμα 2.8. Σχηματικό διάγραμμα της δομής του λειτουργικού συστήματος MOIRA-Σχήμα 2.9. Σχηματικό διάγραμμα της ροής δεδομένων στο μοντέλο διασποράς MARTE......109 Σχήμα 2.10. Δομή του υπομοντέλου υπολογισμού της συμπεριφοράς των ραδιονουκλιδίων μεταξύ στήλης νερού και ιζήματος πυθμένα......110 Σχήμα 3.1. Το ωκεανογραφικό σκάφος Ω/Κ ΑΙΓΑΙΟ του ΕΛΚΕΘΕ......115 Σχήμα 3.2. Χαρακτηριστικές δειγματοληψίες ιζήματος στο πεδίο με χρήση προικολήπτη βαρύτητας (δεξιά) και αρπάγες ιζήματος τύπου Ponar (κέντρο) και Van

Σχήμα 3.3. Μεθοδολογία δειγματοληψίας νερού σε διάφορα βάθη με ροζέτα Σχήμα 3.4. Ο ανιχνευτής RADAMIII (αριστερά) και γράφημα του εσωτερικού και Σχήμα 3.5. Σχηματικά διάγραμμα του περιβλήματος του κρυστάλλου (αριστερά) και του συστήματος των ηλεκτρονικών του ανιχνευτή KATERINA (δεξιά)......122 Σχήμα 3.6. Το ανιχνευτικό σύστημα μέσα στη δεξαμενή βαθμονόμησης. και Σχήμα 3.7. Ολική απόδοση του υποθαλάσσιου ανιχνευτή RADAM III στο νερό). Η συνεχής γραμμή αναπαριστά την προσαρμογή των πειραματικών σημείων με συνάρτηση υπερβολής......124 Σχήμα 3.8. Αναδίπλωση των φωτοκορυφών του 137 Cs(661.6 keV) και των 214 Bi (609.3 keV)+²⁰⁸Tl (583.1 keV) σε πειραματικό φάσμα 24 h με το πρόγραμμα Σχήμα 3.9. Πειραματικό φάσμα 3 ημερών του RADAM ΙΙΙ στη θαλάσσια περιοχή του Άθω και προσομοιωμένο φάσμα ⁴⁰Κ για μέση αλατότητα 36.4 psu......126 Σχήμα 3.10. Βαθμονομήσεις του ανιχνευτικού συστήματος KATERINA.Η ενεργειακή διακριτική ικανότητα (πάνω) και η απόδοση όγκου του ανιχνευτικού συστήματος στο νερό(κάτω), πειραματικών και προσομοιωμένων δεδομένων με καμπύλες προσαρμογής......129 Σχήμα 3.11. Πειραματικά φάσματα του ανιχνευτή KATERINA 12 h στη θάλασσα. Σχήμα 3.12. Συσκευή δόνησης κοσκινίσματος με επαλληλία κόσκινων (αριστερά) και Σχήμα 3.14. Το υδραυλικό πιεστήριο (αριστερά) και το φασματόμετρο φθορισμού ακτίνων-Χ (δεξιά) που χρησιμοποιήθηκε για τις μετρήσεις των βαρέων μετάλλων στο ίζημα.....142 Σχήμα 3.15. Γεωμετρίες απευθείας μέτρησης δειγμάτων νερού – 2.2 L και 0.6 L (αριστερά) – και ιζήματος – 5.4 (κέντρο) και 65.4 cm³ (δεξιά) – με φασματοσκοπία-γ. Σχήμα 3.16. Δοχεία ογκομέτρησης και αποθήκευσης δειγμάτων νερού 20 L (αριστερά), φιαλίδια ιχνηθέτη 134 Cs 1 ml (κέντρο πάνω), δόση απορροφητή AMP 15 gr (κέντρο κάτω) και δείγμα προσυγκεντρωμένου ιζήματος ¹³⁷Cs πριν και μετά την πλήρωσή της με πούδρα (δεξιά).145 Σχήμα 3.17. Σχηματικό διάγραμμα τυπικής πειραματικής ανιχνευτικής διάταξης φασματοσκοπίας-γ με p-τύπου HPGe......146 Σχήμα 3.18. Διάγραμμα της προέλευσης του υποβάθρου στη φασματοσκοπία με Σχήμα 3.19. Οι ανιχνευτικές διατάξεις του GEM-FX8530P4 με τις αντίστοιχες Σχήμα 3.20. Σύγκριση πειραματικών φασμάτων υποβάθρου (κανονικοποιημένα ανά ώρα) των ανιχνευτικών διατάξεων του ΕΛΚΕΘΕ (HCMR) και του ΕΜΠ (NTUA).

Σγήμα 3.21. Σύγκριση πειραματικών φασμάτων υποβάθρου (κανονικοποιημένα ανά ώρα) μέσα στη θωράκιση δύο διαφορετικών ανιχνευτών HPGe στο εργαστήριο του ЕМП......152 Σχήμα 3.23. Σύγκριση φασμάτων υποβάθρου (κανονικοποιημένα ανά ώρα) σε θωράκιση ανοιχτού τύπου στο εργαστήριο του ΕΛΚΕΘΕ (HCMR)και του ΕΚΕΦΕ Σχήμα 3.24. Σειρά Ανιχνευτικών διατάξεων HPGe και εσωτερικό θωράκισης στο υπόγειο εργαστήριο φασματοσκοπίας-γ του LNGS στο Gran Sasso της Ιταλίας.....154 Σχήμα 3.25. Φάσματα υποβάθρου ακτινοβολίας-γ (κανονικοποιημένα ανά ώρα) χωρίς Σχήμα 3.26. Πειραματικές τιμές και καμπύλες απόλυτης απόδοσης των ανιχνευτών συστημάτων HPGe για σημειακή πηγή σε απόσταση 25 cm από την πρόσοψη του κρυστάλλου ανίχνευσης......164 Σχήμα 3.27. Διαγράμματα γραμμικότητας και FWHM των ανιχνευτικών συστημάτων HPGe......165 Σχήμα 3.28. Πειραματικές τιμές και καμπύλες απόλυτης απόδοσης των ανιχνευτών συστημάτων HPGe για μικρή και μεγάλη γεωμετρία ιζήματος σε επαφή με την Σχήμα 3.29. Το πειραματικό φάσμα του δείγματος PER2B, στο οποίο βρέθηκαν υψηλές συγκεντρώσεις U και μετρήθηκαν οι χαρακτηρίστηκες φωτοκορυφές του ²³⁸U (1001 keV tou 234m Pa, 63.3 keV tou 234 Th kai 934 keV tou 214 Bi) kai tou 235 U Σχήμα 3.30. Πειραματικές τιμές και καμπύλες απόλυτης απόδοσης του ανιχνευτή GEM-FX8530P4 για μεγάλη γεωμετρία ιζήματος σε επαφή με την πρόσοψη του κρυστάλλου από δύο διαφορετικές περιόδους μέτρησης στο εργαστήριο του ΕΛΚΕΘΕ με μειωμένη τάση λειτουργίας του ανιχνευτή και με τη χρήση της πηγής Σχήμα 3.31. Πειραματικές τιμές και καμπύλες απόλυτης απόδοσης του ανιχνευτή GEM-FX8530P4 για μεγάλη και μικρή γεωμετρία νερού σε επαφή με την πρόσοψη του κρυστάλλου στο εργαστήριο του ΕΛΚΕΘΕ176 Σγήμα 3.32. Απεικόνιση πειραματικού φάσματος ακτίνων-γ, ραδιενεργής πηγή που διασπάται με εκπομπή ποζιτρονίου και ακολουθείται από εκπομπή δύο ακτίνων-γ διαφορετικών ενεργειών. Τα κύρια χαρακτηριστικά του φάσματος είναι (α) η αθροιστική κορυφή ακτινοβολίας-γ ενέργειας 2.4 MeV, (b) το FEP της ακτίνας-γ ενέργειας 2.1 MeV, (c) η πρώτη και (d) η δεύτερη κορυφή διαφυγής από την ακτίνα-γ ενεργείας 2.1 MeV, (e) η κορυφή εξαύλωσης στα 0.511 MeV από αλληλεπιδράσεις ποζιτρονίων έξω από τον ανιχνευτή, (f) το FEP ακτίνων-γ ενέργειας 0.30 MeV, (i) η κορυφή οπισθοσκέδασης 180° από εξωτερική σκέδαση των ακτίνων-γ ενέργειας 2.1 MeV, (g) το άκρο Compton για ακτίνες-γ ενέργειας 2.1 MeV (το άκρο Compton για τις ακτίνες-γ ενέργειας 0.30 MeV επικαλύπτεται από την ακτινοβολία οπισθοσκέδασης) και (h) οι ακτίνες-Χ προερχόμενες από αλληλεπιδράσεις φθορισμού με την εξωτερική μολύβδινη θωράκιση [Ehmann and Vance, 1991]......178

Σχήμα 4.1. Τα μέρη του μοντέλου προσομοίωσης της ανιχνευτικής διάταξης με το EFFTRAN: 1 - κρύσταλλος HPGe, 2 - εσωτερική οπή, 3 - εσωτερική ανενεργή περιοχή (n-επαφή), $4 - \pi \lambda$ άγια ανενεργή περιοχή, 5 -ανενεργή περιοχή παραθύρου, 6 στήριξη κρυστάλλου, 7 – περίβλημα ανιχνευτή, 8 – παράθυρο ανιχνευτή, 9 – δείγμα, 10 -δοχείο δείγματος, a, b, c, d, f -εικονικοί όγκοι (οι διαστάσεις δεν είναι υπό κλίμακα, ενώ ο χώρος γύρο από τον ανιχνευτή θεωρείται ότι είναι γεμάτος με Σχήμα 4.2. Ενεργειακά διαγράμματα αποδιέγερσης (β- διάσπασης και σύλληψη ηλεκτρονίου EC) του ¹⁵²Eu. Οι ενεργειακές στάθμες πάνω από τα 1371.7 keV μαζί με τις αντίστοιχες ακτίνες-γ, χάριν απλότητας, δεν συμπεριλαμβάνονται στο κανάλι Σγήμα 4.3. Το ενεργειακά διαγράμματα αποδιέγερσης (β- διάσπαση) του 134Cs. Το κανάλι αποδιέγερσης σύλληψης ηλεκτρονίου ΕC δεν συμπεριλαμβάνεται λόγω της Σχήμα 4.4. Ακτινογραφία του ανιχνευτή HPGe μοντέλου GC5021, Canberra του Σχήμα 4.6. Σκαρίφημα διαστάσεων, μετά από μέτρηση, των επιμέρους στοιχείων της ανιχνευτικής διάταξης, που κρίθηκαν απαραίτητα και συμπεριελήφθησαν στην προσομοίωση με τον κώδικα MCNP5......205 Σχήμα 4.7. Σχηματική αναπαράσταση της προσομοιωμένης ανιχνευτικής διάταξης HPGe για τiς γεωμετρίες μεγάλου και μικρού μπουκαλιού σε επαφή, με το Σχήμα 4.8. Πειραματικό (μαύρη γραμμή, μπροστά) και προσομοιωμένο (γκρι γραμμή, στο φόντο) φάσμα ενεργειακής βαθμονόμησης με ¹⁵²Eu και ¹⁵⁴Eu για Σχήμα 4.9. Καμπύλες ογκομετρικής απόδοσης (εV) του εργαστηριακού ανιχνευτικού συστήματος για γεωμετρίες 0.6 και 2.2 L μέτρησης νερού και του επιτόπιου υποβρύγιου φασματόμερου-γ KATERINA......211 Σγήμα 4.10. Ελάγιστες ανιγνεύσιμες ενεργότητες για συγκεκριμένα ραδιονουκλίδια $(^{208}$ Tl, 214 Pb, 214 Bi, 228 Ac και 40 K), ως συνάρτηση του χρόνου, χρησιμοποιώντας δείγματα νερού 2.2 L. Σε όλες τις σειρές δεδομένων έχει προσαρμοστεί θεωρητική καμπύλη της μορφής $y = ax^b$ (με δείκτη ποιότητας προσαρμογής $\overline{R}^2 > 0.99$ για όλες Σχήμα 5.1. Σταθμός δειγματοληψίας νερού SA-G στην ακτή Βάρης, Σαρωνικός Σχήμα 5.2. Αποτελέσματα μετρήσεων ¹³⁷Cs, αλατότητας και θερμοκρασίας ως προς το βάθος (σε m) από τον σταθμό μέτρησης SA-G στην ακτή Γλυφάδας......224 Σχήμα 5.3. Σύνολο μετρήσεων ¹³⁷Cs σε επιφανειακά ύδατα του Σαρωνικού Κόλπου μετά το ατύχημα του Chernobyl (με ανοιχτό κύκλο σημειώνεται η μέτρηση της Σχήμα 5.4. Χρονική εξέλιξη των συγκεντρώσεων ¹³⁷Cs σε επιφανειακά και βαθύτερα ύδατα του εξωτερικού Σαρωνικού Κόλπου με βάση πρόσφατες μετρήσεις (παρούσα

Σχήμα 5.5. Σταθμοί δειγματοληψίας νερού ΤΗ-Ρ στο λιμάνι Θεσσαλονίκης και ΚΑΤ
στην θαλάσσια περιοχή της Κατερίνης, Θερμαϊκός Κόλπος
Σχήμα 5.6. Αποτελέσματα μετρήσεων ¹³⁷ Cs, αλατότητας και θερμοκρασίας ως προς
το βάθος (σε m) από τον σταθμό μέτρησης ΤΗ-Ρ στο λιμάνι Θεσσαλονίκης227
Σχήμα 5.7. Αποτελέσματα μετρήσεων ¹³⁷ Cs και καταγραφής προφίλ αλατότητας,
θερμοκρασίας και διαλυτού οξυγόνου ως προς το βάθος (σε m) από τον σταθμό
μέτρησης ΚΑΤ στην θαλάσσια περιοχή της Κατερίνης
Σχήμα 5.8. Σύνολο μετρήσεων ¹³⁷ Cs στην υδάτινη στήλη του Θερμαϊκού Κόλπου
μετά το ατύχημα του Chernobyl (με ανοιχτό κύκλο σημειώνεται η μέτρηση της
παρούσας εργασίας)
Σχήμα 5.9. Σταθμοί δειγματοληψίας νερού DB2 στη βαθειά λεκάνη και ATH στην
ευρύτερη θαλάσσια περιοχή του Άθω, Βόρειο Αιγαίο
Σχήμα 5.10. Αποτελέσματα μετρήσεων ¹³⁷ Cs, αλατότητας και θερμοκρασίας ως προς
το βάθος (σε m) από τον σταθμό μέτρησης ΑΤΗ στην θαλάσσια περιοχή του Άθω.
Σχήμα 5.11. Σύνολο μετρήσεων ¹³⁷ Cs στην υδάτινη στήλη από επιλεγμένες περιοχές
του Βόρειου Αιγαίου μετά το ατύχημα του Chernobyl (με ανοιχτό κύκλο σημειώνεται
η μέτρηση από τη θαλάσσια περιοχή του Άθω της παρούσας εργασίας)
Σχήμα 5.12. Ενεργειακά φάσματα ακτίνων-γ σε 4π γεωμετρία στο νερό
κανονικοποιημένα στο χρόνο για τα δύο in situ φασματόμετρα NaI, KATERINA και
RADAM III, στο σταθμό ΑΤΗ
Σχήμα 5.13. Αποτελέσματα μετρήσεων ¹³⁷ Cs και καταγραφής προφίλ αλατότητας και
θερμοκρασίας ως προς το βάθος (σε m) από τον σταθμό μέτρησης DB2 στη βαθειά
λεκάνη του Άθω
Σχήμα 5.14. Συσχέτιση των συγκεντρώσεων ¹³⁷ Cs στην υδάτινη στήλη με την
αλατότητα και τη θερμοκρασία για το σύνολο των μετρήσεων του ερευνητικού
διάπλου το χειμώνα του 2003237
Σχήμα 5.15. Σταθμός δειγματοληψίας πυρήνα ιζήματος S2 στον Κόλπο της
Ελευσίνας
Σχήμα 5.16. Κατακόρυφη διασπορά φυσικών ραδιονουκλιδίων του πυρήνα ιζήματος
S2 στον Κόλπο της Ελευσίνας
Σχήμα 5.17. Κατακόρυφη διασπορά 210 Pb _{ex} και 137 Cs του πυρήνα ιζήματος S2 στον
Κόλπο της Ελευσίνας
Σχήμα 5.18. Προσδιορισμός του μέσου ρυθμού ιζηματογένεσης (SAR και MAR) με
βάση τα πρότυπα CFCS, CR, PF και CIC για τον πυρήνα ιζήματος S2 στον Κόλπο της
Ελευσίνας
Σχήμα 5.19. Χρονολόγηση του πυρήνα ιζήματος S2 στον Κόλπο της Ελευσίνας με
βάση τις συγκεντρώσεις των ²¹⁰ Pbex και ¹³⁷ Cs243
Σχήμα 5.20. Σταθμοί δειγματοληψίας πυρήνων ιζήματος ΑΜ και LT-10 στον
Θερμαϊκό Κόλπο
Σχήμα 5.21. Κατακόρυφη διασπορά φυσικών ραδιονουκλιδίων του πυρήνα ιζήματος
ΑΜ2 στον Κόλπο Θεσσαλονίκης
Σχήμα 5.22. Προφίλ ²¹⁰ Pbex και ¹³⁷ Cs του πυρήνα ιζήματος AM2 στον Κόλπο
Θεσσαλονίκης

Σχήμα 5.23. Προσδιορισμός του μέσου ρυθμού ιζηματογένεσης (SAR και MAR) με
βάση τα πρότυπα CFCS, CR, PF και CIC για τον πυρήνα ιζήματος AM2 στον Κόλπο
Θεσσαλονίκης
Σχήμα 5.24. Κατακόρυφη διασπορά ¹³⁷ Cs στο σύνολο των πυρήνων ιζήματος AM
στον Κόλπο Θεσσαλονίκης
Σχήμα 5.25. Χρονολόγηση του πυρήνα ιζήματος ΑΜ2 και ΑΜ10 στον Κόλπο
Θεσσαλονίκης με βάση τα προφίλ συγκεντρώσεων των 210 Pb _{ex} και 137 Cs248
Σχήμα 5.26. Κατακόρυφη διασπορά φυσικών ραδιονουκλιδίων του πυρήνα ιζήματος
LT-10 στην παραλία Λιτόχωρου
Σχήμα 5.27. Προσδιορισμός του μέσου ρυθμού ιζηματογένεσης με βάση το πρότυπο
CFCS και το κατακόρυφο προφίλ του ¹³⁷ Cs για τον σταθμό LT-10 κοντά στην
παραλία του Λιτόχωρου
Σχήμα 5.28. Χρονολόγηση του πυρήνα ιζήματος LT-10 στην παραλία του Λιτόχωρου
με βάση τα προφίλ συγκεντρώσεων των 210 Pb _{ex} και 137 Cs250
Σχήμα 5.29. Σταθμός δειγματοληψίας πυρήνα ιζήματος COR82b στον Κορινθιακό
Κόλπο
Σχήμα 5.30. Κατακόρυφη διασπορά ραδιονουκλιδίων του πυρήνα ιζήματος COR82b
στον Κορινθιακό Κόλπο
Σχήμα 5.31. Σταθμοί δειγματοληψίας πυρήνων ιζήματος 13Α και 13Β στην είσοδο
και στο κέντρο του Αμβρακικού Κόλπου, αντίστοιχα
Σχήμα 5.32. Κατακόρυφη διασπορά φυσικών ραδιονουκλιδίων των πυρήνων
ιζήματος 13Α και 13Β στον Αμβρακικό Κόλπο253
Σχήμα 5.33. Προσδιορισμός του μέσου ρυθμού ιζηματογένεσης με βάση το πρότυπο
CFCS και το κατακόρυφο προφίλ του ¹³⁷ Cs για τον σταθμό 13Α στον πορθμό του
Αμβρακικού Κόλπου
Σχήμα 5.34. Προσδιορισμός του μέσου ρυθμού ιζηματογένεσης με βάση το πρότυπο
CFCS και το κατακόρυφο προφίλ του ¹³⁷ Cs για τον σταθμό 13B στον κέντρο του
Αμβρακικού Κόλπου
Σχήμα 5.35. Σταθμός δειγματοληψίας πυρήνα ιζήματος ΠΝΤ-Κ12-07 στη Λίμνη
Ulubat
Σχήμα 5.36. Κατακόρυφη διασπορά φυσικών ραδιονουκλιδίων του πυρήνων ιζήματος
ΠΝΤ-Κ12-07 στη Λίμνη Ulubat
Σχήμα 5.37. Προφίλ ²¹⁰ Pb _{ex} και ¹³⁷ Cs του πυρήνα ιζήματος ΠΝΤ-Κ12-07 στη Λίμνη
Ulubat
Σχήμα 5.38. Προσδιορισμός του μέσου ρυθμού ιζηματογένεσης (SAR και MAR) με
βάση τα πρότυπα CFCS, CR, PF και CIC για τον πυρήνα ιζήματος ΠΝΤ-Κ12-07 στη
Λίμνη Ulubat258
Σχήμα 5.39. (α) Θαλάσσιο τμήμα της ακτής του αερολιμένα "Μακεδονία" στο
ανατολικό τμήμα του Κόλπου της Θεσσαλονίκης και (β) λεπτομερής βαθυμετρία και
θέσεις δειγματοληψίας
Σχήμα 5.40. Οριζόντια κατανομή του (a) μέσου μεγέθους κόκκου (Mz), (b) του
ποσοστού οργανικού άνθρακα (C_{org}) και (c) της ενεργότητας του ^{137}Cs στα
επιφανειακά ιζήματα του κόλπου της Θεσσαλονίκης. Οι μαύροι κύκλοι αντιστοιχούν

στις θέσεις δειγματοληψίας, ενώ οι χαμηλότερες τιμές της κλίμακας στα γραφήματα
αντιπροσωπεύουν τα κάτω όριο ανίχνευσης265
Σχήμα 5.41. Συσχέτιση συνολικής επιφανειακής εναπόθεσης ¹³⁷ Cs με το μέσο
μέγεθος κόκκου ιζήματος
Σχήμα 5.42. Η θαλάσσια περιοχής μελέτης στον πορθμό Σαλαμίνας-Πειραιά με τα
σημεία δειγματοληψίας στην περιοχή Κερατσινίου-Δραπετσώνας (σταθμοί KER) και
του καναλιού του Περάματος (σταθμοί Χ), στο ΒΑ Σαρωνικό Κόλπο
Σχήμα 5.43. Οριζόντια εκτιμούμενη κατανομή των φυσικών ραδιονουκλιδίων (²²⁶ Ra,
232 Th, 253 U, 40 K) και των ραδιονουκλιδίων ατμοσφαιρικής κατακρήμνισης
(¹³⁷ Cs, ²¹⁰ Pb _{ex}) στον πορθμό Σαλαμίνας-Πειραιά. Οι μαύροι κύκλοι αντιστοιχούν
στους σταθμούς δειγματοληψίας
Σχήμα 5.44. Εκτιμούμενη ποιότητα ιζήματος του πυθμένα στον πορθμό Σαλαμίνας-
Πειραιά με βάση τους δείκτες ποιότητας PLI και SQI, όπως προσδιορίστηκαν για τις
συγκεντρώσεις των κυριότερων βαρέων μετάλλων στην περιοχής
Σχήμα 5.45. Συσχέτιση ενεργότητας ²¹⁰ Pb _{ex} και συγκεντρώσεων στοιχειακού Pb στα
ιζήματαα του πυθμένα στον πορθμό Σαλαμίνας-Πειραιά. Στη γραμμική προσαρμογή
των δεδομένων δεν συμπεριλαμβάνονται τα σημεία KER-2, KER-3, X-4 και X-17.
Σχήμα 5.46. Συσχέτιση ενεργότητα ²⁴⁰ K και ²³² Th στα ιζήματαα του πυθμένα στον
πορθμό Σαλαμίνας-Πειραιά
Σχήμα 5.47. Συσχέτιση του ραδιολογικού παράγοντα F με το ποσοστό της άμμου στα
ιζήματα του πυθμένα στον πορθμό Σαλαμίνας-Πειραιά
Σχήμα 5.48. Εκτιμούμενη υφή ιζήματος πυθμένα με βάση τον ραδιολογικό
παράγοντα F
Σχήμα 6.1. Μοντέλο-κουτιών πέντε ποταμών (R1-R5) και πέντε θαλάσσιων
τμημάτων (1-5) του Θερμαϊκού Κόλπου, μέχρι την ισοβαθή γραμμή των 150 m, με
την κύρια κυκλοφορία υδάτων
Σχήμα 6.2. Μέση μηνιαία ατμοσφαιρική θερμοκρασία από 4 μετεωρολογικούς
σταθμούς στο Βόρειο Αιγαίο (Εθνική Μετεωρολογική Υπηρεσία) [HNMS, 2014].287
Σχήμα 6.3. Διάγραμμα ροής του Βόρειου Αιγαίουυ οργανωμένο σε 40 λειτουργικές
ομάδες ανάλογα με το τροφικό επίπεδο και τον πελαγικό ή βενθοπελαγικό οικότοπο
διαβίωσης. Οι σύνδεσμοι δείχνουν ροές >10% για κάθε ομάδα [Tsagarakis, et al.,
2010]
Σχήμα 6.4. Εκτιμήσεις μοντέλων της (α) ετήσιας μέσης συγκέντρωσης αιωρούμενων
σωματιδίων στην υδάτινη στήλη (μέσο όρος) σε mg /l (επάνω δεξιά), (β) ο ρυθμός
ιζηματογένεσης σε mm/10 y (επάνω αριστερά), (γ) επιφανειακή μέση ταχύτητα ροής
σε και θερμοκρασία σε $^{\rm o}\!C$ (κάτω αριστερά) και (δ) μέση αλατότητα σε psu (κάτω
δεξιά) για περίοδο προσομοίωσης 1 y [Kourafalou et al., 2004]
Σχήμα 6.5. Συγκέντρωση ¹³⁷ Cs στο νερό της Μαύρης Θάλασσας που εισέρχονται στο
Αιγαίο Πέλαγος ως συνάρτηση του χρόνου
Σχήμα 6.6. Εκτιμήσεις προτύπου για τις συγκεντρώσεις ¹³⁷ Cs στο νερό των
θαλάσσιων υποπεριοχών για τους μήνες μετά το ατύχημα στο Chernobyl294
Σχήμα 6.7. Εκτιμήσεις προτύπου για τις συγκεντρώσεις ¹³⁷ Cs στο ίζημα των
θαλάσσιων υποπεριογών για τους μήνες μετά το ατύγημα στο Chernobyl

Σχήμα 6.8. Εκτιμήσεις προτύπου για τις συγκεντρώσεις ¹³⁷Cs στα ψάρια των Σχήμα 6.9. Εκτιμήσεις προτύπου για τις συγκεντρώσεις ¹³⁷Cs στα μύδια των θαλάσσιων υποπεριοχών για τους μήνες μετά το ατύχημα στο Chernobyl......296 Σχήμα 6.10. Συλλογικοί ρυθμοί δόση, για τα χρόνια μετά την ραδιενεργό διασπορά Σχήμα 6.11. Συνολικές συσωρευτικές δόσεις σε διαφορετικές ηλικιακές ομάδες του Σχήμα 6.13. Σύγκριση της δόσης (μ Sv) σε αντιπροσωπευτικό άτομο μετά το 1° έτος κοινής στιγμιαίας επιφανειακής εναπόθεσης ραδιονουκλιδίων (1000 Bq/m²), όπως εκτιμάται από τρία διαφορετικά μοντέλα σε παράκτιες περιογές στη Βόρεια Θάλασσα (NRPA Box-model), στο BA Αιγαίο (NTUA 3D) και στον Θερμαϊκό Κόλπο Σχήμα 6.14. Παγκόσμια διασπορά των περιοχών και λεπτομερής χάρτης των Ευρωπαϊκών τοποθεσιών που πραγματοποιήθηκαν προσομοιώσεις ραδιολομόλυνσης στα πλαίσια του προγράμματος περιβαλλοντικής ευαισθησίας EMRAS ΙΙ της ΙΑΕΑ. Σχήμα 6.15. Σύγκριση των δόσεων (μSv) σε ενήλικες μεταξύ διαφορετικών οικοσυστημάτων μετά τον πρώτο χρόνο επιφανιακής εναπόθεσης 1000 Bq/m^{2 137}Cs Τυπικό αρχείο εισόδου προσομοίωσης ενεργειακής απόδοσης για μπουκάλι 0.6 L. 322 Αρχείο εισόδου προσομοίωσης φάσματος βαθμονόμησης 152/154 Ευ για μπουκάλι 2.2 Κώδικας υπολογισμού MDA·I_γ σε κάθε ενέργεια για το μικρό μπουκάλι 0.6 L......326 Σχήμα Π6.1. Το δισδιάστατο πλέγμα των 28×31 σημείων με την πληροφορία των γεωγραφικών συντεταγμένων (γεωγραφικά πλάτη και μήκη) και το αντίστοιχο με Σχήμα Π6.2. Απεικόνιση των τιμών του πίνακα zk διαφοροποίησης του βάθους....329 Σχήμα Π6.3. Δεδομένα ροής στα διάφορα βάθη στις στήλες των σημείων του πλέγματος σε μια κατακόρυφη διατομή στο γεωγραφικό μήκος 23°23.33 (άσπρη Σχήμα Π6.4. Σχηματική απεικόνιση του υπολογισμού της μέσης ταχύτητας σε κάθε στοιχείο του γεωγραφικού πλέγματος στο κατακόρυφο άξονα ενός πλεγματικού Σχήμα Π6.5. Παράδειγμα υπολογισμού των διανυσμάτων της μέσης ταχύτητας ροής στην στήλη του κάθε στοιχείου γεωγραφικού πλέγματος (δεξιά) από το αρχικό διακριτοποιημένο, ως προς το βάθος (24 επίπεδα), πεδίο ταχυτήτων. Στο σχήμα του αρχικού πεδίου (αριστερά) απεικονίζεται το επιφανειακό επίπεδο ταχυτήτων για το Σχήμα Π6.6. Ενεργοποίηση των στοιχείων του γεωγραφικού πλέγματος που αντιστοιχούν στα σύνορα των υποπεριοχών και υπολογισμός των επιμέρους κάθετων συνιστωσών της μέσης ταχύτητας και του μήκους του συνόρου που διέρχεται από το

Σχήμα Π6.7.	Υπολογισμός	$\tau\omega\nu$	μέσων	ροών	σε	κάθε	υποπεριοχή	για	τον	μήνα
Νοέμβριο		•••••								332

Βιβλιογραφία

Αναφορές στα ελληνικά

Αμπατζόγλου, Γ., 1988. Συμβολή στη μελέτη της εξέλιξης των ρυπαντικών φορτίων και του βαθμού ρύπανσης του Κόλπου της Ελευσίνας. Διδακτορική Διατριβή, Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο, Αθήνα.

Ανδρουλιδάκης, Γ.Σ., 2011. Μαθηματική προσομοίωση και διερεύνηση, με τη χρήση υβριδικού ομοιώματος, της επίδρασης των νερών της Μαύρης Θάλασσας στη δυναμική των θαλασσίων μαζών του Βορείου Αιγαίου. Διδακτορική Διατριβή, Αριστοτέλειο Πανεπιστήμιο Θεσσαλονίκης, Θεσσαλονίκη.

Ασημακόπουλος, Π.Α., 2002. Εισαγωγή στην πυρηνική φυσική. Εκδόσεις Πανεπιστημίου Ιωαννίνων, Ιωάννινα.

Βελαώρας, Δ., 2008. Υπερετήσιες αλλαγές στην κυκλοφορία και τα χαρακτηριστικά των υδάτινων μαζών στην περιοχή του Βόρειου και Κεντρικού Αιγαίου Πελάγους και η δημιουργία βαθιών νερών στο Αιγαίο Πέλαγος. Διδακτορική Διατριβή, Τμήμα Φυσικής, Εθνικό Καποδιστριακό Πανεπιστήμιο Αθηνών, Αθήνα.

Γαζής, Ε.Ν., 2002. Ιοντίζουσες Ακτινοβολίες. Εκδόσεις Παπασωτηρίου, Αθήνα.

Γκαραγκούνη, Α., 2005. Βαρέα μέταλλα και φυσικά ραδιονουκλίδια σε θαλάσσια ιζήματα από το στενό Ψυττάλειας-Κερατσινίου, Σαρωνικός Κόλπος. Μεταπτυχιακή Διπλωματική Εργασία, Πανεπιστήμιο Πατρών, Πάτρα.

Γουργιώτη, Ο. Κ., 1988. Μελέτη Mn, Cd και Zn στο Σαρωνικό Κόλπο το 1998. Διδακτορική Διατριβή, Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο, Αθήνα.

Ευαγγελίου, Ν.Κ., 2009. Μελέτη κατανομών και μορφών ραδιοϊσοτόπων και ιχνοστοιχείων στο θαλάσσιο περιβάλλον. Μεταπτυχιακή Διπλωματική Εργασία, Τμήμα Χημείας, Εθνικό Καποδιστριακό Πανεπιστήμιο Αθηνών, Αθήνα.

Ηλιακής, Σ., 2011. Προσδιορισμός στοιχείων σε θαλάσσια ιζήματα με φασματομετρικές μεθόδους για τη διαπίστωση του βαθμού ρύπανσης σε συσχέτιση με το ρυθμό ιζηματογένεσης θαλάσσιας περιοχής. Διπλωματική Μεταπτυχιακή Εργασία, Σχολή Χημικών Μηχανικών, Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο, Αθήνα.

Καββαδία, Ε., 2007. Μελέτη της συγκέντρωσης βαρέων μετάλλων σε ιζήματα του Θερμαϊκού κόλπου σε περιοχή κοντά σε μονοκαλλιέργειες. Πτυχιακή Εργασία, Τμήμα Τεχνολογίας Αλιείας και Υδατοκαλλιεργειών, Αλεξάνδρειο Τεχνολογικό Εκπαιδευτικό Ιδρυμα Θεσσαλονίκης, Θεσσαλονίκη.

Κατσούρας, Γ., 2005. Μελέτη διαλυτού οργανικού άνθρακα και υδατανθράκων στο Σαρωνικό και Θερμαϊκό Κόλπο. Μεταπτυχιακή Διπλωματική Εργασία, Τμήμα Φυσικής, Εθνικό και Καποδιστριακό Πανεπιστήμιο Αθηνών, Αθήνα.

Μερτζάνης, Α., 1985. Γεωμορφολογική εξέλιξη του Αμβρακικού Κόλπου. Διδακτορική Διατριβή, Τμήμα Γεωλογίας, Εθνικό και Καποδιστριακό Πανεπιστήμιο Αθηνών, Αθήνα.

Μπαγατέλας, Χ., 2008. Μελέτη της απόδοσης και της ελάχιστης ανιχνευόμενης ενεργότητης ραδιονουκλιδίων από ανιχνευτή NaI(Tl) στο υδάτινο περιβάλλον. Μεταπτυχιακή

Διπλωματική Εργασία, Σχολή Εφαρμοσμένων Μαθηματικών και Φυσικών Επιστημών, Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο, Αθήνα.

Μποκώρος, Π.Γ., 2006. Οριζόντια διασπορά και κατακόρυφη κατανομή 137Cs στην υδάτινη στήλη του βορειοανατολικού Αιγαίου Πελάγους. Μεταπτυχιακή Διπλωματική Εργασία, Πανεπιστήμιο Πατρών, Πάτρα.

Φίλλης-Τσιράκης, Ε., 2009. Προσδιορισμός του ρυθμού ιζηματογένεσης στον κόλπο του Αμβρακικού με πυρηνικές μεθόδους, Μεταπτυχιακή Διπλωματική Εργασία, Σχολή Εφαρμοσμένων Μαθηματικών και Φυσικών Επιστημών, Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο, Αθήνα.

Φλώρου, Ε., 1992. Συμπεριφορά και κατανομή μακροβίων ραδιονουκλιδίων στο θαλάσσιο οικοσύστημα του Ελλαδικού χώρου. Διδακτορική Διατριβή, Τμήμα Βιολογίας, Εθνικό Καποδιστριακό Πανεπιστήμιο Αθηνών, Αθήνα.

Φλώρου Ε., Κρητίδης, Π., Χαλούλου, Χ., 2002. Εκτίμηση ραδιολογικής κατάστασης του Θερμαϊκού κόλπου: Πηγές – Διασπορά - Βιοδείκτες παρακολούθησης. 1° Περιβαλλοντικό Συνέδριο Μακεδονίας, Θεσσαλονίκη.

Αναφορές στα αγγλικά

Aarkrog, A., 1979. Environmental studies on radioecological sensitivity and variability with special emphasis on the fallout nuclides 90Sr and 137Cs. Risø- R-437, Risø National Laboratory, Denmark.

Ababneh, Z.Q., Al-Omari, H., Rasheed, M., Al-Najjar, T., Ababneh, A.M., 2010. Assessment of gammaemitting radionuclides in sediment cores from the Gulf of Aqaba. Red Sea. Radiation Protection and Dosimetry 141, 289-291.

Abbas, M.I., 2006. Analytical calculations of the solid angles subtended by a well-type detector at point and extended circular sources. Applied Radiation and Isotopes 64, 1048-1056.

Abril, J.M., Garcia-Leon, M., Garcia-Tenorio, R., Sanchez, C.I., 1992.Dating of Marine Sediments by an Incomplete Mixing Model. Journal of Environmental Radioactivity 15, 135-151.

Abril, J.M. and Garcia-Leon, M., 1994. The Integrated Atmospheric Flux Effect in a Radiogeochronological Model. Journal of Environmental Radioactivity 24, 65-79

Abril, J.M., 2005. Acceleration and mixing in the radiometric dating of recent sediments: A further discussion supported by the IMZ model. In: Mendez-Vilas, A. (Ed.), Recent Advances in Multidisciplinary Applied Physics. Elsevier, Oxford, 611-615.

Abril, J.M. and Gharbi, F., 2012. Radiometric dating of recent sediments: beyond the boundary conditions. Journal of Paleolimnology 48, 449-460.

Adams, J.A.S., 1952. Radioactivity in the lithosphere. In: Israel, H. and Krebs, A. (Eds.), Nuclear Radiation in Geophysics. Springer-Verlag, Berlin.

Agarwal, C., Chaudhury, C., Goswam, A., Gathibandhe, M., 2011. Full energy peak efficiency calibration of HPGe detector for point and extended sources using Monte Carlo code. Radioanalytical and Nuclear Chemistry 28, 701-708.

Agostinelli, S., et al., 2003. Geant4—a simulation toolkit. Nuclear Instruments and Methods A 506, 250-303.

Aksu, A.E., Hiscott, R.N., Yasar, D., 1999. Oscillating quaternary water levels of the Marmara Sea and vigorous outflows into the Aegean Sea from the Marmara Sea– Black Sea drainage corridor. Marine Geology 153, 275-302.

Alessandrello, A., Camin, D.V., Fiorini, E., Giuliani, A., 1988. Construction of a massive germanium detector for experiments on rare decays. Physics Letters B 202, 611–614.

Algan, O., Cagatay, N.M., Tchepalyga, A., Ongan, D., Estoe, C., Gokasan, E., 2001. Stratigraphy of the sediment infill in Bosphorus strait: water exchange between Black Sea and Mediterranean Sea during the last glacial Holocene. Geo Mar. Letters 20, 209-218.

Alonso-Hernandez, C.M., Diaz-Asencio, M., Munoz-Caravaca, A., Delfanti, R., Papucci, C., Ferretti, O., Crovato, C., 2006. Recent changes in sedimentation rates regime in Cienfuegos Bay, Cuba, as inferred from 210Pb and 137Cs vertical profiles. Continental Shelf Research 26, 153-167.Ugur, A., Miquel, J-C., Fowler, S.W., Appleby, P., 2003. Radiometric dating of sediment cores from a hydrothermal vent zone off Milos Island in the Aegean Sea. The Science of the Total Environment 307, 203-214.

Anagnostakis, M.J., Hinis, E.P., Karangelos, D.J., Petropoulos, N.P., Rouni, P.K., Simopoulos, S.E., Žunić, Z.S, 2001. Determination of depleted uranium in environmental samples by gamma-spectroscopic techniques. Archive of Oncology 9, 231-236.

Anagnostou, Ch., Kaberi, H., Karageorgis, A., 1996. The effects of domestic and industrial discharges on the seabed quality of Thessaloniki bay and gulf. Proceedings of the 3rd International Conference on Environmental Pollution, Thessaloniki, 227-233.

Andreev, D.S., Erokhina, K.I., Zvonov, V.S., Lemberg, I.Kh., 1972. Consideration of cascade transitions in determining the absolute yield of gamma rays. Prib. Tekh. Eksp. 5, 63-65.

Andreev, D.S., Erokhina, K.I., Zvonov, V.S., Lemberg, I.Kh., 1973. Determination of the gdetection efficiency in energy peaks by means of nuclides having a complicated decay scheme in close-geometry conditions .Izv. Akad. Nauk SSSR. Ser. Fiz. 37, 1609-1612.

Androulakaki, E.G., Tsabaris1, C., Eleftheriou, G., Kokkoris, M., Patiris, D.L., Vlastou, R., 2014. Seabed radioactivity based on in situ measurements and Monte Carlo simulations. Applied Radiation and Isotopes, submitted.

Angelidis, M. and Grimanis, P.A., 1989. Geochemical partitioning of Co, Cr, Fe, Sc and Zn in polluted and non-polluted marine sediments. Environmental Pollution 62, 31-46.

Anicin, I.V., and Yap, C.T., 1987. New approach to detection limit determination in spectroscopy. Nuclear Instruments and Methods A 259, 525-528.

Appleby, P.G. and Oldfield, F., 1978. The calculation of 210Pb dates assuming a constant rate of supply of unsupported 210Pb to the sediment. Catena 5, 1-8.

Appleby, P.G. and Oldfield, F., 1983. The assessment of 210Pb data from sites with varying sediment accumulation rates. Hydrobiologia 103, 29-35.

Appleby, P.G. and Oldfield, F., 1992. Application of 210Pb to sedimentation studies. In: Ivanovich, M. and Harmon, R.S (Eds.), Uranium Series Disequilibrium. Oxford University Press, Oxford, 31-778

Arpesella, C., 1996. A low background counting facility at Laboratori Nazionali del Gran Sasso. Applied Radiation and Isotopes 47, 991-996.

Bachhuber, H., Bunzl, K., Schimmack, W., Gans., I., 1982. The migration of Cs-137 and Sr-90 in multilayered soils: Results from batch, column and fallout investigations. Nuclear Technology 59, 291-301.

Badawi, M.S., Gouda, M.M., Nafee, S.S., El-Khatib, A.M., El-Mallah, E.A., 2012. New analytical approach to calibrate the co-axial HPGe detectors including correction for source matrix self-attenuation. Applied Radiation and Isotopes 70, 2661-2668.

Bagatelas, C., Tsabaris, C., Kokkoris, M., Papadopoulos, C.T., Vlastou, R., 2010. Determination of marine gamma activity and study of the minimum detectable activity (MDA) in 4pi geometry based on Monte Carlo simulation. Environmental Monitoring and Assessment 165, 159-168.

Bahcall, J.N., Davis, R., Wolfenstein, L., 1988. Solar neutrinos: a field in transition. Nature 334, 487.

Balopoulos, E.T., 1982. Circulation and mixing in the water masses of the N.W. Aegean Sea (Noting effects of waste disposal in Thermaikos Gulf). Ph.D. Thesis, University of Wales, UK.

Barwich, S.W., Price, P.B., Stevenson, J.D., 1985. Radioactive decay of ²³²U by ²⁴Me emission. Physics Review C 31, 984.

Becacos-Kontos, T., 1977. Primary production and environmental factors in an oligotrophic biome in the Aegean Sea. Marine Biology 42, 93-98.

BenRG, 2014. Plot of atomic isotopes (Z: number of protons, N: number of neutrons) colored by half life. Raw data from <u>http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/;</u> the line at the bottom said "Nuclear Wallet Cards database version of 6/2/2009". Available at: http://en.wikipedia.org/wiki/Isotone#mediaviewer/File:Isotopes_and_half-life.svg

Berger, M.J. and Hubell, J.H., 1995. XCOM: photon cross sections with a personal computer. National Bureau of Standards Information Report 87-3597.

Berlizov, A.N., 2006. MCNP-CP: A Correlated Particle Radiation Source Extension of a General Purpose Monte Carlo N-Particle Transport Code. In: Semkov, T.M., Pommé, S., Jerome S.M. (Eds.), Applied Modeling and Computations in Nuclear Science, Chapter 13, ACS Symposium Series, Volume 945, American Chemical Society, Washington DC, 183-194.

Berlizov, A.N., and Mayer, K., 2010. Fast and accurate approach to γ -spectrum modelling: A validation study with a shielded/unshielded voluminous uranium sample. Applied Radiation and Isotopes 68, 1822-1831.

Berlizov, A.N., van Belle, P., Zuleger, E., Ottmar, H., 2011. Experimental re-evaluation of the γ -ray energy and emission probability for the 159 keV transition in 238U following the α -decay of 242Pu. Applied Radiation and Isotopes 69, 531-538.

Besiktepe S.T., Sur H.I., Ozsoy E., Latif M.A., Oguz, T., Unluata, U., 1994. The circulation and hydrography of the Marmara Sea. Progress Oceanologica 34, 285-334.

BIOMASS, 2003. Biosphere Modelling and Assessment, Testing of Environmental Transfer Models using Chernobyl Fallout Data from the Iput River Catchment Area, Bryansk Region, Russian Federation, IAEA, Vienna.

BIOMOVS II, 1996. Biospheric Model Validation Study II, Assessment of the Consequences of the Radioactive Contamination of Aquatic Media and Biota. Technical Report No. 10. Swedish Radiation Protection Institute, Stockholm.

BIOMOVS, 1990. Biospheric Model Validation Study, On the validity of environmental transfer models. Proceedings of the Symposium, Stockholm-Sweden. Swedish Radiation Protection Institute, Printed by Sundt Artprint, Stockholm.

Blaauw, M. and Gelsema, S.J., 2003. Cascade summing in gamma-ray spectrometry in Marinelli-beaker geometries: the third efficiency curve. Nuclear Instruments and Methods A 505, 311-315.

Bolivar, J.P., Garcia-Tenorio, R., Garcia-Leon, R., 1995. Fluxes and distribution of natural radionuclides in the production and use of fertilizers. Applied Radiation and Isotopes 46, 717-718.

Bolivar, J.P., Garcia-Tenorio, R., Masa, J.L., Vaca, F., 2002. Radioactive impact in sediments from an estuarine system affected by industrial wastes releases. Environmental International 27, 639-645.

Boshkova, T. and Minev, L., 2001. Corrections for self-attenuation in gamma-ray spectrometry of bulk samples. Applied Radiation and Isotopes 54, 777-783.

Boson, J., Ågren, G., Johansson, L., 2008. A detailed investigation of HPGe detector response for imporved Monte Carlo efficiency calculations. Nuclear Instruments and Methods A 587, 304-314.

Bossew, P., and Kirchner, G., 2004. Modelling the vertical distribution of radionuclides in soil. Part 1: the convection– dispersion equation revisited. Journal of Environmental Radioactivity 73, 127-150.

Bossew, P., 2005. A very long-term HPGe-background gamma spectrum. Applied Radiation and Isotopes 62, 635-644.

Both, J.P., Lee, Y.K., Mazzolo, A., Petit, O., Peneliau, Y., Roesslinger, B., Soldevila, M., 2003. TRIPOLI-4—A Three Dimensional Polykinetic Particle Transport Monte Carlo Code. SNA'2003, Paris.

Bourdon, B., Turner, S.P., Henderson, G.M., Lundstrom, C.C., 2003. Introduction to U-series geochemistry. In: Bourdon, B., Henderson, G.M., Lundstrom, C.C., Turner, S.P. (Eds.), Uranium series geochemistry. Geochemical Society and Mineralogical Society of America, 1-21.

Bowen, H.J.M., 1979. Environmental chemistry of the elements. Academic Press, New York.

Brenner, M., Peplow, A.J., Schelske, C.L., 1994. Disequilibrium between 226Ra and supported 210Pb in a sediment core from a shallow Florida lake. Limnology and Oceanography 39, 1222-1227.

Briesmeister, J.F. (Ed.), 1991. MCNP – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4C. LA-13709-M, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos.

Brodzinski, R.L., Reeves, J.H., Miley, H.S., Avignone III, F.T., 1988. Achieving ultralow background in a germanium spectrometer. J. Radioanalitical Nuclear Chemistry 124, 513–521.

Brun, R., Bruyant, F., Maire, M., McPherson, A.C., Zanarini, P., 1987. GEANT3. CERN Data Handling Division, Geneva.

Brydsten, L., Jansson, M., 1989. Studies of estuarine sediment dynamics using 137Cs from the Tjernobyl accident as a tracer. Estuarine and Coastal Shelf Science 28, 249-259.

Buckley, R.C., 1982. Environmental sensitivity mapping – what, why and how, Env. Geo. and Health 4, 151-155.

Buesseler, K.O., Livingston, H.D., Honjo, S., Hay, B.J., Konuk, T., Kempe, S., 1990. Scavenging and particle deposition in the southwestern black sea-evidence from Chernobyl radiotracers. Deep Sea Research Part A. Oceanographic Research Papers 37, 413-430.

Bulgakov, A., Konoplev, A., Popov, V., Scherbak, A., 1991. Removal of long-lived radionuclides from the soil by surface runoff near the Chernobyl nuclear power station, Soviet Soil Science 23, 124-131.

Cable, M.D., Honkanen, J., Parry R.F., (Zhou, S.H., Zhou, Z.Y.), Cerny, J., 1983. Discovery of beta-delayed two-proton radioactivity: ²²AI. Physics Review Letters 50, 404.

Calmet, D., Fernandez, J.M., 1990. Caesium distribution in northwest Mediterranean seawater, suspended particles and sediments. Continental Shelf Research 10, 895-913.

Carroll, J. and Lerche, I., 2003. Sedimentary Processes: Quantification Using Radionuclides. In: Baxter, M.S. (Ed.), Radioactivity in the Environment, Vol. 5, Elsevier, Oxford.

Casas-Ruiz, M., Feria, F, Ligero, R.A., 2009. Incidences of polluting episodes in sedimentary media. Applied Radiation and Isotopes 67, 1570-1573.

Catsiki, V. A. and Florou, H., 2006. Study on the behaviour of the heavy metals cu, cr, ni, zn, fe, mn and 137Cs in an estuarine ecosystem using mytilus galloprovincialis as a bioindicator species: The case of thermaikos Gulf, greece. Journal of Environmental Radioactivity 86, 31-44.

CCME, 2002.Canadian Council of Ministers of the Environment, Canadian sediment quality quidelines for protection of aquatics life: Summaty tables. CCME, Winnipeg.

Chadwick, J. and Goldhaber, M., 1935. The Nuclear Photoelectric Effect. Proceedings of the Royal Society London A 151, 479-493.

Chiles. J.P. and Delfiner, P., 1999. Geostatistics: Modeling Spatial uncertainty (Wiley Series in Probability and statistics). Wiley-Interscience Publications, Canada.

Cho, Y.H., Jeong, C.H., Hahn, R.S., 1996. Sorption characteristics of 137Cs onto clay minerals: effect of mineral structure and ionic strength. Journal of Radioanalitical Nuclear Chemistry 204, 33-43.

Coachman, L.K. and Hopkins, T.S., 1975. Description analysis and conclusions on water masses in the Saronikos Gulf. In: Interim Technical Report 2, Environmental Pollution Control Project, Athens.

Coachman, L.K., Hopkins, T.S., Dugdale, R.C., 1976. Water masses of Saronikos Gulf in winter. Acta Adriatica 18, 133-161.

Cochran, J.K. and Masque, P., 2004. Natural radionuclides applied to coastal zone processes. In: LIVINGSTON, H.D. (Ed.). Marine Radioactivity, Elsevier, Amsterdam, 1-20.

Cofino, W.P and Wells, D.E., 1994. Design and Evaluation of the QUASIMEME Interlaboratory performance studies: a test case for robust statistics. Marine Pollution Bulletting 29, 149-158.

Conti, C.C., Salinas, I.C.P., Zylberberg, H., 2013. A detailed procedure to simulate an HPGe detector with MCNP5. Progress in Nuclear Energy 66, 35-40.

Cooper, J.A., 1970. Factors Determining the Ultimate Sensitivity of Ge(Li) Gamma-Ray Spectrometers. Nuclear Instruments and Methods 82, 273-277.

Covell, D.F., 1959. Determination of gamma-ray abundance directly from total absorption peak. Analytical Chemistry 31, 1785-1790.

Crozaz, G., Picciotto, E., de Breuck, W., 1964. Antarctic snow chronology with Pb-210. Journal of Geophysical Research 69, 2597-2604.

Cundy, A.B. and Croudace, I.W., 1995. Physical and chemical associations of radionuclides and trace metals in estuarine sediments: an example from Poole harbour, Southern England. Journal of Environmental Radioactivity 29, 191-211.

Cundy, A.B., Kortekaas, S., Dewez, T., Stewart, I.S., Collins, P.E.F., Croudace, I.W., Maroukian, H., Papanastassiou, D., Gaki-Papanastassiou, P., Pavlopoulos, K., Dawson, A., 2000. Coastal wetlands as recorders of earthquake subsidence in the Aegean: a case study of the 1894 Gulf of Atalanti earthquakes, central Greece. Marine Geology 170, 3-26.

Cundy, A.B. and Iain, S., 2004. Stewart Dating recent colluvial sequences with 210Pb and 137Cs along an active fault scarp, the Eliki Fault, Gulf of Corinth, Greece. Tectonophysics 386, 147-156.

Cundy, A.B. and Stewart, I.S., 2004. Dating recent colluvial sequences with 210Pb and 137Cs along an active fault scarp, the Eliki Fault, Gulf of Corinth, Greece. Tectonophysics 386, 147-156.

Currie, L.A., 1968. Limits for qualitative detection and quantitative determination. Analytical Chemistry 40, 586-593.

Currie, L.A., 1995. Nomenclature in evaluation of analytical methods including detection and quantification capabilities. Pure Applied Chemistry 67, 1699-1723.

Davis, P., Avadhanula, M.R., Cancio, D., Carboneras, P., Coughtrey, P., Johansson, G., Little, R.H., Watkins, B.H., 1999. BIOMOVS II: an international test of the performances of environmental transfer models. Journal of Environmental Radioactivity 42, 117-130.

Daza, M.J., Quintana, B., García-Talavera, M., Fernández, F., 2001. Efficiency calibration of a HPGe detector in the [46.54-2000] keV energy range for the measurement of environmental samples. Nuclear Instruments and Methods A 470, 520-532.

De Felice, P., Angelini, P., Fazio, A., Biagini, R., 2000. Fast procedures for coincidencesumming correction in γ -ray spectrometry. Applied Radiation and Isotopes 52, 745-752.

Debertin, K. and Schotzig, U., 1979. Coincidence summing corrections in Ge(Li)-spectrometry at low source-to-detector distances. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 158, 471-477.

Debertin, K. and Helemer, R.G., 1988. Gamma X-ray spectrometry with semiconductors detectors. North Holland, Amsterdam.

Delfanti, R., Klein, B., Papucci, C., 2003. The new distribution of the tracer 137Cs in the Eastern Mediterranean: relationship to the deep water transient. Journal of Geophysical Research: Oceans 108, 8108-8125.

Delfanti, R., Tsabaris, C., Papucci, C., Kaberi, H., Lorenzelli, R., Zervakis, V., Tangherlini, M., Georgopoulos, D., 2004. Re-distribution of 137Cs Chernobyl signal in the Aegean Sea, Proceedings of International Conference: Isotopes in Environmental Studies, Aquatic Forum 2004, IAEA, Monaco 2004, 89-92.

Delfanti, R., Özsoy, E., Kaberi, H., Schirone, A., Salvi, S., Conte, F., Tsabaris, C., Papucci, C., 2014. Evolution and fluxes of 137Cs in the Black Sea/Turkish Straits System/North Aegean Sea. Journal of Marine Systems 135, 117-123

DeMaster, D.J., Brewster, D.C., McKee, B.A., Nittrouer, C.A., 1991. Rates of particle scavenging, sediment reworking and longitudinal ripple formation at the Hebble site based on measurements of the Th-234 and Pb-210. Marine Geology 99, 423-444.

Dias, M.S., Cardoso, V., Vanin, V.R., Koskinas, M.F., 2004. Combination of nonlinear function and mixing method for fitting HPGe efficiency curve in the 59–2754 kev energy range. Applied Radiation and Isotopes 60, 683-687.

Díaz, N.C., and Vargas, M.J., 2008. DETEFF: An improved Monte Carlo computer program for evaluating the efficiency in coaxial gamma-ray detectors. (2008) Nuclear Instruments and Methods A 586, 204-210.

Dickin, A. P., 1997. Radiogenic Isotope Geology. Cambridge University Press. Cambridge.

Dominik, J., Mangini, A., Muller, G., 1981. Determination of recent deposition rates in Lake Constance with radioisotopic methods. Sedimentology 28, 653-677.

Draganić, I.G., Draganić, Z.D., Adloff, J.P., 1990. Radiation and Radioactivity on Earth and Beyond. CRC Press Inc., Boca Raton.

Dryak, P. and Kovar, P., 2006. Experimental and MC determination of HPGe detector efficiency in the 40–2754 keV energy range for measuring point source geometry with the source-to-detector distance of 25 cm. Applied Radiation and Isotopes 64, 1346-1349.

Duursma, E.K. and Carroll, J., 1996. Environmental compartments, equilibria and assessments of processes between air, water, sediments and biota. Environmental Science, Springer, Berlin.

ECMWF, 2014. European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, ECMWF Re-Analisis Intermidium database website: <u>http://data-portal.ecmwf.int/</u>

Egorov, V.N., Povinec, P.P., Polikarpov, G.G., Stokozov, N.A., Gulin, S.B., Kulebakina, L.G., Osvath. I., 1999. 90Sr and 137Cs in the Black Sea after the Chernobyl NPP accident: inventories, balance and tracer applications. Journal of Environmental Radioactivity 43, 137-155.

Ehmann, W.D. and Vance, D.E., 1991. Radiochemistry and Nuclear Methods of Analysis. John Wiley and Sons Inc., New York.

El Mamoney, M.H. and Khater, A.E.M., 2004. Environmental characterization and radioecological impacts of non-nuclear industries on the Red Sea coast. Journal of Environmental Radioactivity 73, 151-168.

Eleftheriou, G., Tsabaris, C., Androulakaki, E.G., Patiris, D.L., Kokkoris, M., Kalfas, C.A., Vlastou, R., Radioactivity measurements in the aquatic environment using in-situ and laboratory gamma-ray spectrometry. Applied Radiation and Isotopes 82, 268-278.

Elliott, S.R., Hahn A.A., Moe, M.K., 1987. Direct evidence for two-neutrino double-beta decay in 82Se. Physics Review Letters 59, 2020.

El-Reefy, H.I., Sharshar, T., Elnimr, T., Badran, H.M., 2010. Distribution of gamma-ray emitting radionuclides in the marine environment of the Burullus Lake: II. Bottom sediments. Environmental Monitoring and Assessment 169, 273-284

El-Reefy, H. I., Sharshar, T., Elmimr, T., Badran, H., 2014. Factors affecting the distribution of natural and anthropogenic radionuclides in the coastal Burullus Lake. Journal of Environmental Radioactivity 134, 35-4.

EMRAS, 2012. Environmental Modelling for Radiation Safety, A Summary Report of the Results of the EMRAS Programme (2003–2007). IAEA-TECDOC-1678, IAEA, Vienna.

EMRAS II, 2014. Environmental Modelling for Radiation Safety II project website: <u>http://www-ns.iaea.org/projects/emras/emras2/</u>

ENSDF, 2014. Evaluated Nuclear Structure Data File, National Nuclear Data Center, National Laboratory, USA. On-line database <u>http://ie.lbl.gov/education/isotopes.htm</u>

Evangeliou, N., Florou, H., Bokoros, P., Scoullos, M., 2009. Temporal and spatial distribution of 137Cs in eastern Mediterranean Sea: horizontal and vertical dispersion in two regions. Journal of Environmental Radioactivity 100, 626-636.

Evangeliou, N., Florou, H., Scoullos, M., 2011. POC and particulate 234Th export fluxes estimated using 234Th/238U disequilibrium in an enclosed Eastern Mediterranean region (Saronikos Gulf and Elefsis Bay, Greece) in seasonal scale. Geochim. Cosmochim. Acta 75, 5367-5388.

Evangeliou, N., and Florou, H., 2012. The dispersion of 137Cs in a shallow Mediterranean embayment (Saronikos Gulf - Elefsis Bay), estimated inventories and residence times. Journal of Environmental Radioactivity 113, 87-97.
Evans, R.D., 1955. The Atomic Nucleus. McGraw-Hill Inc., London.

FAO, IAEA, ILO, OECD-NEA, PAHO, WHO, 1996. Food and Agriculture Organization of The United Nations, International Atomic Energy Agency, International Labour Organization, OECD Nuclear Energy Agency, Pan American Health Organization, World Health Organization, International Basic Safety Standards for Protection against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiation Sources. Safety Series No. 115, IAEA, Vienna.

FASC, 2008. Federal Agency for the Safety of Food Chain, Estimating measurement uncertainty in quantitative chemical analysis. FASC, LAB P 508 Measurements Uncertainty v.01.

Ferentinos, G., Papatheodorou, G., Geraga, M., Iatrou, M., Fakiris, E., Christodoulou, D., Dimitriou, E., Koutsikopoulos, C. 2010. Fjord water circulation patterns and dysoxic/anoxic conditions in a Mediterranean semi-enclosed embayemnt in the Amvrakikos Gulf. Estuarine, Coastal and Shelf Science 88, 473-481.

Ferrari, A., Sala, P.R., Fasso, A., Ranft, J., 2005. FLUKA: a multi-particle transport code. CERN-2005-10, INFN/TC_05/11, SLAC-R-773. Available at: <u>http://www.fluka.org/fluka.php</u>

FESAus, 2014. Formation Evaluation Society of Australia, Terms Glossary. Official portal <u>https://www.fesaus.org/glossary/doku.php</u>

Florou, H. and Kritidis, P., 1994. The dispersion of 137Cs in the Aegean Sea. Radiochemica Acta 66/67, 415-417.

Florou, H., 1996. 137Cs inventory in abiotic component and biota from the Aegean and Ionian sea - Greece. Chemistry and Ecology 1/2, 253-258.

Florou, H., Polikarpov, G., Kritidis, P., Triulzi, C., Nonnis-Marzano, F., 1996. Radiological Assessment of Long-lived Radionuclides Transferred Through Aquatic Pathways, IAEA-CN-63/103, in. Proc.: EC/WHO/IAEA, International Conference 'One Decade After Chernobyl', Vienna.

Florou, H., Kritidis, P., Polikarpov, G., Egorov, V., Delfanti, R., Papucci, C., 2001. Dispersion of Caesium-137 in the Eastern Mediterranean and the Black Sea: the time evolution in relation to the sources and pathways. In: Proc.: North Aegean System Functioning and Inter-Regional Pollution Meeting. National Centre for Marine Research, Kavala.

Florou, H., Chalalou, Ch., Lykomitrou, Ch., Madopoulou M., 2002. Enviromental radioactivity monitoring in Greece: present knowledge and planned study. In: Mediterranean Mussel Watch – Designing a regional program, Marseilles, CIEM Workshop Series no15, 63-66.

Florou, H., Kritidis, P., Vosniakos, F., Triantafyllis, J., Delfanti, R., Papucci, C., Cigna, A., Polikarpov, G.G., Egorov, V.N., Bologa, A.S., Patrasku, V., 2003. Dispersion of caesium-137 in the Eastern Mediterranean and the Black Sea – the time evolution in relation to the sources and pathways. Fresenius Environmental Bullettin 12, 3-9.

Florou, H., Evangeliou, N., Bokoros, P., Psomiadou, Ch., Zafiropoulou, A., 2006. The use of nuclear techniques in environmental research: 137Cs determined by gamma spectrometry as a tracer tool in marine processes. In: Proc. 16th Hellinic Symposium in Nuclear Physics. Department of Physics, University of Athens, Athens.

Florou, H., Nicolaou, G., Evangeliou, N., 2010. The concentration of 137Cs in the surface of the greek marine environment. Journal of Environmental Radioactivity 101, 654-657.

Florou, H., Evangeliou, N., Kritidis, P., 2011. Cs-137 in marine sediments from the Eastern Mediter ranean during the last 27-year period. Proceedings in the 20th Symposium of the Hellenic Nuclear Physics Society, Athens 2011, 178.

Folk, R.L., 1954. The distinction between grain size and mineral composition in sedimentary rock nomenclature. Journal of Geology 62, 344-359.

Folk, R.L., 1974. Petrology of sedimentary rocks. Hemphill Publishing Co., Austin, Texas.

Franic, Z. and Bauman, A., 1993. Radioactive contamination of the Adriatic Sea by 90Sr and 137Cs. Health Physics 64, 162-169.

Franic, Z., Lokobauer, N., Marovic, G., 1999. Radioactive contamination of cistern waters along the Croatian coast of the Adriatic Sea by 90Sr. Health Physics 77, 62–66.

Friligos, N., 1983. Nutrient and oxygen redistribution during destratification in the Elefsis Bay, an anoxic basin. Hydrobiologia 101, 223-230.

Friligos, N., 1984. Nutrients of the Saronikos Gulf in relation to environmental characteristics (1973-1976). Hydrobiologia 112, 17-25.

Friligos, N., 1985. Impact on phytoplankton populations of sewage discharges in the Saronikos Gulf (West Aegean). Water Research 19, 1107-1118Scoullos, M. and Riley, J.P., 1978. Water Circulation in the Gulf of Elefsis. Thalassia Jugoslavica 14, 357-370.

Froehlich, K., (Ed.) 2009. Environmental Radionuclides: Tracers and Timers of Terrestrial Processes, In: Baxter, M.S. (Ed.), Radioactivity in the Environment, Volume 16, Elsevier, Vienna.

Froehlich, K., 2009. Environmental Radionuclides: Tracers and Timers of Terrestrial Processes. Radioactivity in the Environment Series (Ed. Baxter, M.), Elsevier, Amsterdam.

Gallego, E., Magán, M., Cadierno, J.P.G., Gil, E., Monte, L., Hofman, D., 2009. Long-term management of contaminated freshwater bodies and catchments. Decision making exercise with the MOIRA system. Radioprotection 44, 683-688.

Gallego, E., Monte, L., Hofman, D., 2010. End-users' expectations and experiences with the decision support system MOIRA-PLUS. Radioprotection 45, S251-S262.

Ganoulis, J., 1987. Oceanographic Elements and Environmental Investigation of the Impacts of the Draining Project of Thessaloniki Gulf. Dept. of Hydraulics, Univercity of Thessaloniki, Rep. Minist. of Environment.

Garcia-Agudo, E., 1998. Global distribution of 137Cs inputs for soil erosion and sedimentation surveys. In: Use of 137Cs in the Study of Soil Erosion and Sedimentation. IAEA TECDOC-1028, IAEA, Vienna, 117-121.

Garcia-Orellana, J., Pates, J.M., Masqué, P, Bruach, J.M., Sanchez-Cabeza, J.A., 2009. Distribution of artificial radionuclides in deep sediments of the Mediterranean Sea. Science of the Total Environment 407, 887-898.

Garcia-Sanchez, L., 2009. Transfer by wash-off from watersheds. In: International Atomic Energy Agency, Quantification of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments for radiological assessments. IAEA-TECDOC-1616, IAEA, Vienna, 405-413.

García-Talavera, M., Laedermann, J.P., Décombaz, M., Daza, M.J., Quintana, B., 2001. Coincidence summing corrections for the natural decay series in γ -ray spectrometry. Applied Radiation and Isotopes 54, 769-776.

García-Talavera, M., 2003. Evaluation of the suitability of various γ lines for the γ spectrometric determination of 238U in environmental samples. Applied Radiation and Isotopes 59, 165-173.

Garcia-Talavera, M., and Ulicny, B., 2003. A genetic algorithm approach for multiplet deconvolution in γ -ray spectra. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 512, 585–594.

Garcia-Torano, E., Pozuelo, M., Salvat, F., 2005. Monte Carlo calculations of coincidencesumming corrections for volume sources in gamma-ray spectrometry with Ge detectors. Nuclear Instruments and Methods A 544, 577-583.

Gardner, R.P., Verghese, K., Lee, H.M., 1980. The average solid angle subtended by a circular detector coaxial to a circular isotropic source. Nuclear Instruments and Methods 176, 615-617.

GEANT4 Collaboration, 2003. Geant4 – a simulation toolkit. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 506, 250–303. Available at: <u>http://geant4.web</u>.cern.ch/geant4/

Gehrke, R.J., and Davidson, J.R., 2005. Acquisition of quality γ -ray spectra with HPGe spectrometers. Applied Radiation and Isotopes 62, 479-499.

Gelsema, S.J., 2001. Advanced g-ray spectrometry dealing with coincidence and attenuation effects, Ph.D. Thesis, University of Technology Delft, Delft University Press, Delft.

Gertman, I., Pinardi, N., Popov, Y., Hecht, A., 2006. Aegean Sea water masses during the early stages of the eastern Mediterranean climatic transient (1988-90). Journal of Physical Oceanography 36, 1841-1859.

Gill, A., 1982. Atmosphere-Ocean Dynamics. Academic Press Inc., Florida, pp. 599-600.

Gilmore, R.G., 2008. Practical Gamma Ray Spectrometry (2nd Ed.). J. Wiley and Sons, Warrington.

Godoy, J.M., Moreira, I., Wanderley, C., Simoes Filho, F.F., Mozeto, A.A., 1998. An alternative method for the determination of excess 210Pb in sediments. Radiat. Radiation Protection Dosimetry 75, 111-115.

Goldberg E. D. 1963. Geochronology with 210Pb. In: International Atomic Energy Agency, Radioactive Dating. Proceedings of a Symposium. IAEA, Vienna, 21-131.

Goreau, T.J., 1977. Quantitative effects of sediment mixing on stratigraphy and biogeochemistry: signal theory approach. Nature, 265, 525-526.

Gorur, N., Cagatay, M.N., Emre, O., Alpar, B., Sakınc, M., Islamoglu, Y., Algan, O., Erkal, T., Kecer, M., Akkok, R., Karlık, G., 2001. Is the abrupt drowning of the Black Sea shelf at 7150 yr BP a myth? Marine Geology 176, 65-73.

Griffies, S.M., Böning, C., Bryan, P. O., Chassignet, E. P., Gerdes, R., Hasumi, H., Hirst, A., Treguier, A.M., Webb, D., 2000. Developments in ocean climate modelling. Ocean Modelling 2, 123-192.

Guinasso, N.L.J. and Schink, D.R., 1975. Quantitative estimates of biological mixing rates in Abyssal sediments. Journal of Geophysical Research, 80, 3032-3043.

GUM, 2008., Evaluation of measurement data – Guide to the expression of the Uncertainty in Measurement. Joint Committee of Guides in Metrology 100.

Gunnink, R., and Prindle, A.L., 1992. Nonconventional methods for accurately calibrating germanium detectors. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 160, 305-314.

Haase, G., Tait, D., Wiechen, A., 1993. Application of a new Monte Carlo method for determination of summation and self-attenuation corrections in gamma spectrometry, Nuclear Instruments and Methods A 336, 206-214.

Haidvogel, D.B. and Beckmann, A., 1999. Numerical ocean circulation modelling. Series on Environmental Science and Management, Vol. 2. Imperial College Press, London.

Hakanson, L., 1995. Optimal size of predictive models. Ecological Modelling 78, 195-204.

Hakanson, L., Brittain, J.E., Monte, L., Bergström, U. Heling, R., 1996. Modelling of radiocesium in lakes – Lake sensitivity and remedial strategies. Journal of Environmental Radioactivity 33, 1-25.

Hakanson, L., Brittain, J.E., Monte, L., Heling, R., Bergström, U., 1996b. Modelling of radiocesium in lakes—the VAMP model. Journal of Environmental Radioactivity 33, 255-308.

Hakanson, L., 2000. Modelling Radiocesium in Lakes and Coastal Areas. Kluwer, Dordrecht.

Hakanson, L., and Sazykina, T., 2001. A blind test of the MOIRA lake model for radiocesium for Lake Uruskul, Russia, contaminated by fallout from the Kyshtym accident in 1957. Journal of Environmental Radioactivity 54, 327-344.

Halbleib, J.A., Kensek, R.P., Mehlhorn, T.A., Valdez, G.D., Seltzer, S.M., Berger, M.G., 1994. ITS Version 3.0: The Integrated TIGER Series of Coupled Electron/Photon Monte Carlo Transport Codes, SAND91-1634, CCC-467/ITS Code Package. Available from the Radiation Safety Information Computational Center (RSICC), Oak Ridge.

Hardy, J.C., Jacob, V.E., Sanchez-Vega, M., Effinger, R.T., Lipnik, P., Mayes, V.E., Willis, D.K., Helmer, R.G., 2002. Precise efficiency calibration of an HPGe detector: source measurements and Monte Carlo calculations with sub-percent precision. Applied Radiation and Isotopes 56, 65-69.

Harms, I.H. and Karcher, M.J., 1999. Modelling the seasonal variability of circulation and hydrography in the Kara Sea. Journal of Geophysical Research C: Oceans 104, 13431-13448.

Harms, I.H., Karcher, M.J., Burchard, H., 2003. Modelling radioactivity in the marine environment: The application of hydrodynamic circulation models for simulating oceanic

dispersion of radioactivity. In: Scott, E.M. (Ed.), Modelling radioactivity in the Environment. Radioactivity in the Environment, Vol. 4, Elsevier, Scotland, 55-85.

HCMR, 2014. Hellenic Centre forn Marine Research. Available at: http://www.hcmr.gr/gr/listview3_el.php?id=1017

HCMR, 2014b. Hellenic Centre for Marine Research, Poseidon system Live Access Server database website: <u>http://poseidon.hcmr.gr/listview.php?id=17</u>

Heldal, H.E., Varskog, P., Føyn, L., 2002. Distribution of selected anthropogenic radionuclides (137Cs, 238Pu, 239,240Pu and 241Am) in marine sediments with emphasis on the Spitsbergen–Bear Island area. Science of the Total Environment 293, 233-245.

Helmer, R.G., Hardy, J.C., Jacob, V.E., Sanchez-Vega, M., Neilson, R.G., Nelson, J., 2003. The use of Monte Carlo calculations in the determination of a Ge detector efficiency curve. Nuclear Instruments and Methods A 511, 360-381.

Helmer, R.G., Nica, N., Hardy, J.C., Iacob, V.E., 2004. Precise efficiency calibration of an HPGe detector up to 3.5 MeV with measurements and Monte-Carlo calculations. Applied Radiation and Isotopes 60, 173-177.

Hernandez, F. and El-Daoushy, F., 2003. Accounting for incomplete charge collection in Monte Carlo simulations of the efficiency of well-type Ge-detectors. Nuclear Instruments and Methods A 498, 340-351.

Hirose, K., Aoyama, M., Igarashi, Y., Komura, K., 2005. Extremely low background measurements of 137Cs in seawater samples using an underground facility (Ogoya). Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 263, 349-53.

HNMS, 2014. Hellenic National Meteorological Service website: http://www.hnms.gr/

Hofman, D., 1998. Design and development of the MOIRA software framework, In: Monte, L. and Brittain, J.E. (Eds.), Principles for the Development of the MOIRA Computerised System. RT/ABM/98/4, ENEA Technical Report, Rome, 37-57.

Hofman, D., 2004. MOIRA-DSS architecture, model integration and user interface design. In: Pahl-Wostl, C., Schmidt, S., Rizzoli, A.E., Jakeman, A.J. (Eds.), Complexity-and Integrated Resources Management. Transactions of the Second Biennial Meeting of the International Environmental Modelling and Software Society, IEMSS, Manno, 1-5.

Hofman, D., 2005. LIANA model integration system – architecture, user interface design and application in MOIRA DSS. In: Krause, P., Kralisch, S., Flügel, W.A. (Eds.), Model Integration and Development of Modular Modelling Systems. Advance in Geosciences 4, 9-16.

Hofman, D., Monte, L.,Boyer, P., Brittain, J., Donchyts, G., Gallego, E., Gheorghiu, D., Hakanson, L., Heling, R., Kerekes, A., Kocsy, G., Lepicard, S., Slavik, O., Slavnicu, D., Smith, J., Zheleznyak, M., 2011. Computerised Decision Support Systems for the management of freshwater radioecological emergencies: assessment of the state-of-the-art with respect to the experiences and needs of end-users. Journal of Environmental Radioactivity 102, 119-12.

Honkanen, J., Cable, M.D., Parry, R.F., Zhao, S.H., Zhao Z.Y., Cenry, J., 1983. Beta-delayed two-proton decay of ²⁶P. Physics Letters 133B, 146.

Hopkins, T.S. and Coachman, L.K., 1975.Circulation patterns in the Saronikos gulf in relation to the winds. Interim. techn. Rep. Envir. Poll. Cont. Proj. vol III, Athens, 223-279.

Howard, B.J., 2000. The concept of radioecological sensitivity. Radiation Protection and Dosimetry 92, 29-34.

Huy, N.Q., Binh, D.Q., An, V.X., 2012. A study for improving detection efficiency of an HPGe detector based gamma spectrometer using Monte Carlo simulation and genetic algorithms. Applied Radiation and Isotopes 70, 2695-2702.

Huy, N.Q., Binh, D.Q., An, V.X., Loan, T.T.H., Can, N.T., 2013. Self-absorption correction in determining the 238U activity of soil samples via 63.3keV gamma ray using MCNP5 code. Applied Radiation and Isotopes 71, 11-20.

IAEA, 1982. International Atomic Energy Agency, Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Releases: Exposures of Critical Groups. IAEA Safety Series No. 57, IAEA, Vienna.

IAEA, 1989. International Atomic Energy Agency, Construction and Use of Calibration Facilities for Radiometric Field Equipment. Technical Reports Series No. 309, IAEA, Vienna.

IAEA, 1991. International Atomic Energy Agency, The International Chernobyl Project: An overview, assessment of radiological consequences and evaluation of protective measures. Report by an International Advisory Committee, IAEA, Vienna.

IAEA, 1994. International Atomic Energy Agency, Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in temperate Environments. Technical Reports Series No. 364, IAEA, Vienna.

IAEA, 1996. International Atomic Energy Agency, Health and Environmental Aspects of Nuclear Fuel Cycle Facilities. IAEA-TECDOC-918, IAEA, Vienna.

IAEA, 1998. International Atomic Energy Agency, Use of 137Cs in the study of soil erosion and sedimentation. IAEA-TECDOC-1028. IAEA, Vienna.

IAEA, 2000. International Atomic Energy Agency, Modelling of the transfer of radiocaesium from deposition to lake ecosystems. IAEA-TECDOC-1143, IAEA, Vienna.

IAEA, 2001. International Atomic Energy Agency, Generic models for use in assessing the impact of discharges of radioactive substances to the environment. Safety Reports Series No. 19, IAEA, Vienna.

IAEA, 2003. International Atomic Energy Agency, Collection and preparation of bottom sediment samples for analysis of radionuclides and trace elements. IAEA-TECDOC-1360, IAEA, Vienna.

IAEA, 2004. International Atomic Energy Agency, Sediment Distribution Coefficients and Concentration Factors for Biota in Marine Environment. Technical Reports Series No. 422, IAEA, Vienna.

IAEA, 2005. International Atomic Energy Agency, Worldwide marine radioactivity studies (WOMARS): Radionuclide levels in oceans and seas. IAEA-TECDOC-1616. IAEA, Vienna.

IAEA, 2005b. International Atomic Energy Agency, Marine Environmental Assessment of the Mediterranean Sea. Methodological guidelines. TC RER/7/003 2005-2010, IAEA, Vienna.

IAEA, 2007. International Atomic Energy Agency, IAEA Safety Glossary: Terminology used in nuclear safety and radiation protection, IAEA, Vienna.

IAEA, 2007b. International Atomic Energy Agency, Testing of Models for Predicting the Behaviour of radionuclides in Freshwater Systems and Coastal Areas. Report of the Aguatic Working Group of ERMAS Theme 1. EMRAS-TECDOC-IAEA, Vienna.

IAEA, 2007c. International Atomic Energy Agency, Naturally occurring radioactive material NORM V. In: Proceedings of an International Symposium, March 2007, Seville.

IAEA, 2008. International Atomic Energy Agency, Discussion paper on the estimation of the uncertainty of results for the determination of pesticide residues. CODEX committee on pesticide residues, 14th Session, , April 2008, Hangzhou.

IAEA, 2009. International Atomic Energy Agency, Quantification of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments for radiological assessments. IAEA-TECDOC-1616, IAEA, Vienna.

IAEA, 2010. International Atomic Energy Agency, Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. Technical Reports Series No. 472, IAEA, Vienna.

IAEA, 2014. Environmental sensitivities in nuclear emergencies and semi-natural environments. IAEA-TECDOC-1719, IAEA, Vienna.

ICRP, 1977. International Commission on Radiological Protection, Recommendations of the ICRP. ICRP Publication 26, Annals of the ICRP 1 (3).

ICRP, 1991. International Commission on Radiological Protection, Recommendations of the ICRP. ICRP Publication 60, Annals of the ICRP 21 (1-3).

ICRP, 1995. International Commission on Radiological Protection, Recommendations of the ICRP. ICRP Publication 75, Annals of the ICRP 26, 312.

ICT, 2010. Benchmarking of Information and Communication Technology Modules in Physics and Chemistry, Radioactive Decays, Lifetimes and Transition Rates. Under the auspices of the Ministry of Human Resource and Development Government of India. Available at: <u>http://pms.iitk.ernet.in/wiki/index.php/File:Akjain21.png</u>

Ignatiades, L., 2005. Scaling the trophic status of the Aegean Sea, eastern Mediterranean. Journal of Sea Research 54, 51-57.

Iosjpe, M., 2006. Environmental modelling: Modified approach for compartmental models.In: Povinec, P.P. and Sanchez-Cabeza, J.A. (Eds.), Radionuclides in the environment: International Conference on Isotopes in Environmental Studies. Radioactivity in the Environment, Vol. 8, Elsevier, 463-476.

Ivanov, L.I., Backhaus J.O., Ozsoy, E., Wehde, H., 2001. Convection in the Black Sea during cold winters, Journal of Marine Systems 31, 65-76.

Janssen, H., 1990. Spline techniques for fitting efficiency curves in gamma-ray spectrometry. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 286, 398-402.

Jia, G., Belli, M., Blasi, M., Marchetti, A., Rosamilia, S., Sanson, U., 2000. 210Pb and 210Po determination in environmental samples. Applied Radiation and Isotopes 53, 115-120.

Jirka, G.H., Findikakis, A.N., Onishi, Y., Ryan, P.J., 1983. Transport of radionuclides in surface waters, In: Till, J.E., Meyer, H.R. (Eds.), Radiological Assessment — A Text Book on Environmental Dose Analysis. Rep. NUREG/CR-3332, ORNL-5968, United States Nuclear Regulatory Commission, Washington DC.

Jones, D.G., Roberts, P.D., Miller, J.M., 1988. The distribution of gamma-emitting radionuclides in surface subtidal sediments near the Sellafield plant. Estuarine, Coastal and Shelf Science 27, 143-161.

Jones, D.G., 2001. Development and application of marine gamma-ray measurements: a review. Journal of Environmental Radioactivity 53, 313-333.

Jonsson, L., 2002. SeaWiFs satellite data analysis of Black Sea water discharge pattern into the Aegean Sea. Water Science Technology 46, 195-202.

Jørgensen, S.E., 1983. The modelling procedures. Application of Ecological Modelling in Environmental Management A, 5-15.

Jørgensen, S.E., 1984. Parameter estimation in toxic substance models. In: Jørgensen, S.E. (Ed.), Modelling the Fate and effect of Toxic Substances in the Environment, Elsevier, Amsterdam, 1-11.

Kalfas, C., 2000. SPECTRG - Software Package for Analysis of Gamma-Ray Spectra. Personal communication.

Kalfas, C.A., 2011. A modern nuclear spectroscopy software package. Proceedings of 20th Conference of the Hellenic Nuclear Physics Society, Athens 2011, 159.

Kamp-Nielsen L., 2008. Sediments: Setting, Transport, Mineralization, and Modeling, Reference Module in Earth Systems and Environmental Sciences, In: Encyclopedia of Ecology, 3181-3188.

Kanellopoulos, T.D., Angelidis, M.O., Karageorgis, A.P., Kaberi, H., Kapsimalis, V., Anagnostou, C., 2006. Geochemical composition of the uppermost prodelta sediments of the Evros River, northeastern Aegean Sea. Journal of Marine Systems 63, 63-78.

Kanisch, G., Vidmar, T., Sima, O., 2009. Testing the equivalence of several algorithms for calculation of coincidence summing corrections. Applied Radiation and Isotopes 67, 1952-1956.

Kapsimalis, V., Panagiotopoulos, I.P., Talagani, P., Hatzianestis, I., Kaberi, H., Rousakis, G., Kanellopoulos, T.D., Hatiris, G.A., 2014.Organic contamination of surface sediments in the metropolitan coastal zone of Athens, Greece: Sources, degree, and ecological risk. Marine Pollution Bulletin 80, 312-324.

Karageorgis A.P., Anagnostou C.L., Kaberi H., 2005. Geochemistry and mineralogy of the NW Aegean Sea surfacesediments: implications for river runoff andanthropogenic impact, Applied Geochemistry 20, 69-88.

Kapsimalis, V., Pavlakis, P., Poulos, S.E., Alexandri, S., Tziavos, C., Sioulas, A., Filippas, D., Lykousis, V., 2005. Internal structure and evolution of the Late Quaternary sequence in a shallow embayment: The Amvrakikos Gulf, NW Greece .Marine Geology 222/223, 399-418

Karageorgis, A., Anagnostou, C., Sioulas, A., Eleftheriadis, G., Tsirambides, A., 2000. Distribution of surficial sediments in the Southern Evoikos and Petalioi Gulfs, Greece. Mediterranean Marine Science 1, 111-122.

Karageorgis, A., Anagnostou, Ch., Sioulas, A., Chronis, G., Papathanasiou, E., 1998. Sediment Geochemistry and Mineralogy in Milos Bay, SW Kyklades, Aegean Sea, Greece. Journal of Marine Systems 16, 269-281.

Karageorgis, P.A., Sioulas, I.A., Anagnostou, L.C., 2002. Use of Surface sediments in Pagassiticos Gulf, Greece, to detect anthropogenic influence. Geo-Marine Letters 21, 200-211.

Karageorgis, A.P., Kaberi, H.G., Tengberg, A., Zervakis, V., Hall, P.O.J., Anagnostou, Ch.L., 2003., Comparison of particulate matter distribution, in relation to hydrography, in the mesotrophic Skagerrak and the oligotrophic northeastern Aegean Sea. Continental Shelf Research 23, 1787-1809.

Karageorgis, A.P., Kaberi, H., Price, N.B., Muir, G.K.P., Pates, J.M., Lykousis, V., 2005. Chemical composition of short sediment cores from Thermaikos Gulf (Eastern Mediterranean): sediment accumulation rates, trawling and winnowing effects. Continental Shelf Research 25, 2456-2475.

Karageorgis, A.P., Anagnostou, C.L., Kaberi, H., 2005b. Geochemistry and mineralogy of the NW Aegean Sea surface sediments: implications for river runoff and anthropogenic impact. Applied Geochemistry 20, 69-88.

Karamanis, D., Lacoste, V., Andriamonje, S., Barreau, G., Petit, M., 2002. Experimental and simulated efficiency of a HPGe detector with point-like and extended sources. Nuclear Instruments and Methods A 487, 477-487.

Karamanis, D., 2003. Efficiency simulation of HPGe and Si(Li) detectors in γ - and in X-ray spectroscopy. Nuclear Instruments and Methods A 505, 282-285.

Karangelos, D.J., Anagnostakis, M.J., Hinis, E.P., Simopoulos, S.E., Zunic, Z.S., 2004. Determination of depleted uranium in environmental samples by gamma-spectroscopic techniques. Journal of Environmental Radioactivity 76, 295-310.

Karfopoulos, K.L., and Anagnostakis M.J., 2010. Parameters affecting full energy peak efficiency determination during Monte Carlo simulation. Applied Radiation and Isotopes 68, 1435-1437.

Kaste, J.M., Friedland, A.J., Sturup, S., 2003. Using stable and radioactive isotopes to trace atmospherically deposited Pb in montane forest soils. Environmental Science and Technology 37, 3560-3567.

Kathern, R.D., 1991. Radioactivity in the Environment. Harwood Academic Publishers, Verlag.

Kawrakow, I., and Rogers, D.W.O., 2006. The EGSnrc Code System. NRCC Report PIRS-701, National Research Council of Canada, Ottawa.

Kazancı, N., Leroy, S., Ileri, O., Emre, O., Kibar, M., Oncel, S., 2004. Late Holocene erosion in NW Anatolia from sediments of Lake Manyas, Lake Ulubat and the southern shelf of the Marmara Sea, Turkey. Catena 57, 277-308.

Kerr, G.D., 1988. Quality factors. Health Physics 55, 241.

Keyser, R.M., 2004. Resolution and sensitivity as a function of energy and incident geometry for germanium detectors. Nuclear Instruments and Methods B 213, 236-240.

Keyser, R.M. and Twomey, T.R., 2004. Extended Source Sensitivity and Resolution Comparisons of Several HPGe Detector Types with Low-energy Capabilities. ORTEC Technical Paper, (Presented at INMM, July 2004).

Keyser, R.M., and Hensley, W.K., 2005. Efficiency of germanium detectors as a function of energy and incident geometry: Comparison of measurements and calculations. Radioanalytical and Nuclear Chemistry 264, 259-264.

Keyser, R.M. and Twomey T.R., 2007. Efficiency for close geometries and extended sources of a p-type germanium detector with low-energy sensitivity. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 271, 55-61.

Kirchner, G. 1998. Modeling the Migration of Fallout Radionuclides in Soil Using a Transfer Function Model. Health physics 74, 78-85.

Kirchner, G., 2011. 210Pb as a tool for establishing sediment chronologies: examples of potentials and limitations of conventional dating models. Journal of Environmental Radioactivity 102, 490-494.

Kis, Z., Fazekas, B., Ostor, J., Revay, Zs., Belgya, T., Molnar, G.L., Koltay, L., 1998. Comparison of efficiency functions for Ge gammaray detectors in a wide energy range. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 418, 374-386.

Knoll, G.F., 2000. Radiation Detection and Measurement (3rd Ed.), J. Wiley and Sons, New York.

Koide, M., Soutar, A., Goldberg, E. D., 1972. Marine geochronology with Pb-210. Earth and Planetary Science Letters 14, 442.

Koide M., Bruland, K.W., Goldberg, E.D., 1973. Th-228/Th-232 and Pb-210 geochronologies in marine and lake sediments. Geochimica et Cosmochimica Acta 37, 1171-1181.

Konoplev, A., Bulgakov, A., Popov, V., Bobovnikova, T.I., 1992. Behaviour of longlived Chernobyl radionuclides in a soil-water system. Analyst 117, 1041-1047.

Konoplev, A., Bulgakov, A., Popov, V., Hilton, J., Comans, R., 1996. Long-term investigation of caesium-137 fixation by soils. Radiation Protection Dosimetry 64, 15-18.Monte, L., Brittain, J. E., Håkanson, L., Heling, R., Smith, J.T., Zheleznyak, M., 2003. Review and assessment of models used to predict the fate of radionuclides in lakes. Journal of Environmental Radioactivity 69, 177-205.

Korres, G., Lascaratos, A., Hatziapostolou, E., Katsafados, P., 2002. Towards an Ocean Forecasting System for the Aegean Sea. The Global Atmosphere and Ocean System 8, 191-218.

Kourafalou, V.H. and Barbopoulos, K., 2003. High resolution simulations on the North Aegean Sea seasonal circulation, Annales Geophysica 21, 251–265.

Kourafalou, V.H., Savvidis, Y.G., Krestenitis, Y.N., Koutitas, G.C., 2004. Modelling studies on the processes that influence matter transfer on the Gulf of Thermaikos (NW Aegean Sea). Continental Shelf Research 24, 203-222.

Kourafalou,V., and Tsiaras, K., 2007. A nested circulation model for the North Aegean Sea. Ocean Science 3, 1-16.

Kralik, M., 1999. A rapid procedure for environmental sampling and evaluation of polluted sediments. Applied Geochemistry 14, 807-816.

Kramer, G., Schilling, K., Stodolsky, L., 1968. "Absorption effects" for high-energy photons. Nuclear Physics B 5, 317-324.

Krestenitis, Y.N., Androulidakis, Y., Kompiadou, K., 2005. Evolution of the physical parameters of the Gulf of Thessaloniki. 9th Conference on Environmental Science and Technology, Rhodes, 836-841.

Krishnaswamy, S., Lal, D., Martin, J., Meybeck M., 1971. Geochronology of lake sediments. Earth Planetary Science Letters 11, 407-414.

Kritidis, P. and Florou, H., 1990. Estimation of the 137Cs deposited in Aegean, Cretian and Ionian Seas after the Chernobyl accident. Rapp. Comm. Int. Mer Medit. 32, 318.

Kritidis, P, Florou, H., Papanicolaou, E., 1990. Delayed and late impact of the Chernobyl accident on the Greek environment. Radiation Protection Dosimetry 30, 185-190.

Kritidis, P. and Florou, H., 2001. Radiological impact in Greece of the Chernobyl accident - A 10-y retrospective synopsis. Health Physics 80, 440-446.

Külasji, F. and Şen, Z., 2009. Risk assessment of distribution coefficient from 137Cs measurements. Environmental Monitoring and Assessment 149, 363-370.

Langevin, M., Detraz, C., Epherre, M., Guillemaud-Mueller, D., Jonson, B., Thibault, C., 1984. Observation of p-delayed triton emission. Physics Letters 146B, 176.

Lapp, R.E. and Andrews, H.L., 1972. Nuclear Radiation Physics, 4th Edition. Prentice Hall, London.

LARA, 2014. Nuclide Gamma and Alpha Library, Decay Data Evaluation Project, Laboratoire National Henri Becquerel, France. On-line database: <u>http://laraweb.free.fr/</u>

Larivière, D., Reiber, K.M., Evans, R.D., Cornett, R.J., 2005. Determination of 210Pb at ultra-trace levels in water by ICP-MS. Analytica Chimica Acta 549, 188-196.

Lascaratos, A., Roether, W., Nittis, K., Klein, B., 1999. Recent changes in deep water formation and spreading in the eastern Mediterranean Sea: a review. Progress in Ocenaography 44, 5-36.

Laskaratos, A. and Kaltsounidis, N., 1989. Study on the hydrodynamics of Saronikos Gulf and the pollution from the Athens sewage discharge. Final Report, University of Athens, Athens.

Latinopoulos, P.D., Krestenitis, Y.N., Valioulis, I.A., 1996. A decision analysis approach to a coastal pollution problem: the sewage system of the City of Thessaloniki (Greece). Proceedings of the 1st Internation Conference on Environmental Problems in Coastal

Regions, In: Ferrante, A.J. and Brebbia, C.A. (Eds.), Computational Mechanics Publications, Southampton, 11-21.

Laubenstein, M., Hult, M., Gasparro, J., Arnold, D., Neumaier, S., Heusser, G., Kohler, M., Povinec, P., Reyss, J.L., Schwaiger, M., Theodorsson, P., 2004. Underground measurements of radioactivity. Applied Radiation and Isotopes 61, 167-172.

Leo, W.R., 1987. Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments, Springer-Verlag, Berlin.

Lépy, M.-C., Altzitzoglou, T., Anagnostakis, M.J., Arnold, D., Capogni, M., Ceccatelli, A., De Felice, P., Dersch, R., Dryak, P., Fazio, A., Ferreux, L., Guardati, M., Han, J.B., Hurtado, S., Karfopoulos, K.L., Klemola, S., Kovar, P., Lee, K.B., Ocone, R., Ott, O., Sima, O., Sudar, S., Svec, A., Chau Van Tao, Tran Thien Thanh, Vidmar, T., 2008. Intercomparison of methods for coincidence summing corrections in gamma-ray spectrometry—part I (point sources). Applied Radiation and Isotopes 8, 1407-1412.

Lépy, M.-C., Altzitzoglou, T., Anagnostakis, M.J., Capogni, M., Ceccatelli, A., De Felice, P., Djurasevic, M., Dryak, P., Fazio, A., Ferreux, L., Giampaoli, A., Han, J.B., Hurtado, S., Kandic, A., Kanisch, G., Karfopoulos, K.L., Klemola, S., Kovar, P., Laubenstein, M., Lee, J.H., Lee, J.M., Lee, K.B., Pierre, S., Carvalhal, G., Sima, O., Chau Van Tao, Tran Thien Thanh, Vidmar, T., Vukanac, I., Yang, M.J., 2012. Intercomparison of methods for coincidence summing corrections in gamma-ray spectrometry—part II (volume sources). Applied Radiation and Isotopes 70, 2112-2118.

Lépy, M.C., Altzitzoglou, T., Arnold, D., Bronson, F., Noy, R.C., Décombaz, M., De Corte, F., Edelmaier, R., Peraza, E.H., Klemola, S., Korun, M., Kralik, M., Neder, H., Plagnard, J., Pommé, S., de Sanoit, J., Sima, O., Ugletveit, F., Van Velzen, L., Vidmar, T., 2001. Intercomparison of efficiency transfer software for gamma-ray spectrometry. Applied Radiation and Isotopes 55, 493-503.

Li, Y.-H. and Schoonmaker, J.E., 2014. 9.01 - Chemical Composition and Mineralogy of Marine Sediments, In: (Ed.: Holland, H.D.and Turekian, K.K) Treatise on Geochemistry, 2nd Edition, Elsevier, Oxford, 1-32.

Ligero, R.A., Ramos-Lerate, I., Barrera, M., Casas-Ruiz, M., 2001. Relationships between sea-bed radionuclide activities and some sedimentological variables. Journal of Environmental Radioactivity 57, 7-19.

Ligero, R.A., Barrera, M., Casas-Ruiz, M., Sales, D., Lopez-Aguayo, F., 2002. Dating of marine sediments and time evolution of heavy metal concentrations in the Bay of Ca' diz, Spain.Environmental Pollution 118, 97-108.

Ligero, R.A., Barrera, M., Casas-Ruiz, M., 2005. Levels of 137Cs in muddy sediments on the seabed in the Bay of Cadiz (Spain). Part II. Model of vertical migration of 137Cs. Journal of Environmental Radioactivity 80, 87-103

Ligero, R.A., Barrera, M., Casas-Ruiz, M., 2005b. Levels of 137Cs in muddy sediments of the seabed of the bay of Cadiz, Spain. Part I. Vertical and spatial distribution of activities. Journal of Environmental Radioactivity 80, 75-86.

Likar, A., Omahen, G., Lipoglavšek, M., Vidmar, T., 2001. A theoretical description of diffusion and migration of 137Cs in soil. Journal of Environmental Radioactivity 57, 191-201.

Liu, J., Carroll, J., Lerche, I., 1991. A technique for disentangling temporal source and sediment variations from radioactive isotope measurements with depth. Nuclear Geophysics 5, 31-45.

Livingston, H.D. and Povinec, P.P., 2000. Anthropogenic marine radioactivity. Ocean and Coastal Management 43, 689-712.

Livingston, H.D., 2004. Marine Radioactivity. Radioactivity in the Environment Series (Ed. Baxter, M.), Elsevier, Amsterdam.

Lozano, J.C., Vera Tomé, F., Blanco Rodríguez, P., Prieto, C., 2010. A sequential method for the determination of 210Pb, 226Ra, and uranium and thorium radioisotopes by LSC and alpha-spectrometry. Applied Radiation and Isotopes 68, 828-831.

Ludington, M.A. and Helmer, R.G., 2000. High accuracy measurements and Monte Carlo calculations of the relative efficiency curve of an HPGe detector from 433 to 2754keV, Nuclear Instruments and Methods A 446, 506-521.

Lykousis, V., Roussakis, G., Alexandri, M., Pavlakis, P., Papoulia, I., 2002. Sliding and regional slope stability in active margin: North Aegean Trough (Mediterranean). Marine Geology 186, 281-298.

Lykousis, V., Sakellariou, D., Moretti, I., Kaberi, H., 2007. Late Quaternary basin evolution of the Gulf of Corinth: Sequence stratigraphy, sedimentation, fault–slip and subsidence rates. Tectonophysics 440, 29-51.

Mabit, L., Benmansour, M., Walling, D.E., 2008. Comparative advantages and limitations of the fallout radionuclides 137Cs, 210Pbex and 7Be for assessing soil erosion and sedimentation. Journal of Environmental Radioactivity 99, 1799-1807.

MacDonald, D.D., Ingersoll, C.G., Berger, T.A., 2000. Development and evaluation of consensus-based sediment quality guidelines for freshwater ecosystems. Arch. Environ. Contam. Toxicol., 39, 20-31.

Maier-Reimer, E. and Sündermann, J., 1982. On tracer methods in computational hydrodynamics. In: M. B. Abbot, M.B., Cunge, J.A. (Eds.), Engineering applications of computational hydraulics 1. Pitman Advanced Publications Programme, Boston, 198-217.

Matishov, D.G. and Matishov, G.G., 2004. Radioecology in Northern European Seas. Springer, Berlin.

Maucec, M., De Meijer, R.J., Rigollet, C., Hendricks, P.H.G.M., Jones, D.G., 2004. Detection of radioactive particles offshore by g- ray spectrometry part I: Monte Carlo assessment of detection of depth limits. Nuclear Instruments and Methods in Physical Research A 525, 593-602.

Maurotto, A., Rizzo, S., Tomarchio, E., 2009. MCNP5 modelling of HPGe detectors for efficiency evaluation in γ -ray spectrometry. Radiation Effects and Defects in Solids 164, 302-306.

Mayer-Goeppert, M. and Jensen, J.H.D., 1955. Elementary theory of Nuclear shell structure. John Wiley and Sons Inc., New York.

McCave, I.N., Syvitski, J.P.M., 1991, Principles and methods of particle size analysis, In: Syvitski, J.P.M. (Ed.), Principles, Methods, and Applications of Particle Size Analysis. Cambridge University Press, New York, 3-21.

McKinney, W.G., et al., 2006. MCNPX overview. Proceedings of the 2006 HSSW, FNAL, Illinois 2006, LA-UR-06-6206.

MCNP, 2014. Monte Carlo N-Particle Transport Code. Los Alamos National Laboratory. Available at: <u>https://laws.lanl.gov/vhosts/mcnp.lanl.gov/index.shtml</u>

Menzel, R., 1960. Transport of strontium-90 in runoff. Science 131, 499-500.

MICOM, 2014. Miami Isopycnal Ocean Model. Rosenstiel School of Marine and Atmospheric Science, Miami. Available at: <u>http://panoramix.rsmas.miami.edu/micom/</u> Miller, J.M., Thomas, B.W., Roberts, P.D., Creamer, S.C., 1982. Measurement of marine radionuclide distribution using a towed sea-bed spectrometer. Marine Pollution Bulletin 13, 315-319.

MODARIA, 2014. Modelling and Data for Radiological Impact Assessments, Official site: <u>http://www-ns.iaea.org/projects/modaria/default.asp?s=8&l=118</u>

Moe, M.K. and Rosen, S.P., 1989. Double-beta decay. Scientific American 261, 48.

Moens, L., De Donder, J., Lin, X., De Corte, F., De Wispelaere, A., Simonits, A., 1981. Calculation of the absolute peak efficiency of gamma-ray detectors for different counting geometries. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research 187, 451-472.

MOIRA, 2014. A Model-based computerised system for management support to Identify optimal remedial strategies for Restoring radionuclide contaminated Aquatic ecosystems and drainage areas – software. Available upon request at: https://sites.google.com/site/moirasoftware/

MOM, 2014. Modular Ocean Model. Geophysical Fluid Mechanics Laboratory, Princeton. Available at: <u>http://www.gfdl.noaa.gov/MOM/MOM.html</u>

Monte, L., 1995. A simple formula to predict approximate initial contamination of lakewater following a pulse deposition of radio-nuclide. Health Physics 68, 397-400.

Monte, L., 1996. Collective models in environmental sciences. Science of the Total Environment 192, 41-47.

Monte, L., 1998. Predicting the migration of dissolved toxic substances from catchments by a collective model. Ecological Modelling 110, 269-279.

Monte, L., Van der Steen, J., Bergström, U., Gallego Diaz, E., Hakanson, L., Brittain, J.E., 2000. The project MOIRA: a model based computerized system for management support to identify optimal remedial strategies for restoring radionuclide contaminated aquatic ecosystems and drainage areas – Final Report. RT/AMB/2000/13, ENEA, Roma.

Monte, L., Brittain, J.E., Hakanson, L., Heling, R., Smith, J.T., Zheleznyak, M., 2003. Review and assessment of models used to predict the fate of radionuclides in lakes. Journal of Environmental Radioactivity 69, 177-205.

Monte, L. Brittain, J. E., Hakanson, L., Smith, J. T., Van Der Perk, M., 2004. Review and assessment of models used to predict the fate of radionuclides from catchments. Journal of Environmental Radioactivity 75, 83-103.

Monte, L., Boyer, P., Brittain, J.E., Håkanson, L., Lepicard, S., Smith, J. T., 2005. Review and assessment of models for predicting the migration of radionuclides through rivers. Journal of Environmental Radioactivity 79, 273-296.

Monte, L., Hofman, D., Brittain, J. (Eds.), 2005b. Evaluation and Network of EC-Decision Support Systems in the Field of Hydrological Dispersion Models and of Aquatic Radioecological Research. RT/2005/49/PROT, Ente per le Nuove tecnologie l'Energia e l'Ambiente, Roma. Available at: <u>http://info.casaccia.enea.it/evanet-hydra</u>

Monte, L., Periañez, R., Kivva, S., Laptev, G., Angeli, G., Barros, H., Zheleznyak, M., 2006. Assessment of state-of-the-art models for predicting the remobilisation of radionuclides following the flooding of heavily contaminated areas: the case of Pripyat River floodplain. Journal of Environmental Radioactivity 88, 267-288.

Monte, L., Boyer, P., Brittain, J.E., Goutal, N., Heling, R., Kryshev, A., Kryshev, I., Laptev, G., Luck, M., Periañez, R., Siclet, F., Zheleznyak, M., 2008. Testing models for predicting the behaviour of radionuclides in aquatic systems. Applied Radiation and Isotopes 66, 1736-1740.

Monte, L., Periañez, R., Boyer, P., Smith, J.T., Brittain, J.E., 2009. The role of physical processes controlling the behaviour of radionuclide contaminants in the aquatic environment: A review of state-of-the-art modelling approaches. Journal of Environmental Radioactivity 100, 779-784.

Monte, L., Brittain, J. E., Gallego, E., Hakanson, L., Hofman, D., Jiménez, A., 2009b. MOIRA-PLUS: A decision support system for the management of complex fresh water ecosystems contaminated by radionuclides and heavy metals. Computers and Geosciences 35, 880-896.

Monte, L., 2011. Regional-scale application of the decision support system MOIRA-PLUS: An example of assessment of the radiological impact of the Chernobyl accident on the fresh water ecosystem in Italy. Journal of Environmental Radioactivity 102, 73-83.

Monte, L., 2011b. Customisation of the decision support system MOIRA-PLUS for applications to the marine environment. Journal of Environmental Radioactivity 102, 1112-1116.

Monte, L., 2014. Application of the migration models implemented in the decision system MOIRA-PLUS to assess the long term behaviour of 137Cs in water and fish of the Baltic Sea. Journal of Environmental Radioactivity 134, 136-144.

Mouton, W.L., Sellschop, J.P.F., Wiechers, G., 1963. Nuclear Resonant Scattering of Gamma Radiation of Variable Energy. Physical Review 129, 361.

Müller, G., 1979. Schwermetalle in den sedimenten des Rheins-Veränderungen seit 1971. Umschan 79, 778-783.

NASA, 2014. National Aeronautics and Space Administration, International Satellite Cloud Climatology Project D2 Monthly Means and Climatology project website: <u>http://isccp.giss.nasa.gov/products/browsed2.html</u>

NCRP, 1987. National Council on Radiation Protection and Measurements, Exposure of the Population in the United States and Canada from Natural Background Radiation (Supersedes NCRP Report No. 45), Report No. 094, NCRP, USA.

NCSR, 2014. National Centre of Scientific Research "Demokritos", Eniromental Radioactivity Laboratory. Deposition map of total caesium in Aegean and Ionian Seas: <u>http://ipta.demokritos.gr/erl/erl_info.html</u>

Nelson, W.R., Hirayama, H., Rogers, D.W.O., 1985. EGS4 User Manual. Stanford Linear Accelerator Center, SLAC-265 Appendix 2, Stanford.

Nielsen, S.P., Iosjpe, M., Strand, P., 1995. A preliminary assessment of potential doses to man from radioactive waste dumped in the Arctic Sea. NRPA Report 8, Noewegian Radiation Protection Authority, Østerås.

Nikitin, A.I., Medinets, V.I., Chumichev, V.B., Katrich, I.Yu., Vakulovskii, S.M., Kozlov, A.I., Lepeshkin, V.I., 1988. Radioactive contamination of the Black Sea as of October 1986 resulting from the accident at the Chernobyl atomic power station, (translated from Russian). Atomnaya Energiya 65, 134-137.

Nir-El, Y. and Haquin, G., 2001. Minimum detectable activity in in situ γ -ray spectrometry. Applied Radiation and Isotopes, 55, 197-203.

Nittis, K., Lascaratos, A., Theocharis, A., 2003. Dense water formation in the Aegean Sea: numerical simulations during the Eastern Mediterranean Transient. Journal Geophysical Research 108, 8120.

Nittis, K., Perivoliotis, L., Korres, G., Tziavos, C., Thanos, I., 2006. Operational monitoring and forecasting for marine environmental applications in the Aegean Sea, Environmental Modelling and Software 21, 243-257.

NOAA, 2014. National Oceanic and Atmospheric Administration, National Environmental Satellite, Data, and Information Service official portal: <u>http://www.nesdis.noaa.gov/</u>

Noakes, J.E. and Harding, J.L., 1982. Nuclear techniques for seafloor mineral exploration. Proceedings in Oceanology International Exhibition and Conference.

Noakes, J.E., Noakes, S.E., Dvoracek, D.K., Culp, R.A., Bush, P.B., 1999. Rapid coastal survey of anthropogenic radionuclides, metals, and organic compounds in surficial marine sediments. Science of the Total Environment 237/238, 449-458.

Novkovic, D., Kandic, A., Djurasevic, M., Vukanac, I., Milosevic, Z., Nadderd, L., 2007. Coincidence summing of X- and gamma-rays in gamma-ray spectrometry. Nuclear Instruments and Methods A 578, 207-217.

Nozaki, Y., Tsubota, H., Kasemsupaya, V., Yashima, M., Ikuta, N., 1991. Residence times of surface-water and particle-reactive Pb-210 and Po-210 in the east china and yellow seas. Geochimica et Cosmochimica Acta 55, 1265-1272.

NSSG, 2014. National Statistical Service of Greece official website: http://www.statistics.gr/

Nucleide, 2009. Decay Data Evaluation Project (DDEP). Available at: <u>http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm</u>

NuDat 2.3, 2014. Nuclear Data, National Nuclear Data Center, Lawrence Berkeley National Laboratory, USA. On-line database <u>http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/</u>

Olson, D.B., Kourafalou, V.H., Johns, W.E., Samuels, G., Veneziani, M., 2007. Aegean surface circulation from a satellite-tracked drifter array. Journal of Physical Oceanography 37, 1898-1917.

Onishi, Y., Serne, R.J., Arnold, E.M, Cowan, C.E., Thompson, F.L., 1980. Critical Review: Radionuclide Transport, Sediment Transport and Water Quality Mathematical Modelling and Radionuclide Sorption/Desorption Mechanisms. Rep. NUREG/CR- 13220, PNL-2901, Pacific Northwest National Lab., Richland.

Oresegun, M.O., Decker, K.M., Sanderson, C.G., 1993. Determination of self-absorption corrections by computation in routine gamma-ray spectrometry for typical environmental samples. Radioactivity and Radiochemistry 4, 38-45.

Oreskes, N., Shrader-Frechette, K., Belitz, K., 1994. Verification, validation, and confirmation of numerical models in the earth sciences. Science 263, 641-646.

Örgün, Y., Altinsoy, N., Şahin, S.Y., Güngör, Y., Gültekin, A.H., Karahan, G., Karacik, Z., 2007. Natural and anthropogenic radionuclides in rocks and beach sands from Ezine region (Çanakkale), Western Anatolia, Turkey. Applied Radiation and Isotopes 65, 39-747.

Osvath, I. and Povinec, P.P., 2001. Seabed g-ray spectrometry: applications at IAEA-MEL. Journal of Environmental Radioactivity53, 335-349.

Papaefthymiou, H., Papatheodorou, G., Moustakli, A., Christodoulou, D., Geraga, M., 2007. Natural Radionuclides and 137Cs distributions and their relationship with sedimentological processes in Patras Harbour, Greece. Journal of Environmental radioactivity 94, 55-74.

Papanikolaou, D., Alexandri, M., Nomikou, P., Ballas, D., 2002. Morphotectonic structure of the western part of the North Aegean Basin based on swath bathymetry. Marine Geology 190, 465-492.

Pappa, F., Patiris, D.L., Eleftheriou, G., Tsabaris, C., Kokkoris, M., Vlastou, R., 2011. Dispersion of 137Cs concentration in the basins of the Aegean Sea. Proceedings in the 20th Symposium of the Hellenic Nuclear Physics Society, Athens 2011, 135-140.

Papucci, C. and Delfanti, R., 1999. 137Cs distribution in the eastern Mediterranean Sea: recent changes and future trend. Sci. Total Environ. 237/238, 67-75.

Pennington, W., Cambray, R.S., Eakins, J.D., Harkness, D.D., 1976. Radionuclide dating of the recent sediments of Blelham Tarn. Freshwater Biology 6, 317-331.

Perissoratis, C., Piper, D.J.W., Lykousis, V., 2000. Alternating marine and lacustrine sedimentation during late Quaternary in the Gulf of Corinth rift basin, central Greece. Marine Geology 167, 391-411.

Peterson, S.R. and Kirchner, T.B., 1998. Data quality and validation of radiological assessment models. Health Physics 74, 147-157.

Petridou, E., Trichopoulos, D., Dessypris, N., Flytzani, V., Haidas, S., Kalmanti, M., Koliouskas, D., Kosmidis, H., Piperopoulou, F., Tzortzatou, F., 1996. Infant leukaemia after the Chernobyl accident. Nature 382, 352-353.

Petropoulos, N.P., Anagnostakis, M.J., Hinis, E.P., Simopoulos, S.E., 2001. Geographical mapping and associated fractal analysis of the long-lived Chernobyl fallout radionuclides in Greece. Journal of Environmental Radioactivity 53, 59-66.

Petropoulos, N.P., Anagnostakis, M.J., Simopoulos, S.E., 2002. Photon attenuation, natural radioactivity content and radon exhalation rate of building materials. Journal of Environmental Radioactivity 61, 257-269.

Pirazzoli, P.A., Stiros, S.C., Fontugne, M., Arnold, M., 2004. Holocene and Quaternary uplift in the central part of the southern coast of the Corinth Gulf (Greece). Marine Geology 212, 35-44.

Pisarev, V., Koloskov, I., Kuznetsova, V., Tsybozov, I., 1972. Leaching of strontium-90 from soil by surface water. Soviet Soil Science, 193-201.

Plater, A.J., Ridgway, J., Appleby, P.G., Berry, A., Wright, M.R., 1998. Historical contaminant fluxes in the Tees estuary, UK: geochemical, magnetic and radionuclide evidence. Marine Pollution Bulletin 37, 343-360.

Plenteda, R. and De Geer, L.E., 2002. A virtual gamma spectroscopy laboratory. In: Proceedings of the Fifth International Topical Meeting on Industrial Radiation and Radioisotope Measurement Applications, IRRMA-V. Abstracts Book, Editrice Compositori, Bologna, 261.

POM, 2014. Princeton Ocean Model. Atmospheric and Ocean Sciences Program, Princeton. Available at: http://www.aos.princeton.edu/WWWPUBLIC/htdocs.pom/.POM

Porcelli D., 2008. Investigating groundwater processes using U- and Th- series nuclides. In: Krishnaswami, S. and Cochran, J.K. (Eds.). Radioactivity in the Environment, vol. 13, chapt. 4., Elsevier, Hungary, 105-153.

Poulos, S.E., Collins, M.B., Ke, X., 1993. Fluvial/wave interaction controls on delta formation for ephemeral rivers discharging into microtidal waters. Geo Marine Letters 13, 24-31.

Poulos, S.E., Collins, M.B., Pattiaratchi, C., Cramp, A., Gull, W., Tsimplis, M. Papatheodorou, G., 1996. Oceanography and sedimentation in the semi-enclosed, deep-water Gulf of Corinth (Greece). Marine Geology 134, 213-235.

Poulos, S. and Chronis, G., 1997. The importance of the Greek River systems in the evolution of the Greek coastline. In: Briand, F., Maldonado, A. (Eds.), Transformations and Evolution of the Mediterranean Coastline. CIESM Science Series n8 3, Bull Inst. Ocean., Monaco, 18, 75-96.

Poulos, S.E., Drakopoulos, P.G., Collins, M.B., 1997. Seasonal variability in sea surface oceanographic conditions in the Aegean Sea (Eastern Mediterranean): an overview. Journal of Marine Systems 13, 225-244.

Poulos, S.E., Chronis, G.T., Collins, M.B., Lykousis, V., 2000. Thermaikos Gulf coastal system, NW Aegean Sea: an overview of water/sediment fluxes in relation to air– land–ocean interactions and human activities. Journal of Marine Systems 25, 47-76.

Poulos, S., Kapsimalis, V., Tziavos, C., Pavlakis, P., Livaditis, G., Collins, M.B., 2005. Sealevel stands and Holocene geomorphological evolution of the northern deltaic margin of the Amvrakikos Gulf, western Greece. Zeitchrift fur Geomorphologie 137, 125-145.

Poulos, S.E., Kapsimalis, V., Tziavos, C., Paramana, T., 2008. Origin and distribution of surface sediments and human impacts on recent sedimentary processes. The case of the Amvrakikos Gulf (NE Ionian Sea). Continental Shelf Research 28, 2736-2745.

Povinec, P.P., Osvath, I., Baxter, M.S., 1996. Underwater gamma-spectrometry with HPGe and NaI(Tl) detectors. Applied Radiation and Isotopes 47, 1127-1133.

Povinec, P.P., Livingston, H.D., Shima, S., Aoyama, M., Gastaud, J., Goroncy, I., Hirose, K., Huynh-Ngoc, L., Ikeuchi, Y., Ito, T., La Rosa, J., Wee Kwong, L., Lee, S.H., Moriyah, H., Mulsow, S., Oregioni, B., Pettersson, H., Togawa, O., 2003. IAEA'97 expedition to the NW Pacific Oceandresults of oceanographic and radionuclide investigations of the water column. Deep-Sea Research II 50, 2607-2637.

Press, W.H., Flannery, B.P., Teukolsky, S.A., Vetterling, W.T., 1992. Numerical Recipes in Fortran 77: The Art of Scientific Computing (Vol. 1 of Fortran Numerical Recipes), Cambridge University Press, 680-683.

Pröhl, G., Ehlken, S., Fiedler, I., Kirchner, G., Klemt, E., Zibold, G., 2006. Ecological halflives of ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs in terrestrial and aquatic ecosystems. Journal of Environmental Radioactivity 91, 41-72.

Pujol, J., 2007. The solution of nonlinear inverse problems and the Levenberg-Marquardt method. Geophysics 72, W1–W16.

Putyrskaya, V., and Klemt, E., 2007. Modeling 137Cs migration processes in lake sediments. Journal of Environmental Radioactivity 96, 54-62.

Radakovitch, O., 1995. Étude du transfert et du dépôt du matériel particulaire par le ²¹⁰Po et le ²¹⁰Pb. Application aux marges continentales du Golfe de Gascogne (NE Atlantique) et du Golfe du Lion (NW Méditerranée). Ph.D. Thesis, University of Perpignan, Perpignan.

Radakovitch, O., Charmasson, S., Arnaud, M., Bouisset, P., 1999. 210Pb and caesium accumulation in the Rhône Delta sediments. Estuarine, Coastal and Shelf Research 16, 363-378.

Radhakrishna, A.P., Somashekarappa, H.M., Narayana, Y., Siddappa, K., 1993. A new natural background radiation area on the southwest coast of India. Health Physics 65, 390-395.

Ramos-Lerate, I., Barrera, M., Ligero, R.A., Casas-Ruiz, M., 1998. A new method for gamma-efficiency calibration of voluminal samples in cylindrical geometry. Journal of Environmental Radioactivity 38, 47-57.

Ramos-Lerate, I., Barrera, M., Ligero, R.A., Casas-RuizA, M., 1997. A new summingcorrection method for gamma efficiency calibration with multi-gamma-ray radionuclides.Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 395, 202-206.

Ravisankar, R., Sivakumar, S., Chandrasekaran, A., Prince Prakash Jebakumar, J., Vijayalakshmi, I., Vijayagopal, P., Venkatraman, B., 2014. Spatial distribution of gamma radioactivity levels and radiological hazard indices in the East Coastal sediments of Tamilnadu, India with statistical approach Radiation Physics and Chemistry 103, 89-98.

Reines, F., 1979. The early days of experimental neutrino physics. Science 203, 11-16.

Ríos-Insua, S., Gallego, E., Jiménez, A., Mateos, A., 2006. A Multi-Attribute Decision Support System for selecting intervention strategies for radionuclide contaminated freshwater ecosystem. Ecological Modelling 196, 195-208.

Ritchie, J.C. and McHenry, J.R., 1990. Application of radiation fallout 137Cs for measuring soil erosion and sediment accumulation rates and patterns: A review. Journal of Environmental Quality 19, 215-233.

Robbins, J.A, 1978. Geochemical and geophysical applications of radioactive lead isotopes. In: Nriagu, J.O. (Ed.), Biochemistry of Lead. Elsevier, Amsterdam, 85-393.

Robbins, J.A. and Edgington, D.N., 1975. Determination of recent sedimentation rates in Lake Michigan using Pb-210 and Cs-137. Geochimica et Cosmochimica Acta 39, 285-304.

Robinson, A.R., Malanotte-Rizzoli, P., Hecht, A., Michelato, A., Roether, W., Theocharis, A., Unluata, U., Pinardi, N., Artegiani, A., Bergamasco, A., Bishop, J., Brenner, S., Christanidis, S., Gacic, M., Georgopoulos, D., Golnaraghi, M., Haussmann, K., Junghaus, H.G., Lascaratos, A., Latif, M.A., Leslie, W.G., Lozano, C.J., Oguz, T., Ozsoy, E., Papageorgiou, E., Pachini, E., Rozentroub, Z., Sansone, E., Scarazzato, P., Schlitzer, R., Spezie, G.C., Tziperman, E., Zodiatis, G., Athanassiadou, L., Gerges, M., Osman, M., 1992. General circulation of the Eastern Mediterranean. Earth-Science Reviews 32, 285-309.

Ródenas, J., Gallardo, S., Ballester, S., Primault, V., Ortiz, J., 2007. Application of the Monte Carlo method to the analysis of measurement geometries for the calibration of a HP Ge detector in an environmental radioactivity laboratory. Nuclear Instruments and Methods B 263, 144-148.

Rodenas, J., Martinavarro, A., Rius, V., 2000. Validation of the MCNP code for the simulation of Ge-detector calibration. Nuclear Instruments and Methods A 450, 88-97.

Rose, H.J. and Jones, G.A., 1984. A new kind of natural radioactivity. Nature 307, 245.

Ruiz-Fernandez, A.C., Hillaire-Marcel, C., de Vernal, A., Machain-Castillo M.L., Vasquez, L., Ghaleb, B., Aspiazu-Fabian, J.A., Paez-Osuna, F., 2009. Changes of coastal sedimentation in the Gulf of Tehuantepec, South Pacific Mexico, over the last 100 years from short-lived radionuclide measurements. Estuarine, Coastal and Shelf Research 82, 525-536.

Ryan, W.B.F., Pitman, W.C., Major, C.O., Shimkus, K., Moskalenko, V., Jones, G.A., Dimitrov, P., Gorur, M., Sakinc, M., Yuce, H., 1997. An abrupt drowning of the Black Sea shelf. Marine Geology 138, 119-126.

Saad, H.R. and Al-Azmi, D., 2002. Radioactivity concentrations in sediments and their correlation to the coastal structure in Kuwait. Applied Radiation and Isotopes 56, 991-997.

Saegusa, J., Kawasaki, K., Mihara, A., Mitsuo, I., Yoshida, M., 2004. Determination of detection efficiency curves of HPGe detectors on radioactivity measurement of volume samples. Applied Radiation and Isotopes 61, 1383-1390.

Saltelli, A., Chan, K. Scott, E.M., 2000. Sensitivity Analysis. Wiley, New York.

Salvat, F., Fernández-Varea, J.M., Sempau, J., 2008. PENELOPE: A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport. OECD Nuclear Energy Agency, Issy-les-Moulineaux, France.

Sanchez-Cabeza, J.A., Masque, P., Ani-Ragolta I., Vajda, N., LaRosa, J., Zeisler, R., Danesi, P., Kis-Benede, G., 1997. A novel technique for the simultaneous determination of 210Pb and 210Po using a crown ether. Journal of Environmental Radioactivity 37, 355-372.

Sanchez-Cabeza, J.A., Masque, P., Ani-Ragolta, I., 1998. 210Pb and 210Po analysis in sediments and soils by microwave acid digestion. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 227, 19-22.

Sanchez-Cabeza, J.A., Masqué, P., Ani-Ragolta, I., Merino, J., Frignani, M., Alvisi, F., Palanques, A., Puig, P., 1999. Sediment accumulation rates in the southern Barcelona continental margin (NW Mediterranean Sea) derived from 210Pb and 137Cs chronology. Progress in Oceanography 44, 313-33.

Sanchez-Cabeza, J.A., Ani-Ragolta, I, Masque, P., 2000. Some considerations of the 210Pb constant rate of supply (CRS) dating model. Limnology and Oceanography 45, 990-995.

Sanchez-Cabeza, J.A., Garcia-Talavera, M., Costa E., Pena, V., Garcia-Orellana J., Masque, P., Nalda, C., 2007. Regional calibration of erosion radiotracers 210Pb and 137Cs: atmospheric fluxes to soils Northern Spain. Environmental Science and Technology 41, 1324-1330.

Sanchez-Cabeza, J.A., Liong Wee Kwong, L., Betti, M., 2010. Method to determine 226Ra in small sediment samples by ultralow background liquid scintillation. Analitical Chemistry 82, 6847-6853.

Sanchez-Cabeza, J.A. and Ruiz-Fernandez, A.C., 2012. 210Pb sediment radiochronology: An integrated formulation and classification of dating models. Geochimica et Cosmochimica Acta 82, 183-200.

Schelske, C.L., Peplow, A., Brenner, M., Spencer, C.N., 1994. Low-background gamma counting: applications for 210Pb dating of sediments. Journal of Paleolimnology 10, 115-128.

Schumacher, M., 1999. Delbrück scattering, Radiation Physics and Chemistry 56, 101-111.

Scott, E.M., 1993. Low level measurements of radioactivity in the environment. In: Garcia-Leon, M. and Garcia-Tenorio, R. (Eds.), Proceedings of 3rd International Summer School. World Scientific publishers, Spain.

Scott, E.M., 1997. Uncertainty and sensitivity studies of models of environmental systems. In: Proceedings of Winter Simulation Conference. San Diego, Ch. 213.

Scott, E.M., Gurbutt, P., Harms, I., Heling, R., Kinehara, Y., Nielsen, S.P., Osvath, I., Preller, R., Sazykina, T., Wada, A., Sjoeblom, K.L., 1998. Radiological impact assessment within the IAEA Arctic Assessment Project (IASAP). Radiation Protection Dosimetry 75, 257-261.

Scoullos, M., 1983.Trace metals in a landlocked intermittently anoxic basin. In: Trace metals in seawater. Wong C.S., Boyle, E., Bruland, K.W., Burton, J.D., Goldberg, E.D. (Eds). Plenum Press, New York, 351-366.

Scoullos, M.I., Sakellari, A., Giannopoulou, K., Paraskevopoulou, V., Dassenakis, M., 2007. Dissolved and particulate trace metal levels in the Saronikos Gulf, Greece, in 2004. The impact of the primary Wastewater Treatment Plant of Psittalia. Desalination 210, 98-109.

Seltzer, S.M., 1991. Electron-photon Monte Carlo calculations: The ETRAN code, International Journal of Radiation Applications and Instrumentation A. Applied Radiation and Isotopes 42, 917-941.

Semizhon, T., Röllin, S., Spasova, Y., Klemt E., 2010. Transport and distribution of artificial gamma-emitting radionuclides in the River Yenisei and its sediment. Journal of Environmental Radioactivity 101, 385-402.

Semkow, T.M., Mehmood, G., Parekh, P.P., Virgil, M., 1990. Coincidence summing in gamma-ray spectrometry. Nuclear Instruments and Methods A 290, 437-444.

Shaw, G., 2007. Radioactivity in the Terrestrial Environment. Radioactivity in the Environment Series (Ed. Baxter, M.), Elsevier, Amsterdam.

Sheppard, C.R.C., 1977. Effects of Athens pollution outfalls on marine fauna of the Saronikos Gulf. International Journal of Environmental Studies 11, 39-43.

Shi, Q., Zhang, J., Chang, Y., Qian, S., 2005. Comparison between summing-up algorithms to determine areas of small peaks on high baselines. Nuclear Instruments and Methods A 555, 220-224.

Sima, O., Arnold, D., Dovlete, C., 2001. GESPECOR — a versatile tool in gamma-ray spectrometry. Radioanalitical and Nuclear Chemistry 248, 359-364.

Sima, O. and Arnold, D., 2008. A tool for processing decay scheme data that encompasses coincidence summing calculations. Applied Radiation and Isotopes 66, 705-710.

Simboura, N., Panayotidis, P., Papathanassiou, E., 2005. A synthesis of the biological quality elements for the implementation of the European Water Framework Directive in the Mediterranean ecoregion: the case of Saronikos Gulf. Ecological Indicies 5, 253-266.

Sioulas, A., Anagnostou, Ch., 1989. Heavy metals in the sediments of Geras gulf. Congress of Environmental Sciences and Technology, Mytilini, 508-518.

Sioulas, A., Anagnostou, Ch., Kersten, M., 1990. Heavy metals in the modern sediments of Elefsis gulf, as an index of anthropogenous impact in the marine environment of the area. 2nd Chemistry Congress of Greece and Cyprus, Athens 1990, 280-285.

Skoulikidis, N., 1993. Significance evaluation of factors controlling river water composition. Environmental Geology 22, 178–185.

Smith, J.N. and Walton, A., 1980. Sediment accumulation rates and geochronologies measured in the Saguenay Fjord using the Pb-210 dating method. Geochimica et Cosmochimica Acta 44, 225-240.

Smith, J.M. and Ellis, K.M., 1982. Transport mechanism for Pb-210, Cs-137 and Pu fallout radionuclides through fluvial-marine systems. Geochimica Cosmochimica Acta 46, 941-954.

Stashchuk, N. and Hutter, K., 2001. Modeling of water exchange through the Strait of the Dardanelles. Continental Shelf Research 21, 1361-1382.

Sterlinski, S., 1968. Analysis of digital data from a multichannel pulse height analyzer on gamma ray total absorption peaks in activation analysis. Analytical Chemistry 40, 1995-1998.

Sterlinski, S., 1970. Features of the modified Covell method for computation of total absorption peak areas in complex gamma-ray spectra. Analytical Chemistry 42, 151-155.

Svec, A., 2008. Analytical efficiency curve for coaxial germanium detectors. Applied Radiation and Isotopes 66, 786-791.

Szentmiklósi, L., and Berlizov, A.N., 2009. Characterization of the Budapest prompt-gamma spectrometer by Monte Carlo simulations. Nuclear Instruments and Methods A 612, 122-126.

Tamura, T., 1964. Selective sorption reactions of 137Cs with soil minerals. Nuclear Safety 5, 262-268.

Taylor, S. R., 1972. Abundance of chemical elements in the continental crust: a new table. Geochimistry Cosmochimistry Acta 28, 1273-1285

Thébault, H., Rodriguez y Baena, A. M., Andral, B., Barisic, D., Albaladejo, J. B., Bologa, A. S., et al., 2008. 137Cs baseline levels in the mediterranean and black sea: A cross-basin survey of the CIESM mediterranean mussel watch programme. Marine Pollution Bulletin 57, 801-806.

Theocharis, A., Abdul Fattah, A., Astraldi, M., Boscolo, R., Bryden, H., Civitarese, G., Font, J., Gacic, M., Gasparini, G.P., Georgopoulos, D., Gertman, I., Gould, J., Jourdan, D., Klein, B., Kontar, E., Lascaratos, A., Lopez-Jurado, J.L., Maillard, C., Malanotte-Rizzoli, P., Manca, B., Manzella, G., xMillot, G., Papaevangelou, S., Pinardi, N., Povinec, P., Prieur, L., Roether, W., Salat, J., Snoussi, M., Tber, M., Triki, M., Vargas, M., Vilibic, I., 2003. Long-term sustained observing system for climatic variability studies in the Mediterranean. In: (Eds: Dahlin, H., Flemming, N.C., Nittis, K., Petersson, S.E.), Elsevier Oceanography Series 69, 78-86.

Theodorou, I.A. and Perissoratis C., 1991. Environmental consideration for design of the Athens Sea Outfall, Saronikos Gulf, Greece. Environmwntal Geological Water Science 17, 233-248.

Thomas, B.W., Miller, J.M., Malcolm, A., 1984. Radiometrie surveys of the seabed. Proceedings in Oceanology International Exhibition and Conference.

Thomson, J.J., 1906. Conduction of Electricity through Gases. Cambridge University Press, London.

Tomlinson, D.C., Wilson, J.G., Harris, C.R., Jeffery, D.W., 1980. Problems in the assessment of heavy metals levels in estuaries and the formation of a pollution index. Helgol. Wiss. Meeresunters 33, 566-575.

Toso, J.P. and Velasco, R.H., 2001. Describing the observed vertical transport of radiocesium in specific soils with three time-dependent models. Journal of Environmental Radioactivity 53, 133-144

Tracy, B.L., Carini, F., Barabash, S., Berkovskyy, V., Brittain, J.E., Chouhan, S., Eleftheriou, G., Iosjpe, M., Monte, L., Psaltaki, M., Shen, J., Tschiersch, J., Turcanu, C., 2013. The sensitivity of different environments to radioactive contamination. Journal of Environmental Radioactivity 122, 1-8.

Triantafyllou, G., Petihakis, G., Pollani, A., 2002. Modelling the temporal and spatial variability of the Aegean-Levantine ecosystem. Aegean Sea Workshop, Rhodes 2002.

Tsabaris, C., Vlachos, D. S., Papadopoulos, C.T., Vlastou, R., Kalfas, C.A., 2001. Application of an Underwater γ -ray Spectrometer for Radioactivity Measurements. Proceedings on the International Symposium on North Aegean System Functioning and Interregional Pollution, Kavala 2001, 31.

Tsabaris, C. and Dakladas, Th., 2004. In-situ gamma ray spectrometry with the KATERINA submersible detector", International Conference on Isotopes in Environmental Studies, IAEA, Monaco 2004, 591-592.

Tsabaris, C. and Thanos, I., 2004. An underwater sensing system for monitoring radioactivity in the marine environment. Mediterranean Marine Science 5, 5-12.

Tsabaris, C., and Ballas, D., 2005. On line gamma-ray spectrometry. Applied Radiation and Isotopes 62, 82-89.

Tsabaris, C., Thanos, I., Dakladas, T., 2005. The development and application of an underwater γ -spectrometer in the marine environment. Radioprotection 40, S677-83.

Tsabaris, C., Vlachos, D.S., Papadopoulos, C.T., Vlastou, R., Kalfas, C.A., 2005b. Set up and application of an Underwater γ - ray spectrometer for radioactivity Measurements. Mediterranean Marine Science 6, 35-40.

Tsabaris, C., Eleftheriou, G., Kapsimalis, V., Anagnostou, C., Vlastou, R., Durmishi, C., Kedhi, M., Kalfas, C.A., 2007. Radioactivity levels of recent sediments in the Butrint Lagoon and the adjacent coast of Albania. Applied Radiation and Isotopes 65, 445-453.

Tsabaris, C., Bagatelas, C., Dakladas, T., Papadopoulos, C.T., Vlastou, R., Chronis, G.T., 2008. An autonomous in situ detection system for radioactivity measurements in the marine environment. Applied Radiation and Isotopes 66, 1419-1426.

Tsabaris, C., Androulakaki, E.G., Kokkoris, M., Eleftheriou, G., Patiris, D.L., Pappa, F.C., Alexakis, S., Vlastou, 2013. A theoretical study for the development of a deep sub-sea radioactivity system. 22nd Annual Symposium Hellenic nuclear Physics Society, Athens 2013.

Tsabaris, C., Zervakis, V., Kaberi, H., Delfanti, R., Georgopoulos, D., Lampropoulou, M., Kalfas, C.A. 2014. 137Cs vertical distribution at the deep basins of the North and Central Aegean Sea, Greece. Journal of Environmental Radioactivity 132, 47-56.

Tsagarakis, K., Coll, M., Giannoulaki, M., Somarakis, S., Papaconstantinou, C., Machias, A., 2010. Food-web traits of the North Aegean Sea ecosystem (Eastern Mediterranean) and comparison with other Mediterranean ecosystems. Estuarine, Coastal and Shelf Science 88, 233-248.

Tsoulfanidis, N., 1995. Measurement and Detection of Radiation (2nd Ed.) Taylor and Francis Inc, Washington.

Turekian, K.K. and Wedepohl, K.H., 1961. Distribution of the elements in some major units of the earth's crust. American Geology Society Bulletin 72, 1175-182.

Turekian, K.K., Nozaki, Y., Benninger, L.K., 1977. Geochemistry of atmospheric radon and radon products. Annual Review of Earth and Planetary Sciences 5, 227-255.

Tzanatos, E., Dimitriou, E., Papaharisis, L., Roussi, A., Somarakis, S., Koutsikopoulos, C., 2006. Principal socio-economic characteristics of the Greek small-scale coastal fishermen, Ocean & Coastal Management 49, 511-527.

Tzifas, I.Tr., Godelitsas, A., Magganas, A., Androulakaki, E., Eleftheriou, G., Mertzimekis, T.J., Perraki, M., 2014. Uranium-bearing phosphatized limestones of NW Greece. Journal of Geochemical Exploration, in press.

Tzika, F., Kontogeorgakos, D., Vasilopoulou, T., Stamatelatos, I.E., 2010. Application of the Monte Carlo method for the calibration of an in situ gamma spectrometer. Applied Radiation and Isotopes 68, 1441-1444.

Udroch, A. and MacKnight, S.D., 1994. Bottom Sediment Sampling, in Handbook of Techniques for Aquatic Sediments Sampling, Chapter 4, 2nd edition, Lewis Pubishers, Boca Raton, 236.

Umgiesser, G., Canu, D.M., Cucco, A., Solidoro, C.A., 2004. Finite element model for the Venice Lagoon: Development, set up, calibration and validation. Journal of Marine Systems 51, 123-145.

UNESCO, 1983. United Nations Educational, Scientific and Cultural Organization, Algorithms for computation of fundamental properties of seawater. UNESCO Technical Papers in Marine Science 44, 1-55.

Unluata, U., Aubrey, D.G., Belberov, Z., Bologa, A., Eremeev, V., Vinogradov, M., 1993. International program investigates the Black Sea. Eos 74, 401/407/4012.

UNSCEAR, 1988. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation. 1988 Report to the General Assembly, with Annexes, United Nations, New York.

UNSCEAR, 2000. United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation, Sources and effects of ionizing radiation, Volume I: Sources. Report to the General Assembly with scientific annexes, UNESCEAR, New York.

Uosif, M.A.M., El-Taher, A., Abbady, A.G.E., 2008. Radiological significance of beach sand used for climatotherapy from Safaga, Egypt. Radiation Protection Dosimetry 131, 331-339.

USEPA, 1999. US Environmental Protection Ageancy, Sediment Q,uality Guidelines developed for the national status and trends program. Report No. 6/12/99. Available at: <u>http://www.epa.gov/waterscience/cs/pubs.htm</u>

Vakulovsky, S.M., Katrich, I.Yu., Krasnopevtsev, Yu.V., Nikitin, A.I., Chumichev, V.B., Shkuro V.N., 1980. Spatial distribution and balance of 3H and 137Cs in the Black Sea in 1977, (translated from Russian). Atomnaya Energiya 49, 105-108.

VAMP, 2000. VAlidation of Model Predictions, Modelling of the Transfer of Radiocaesium from Deposition to Lake Ecosystems. Aquatic Working Group Report, IAEA-TECDOC-1143. IAEA, Vienna.

van der Graaf, E.R., Koomans, R.L., , Limburg, J., de Vries, 1 K., 2007. In situ radiometric mapping as a proxy of sediment contamination: Assessment of the underlying geochemical and -physical principles. Applied Radiation and Isotopes 65, 619-633.

Vargas, M.J. and Guerra, A.L., 2006. Application of PENELOPE code to the efficiency calibration of coaxial germanium detectors. Applied Radiation and Isotopes 64, 1319-1322.

Velaoras, D. and Lascaratos, A., 2005. Deep water mass characteristics and interannual variability in the North and Central Aegean Sea. Journal of Marine Systems 53, 59-85.

Venema, L.B. and de Meijer, R.J., 2001. Natural radionuclides as tracers of the dispersal of dredge spoil dumped at sea. Journal of Environmental Radioactivity 55, 221-239.

Verde, L., Protopapas, P., Jimenez, R., 2013. Planck and the local Universe: Quantifying the tension. Physics of the Dark Universe 2, 166-175.

Vidmar, T., Korun, M., Likara, A., Martincic, R., 2001. A semi-empirical model of the efficiency curve for extended sources in gamma-ray spectrometry. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 470, 533-547.

Vidmar, T., 2005. EFFTRAN— a Monte Carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry. Nuclear Instruments and Methods A 550, 603-608.

Vidmar, T. and Likar, A., 2005. Calculation of total efficiencies of extended samples for HPGe detectors. Nuclear Instruments and Methods A 555, 251-254.

Vidmar, T., and Korun, M., 2006. Calculation of "LS-curves" for coincidence summing corrections in gamma-ray spectrometry. Nuclear Instruments and Methods A 556, 543-546.

Vidmar, T., Aubineau-Laniece, I., Anagnostakis, M.J., Arnold, D., Brettner-Messler, R., Budjas, D., Capogni, M., Dias, M.S., De Geer, L-E., Fazio, A., Gasparro, J., Hult, M., Hurtado, S., Jurado Vargas, M., Laubenstein, M., Lee, K.B., Lee, Y-K., Lepy, M-C., Maringer, F-J., Medina Peyres, V., Mille, M., Moralles, M., Nour, S., Plenteda, R., Rubio Montero, M.P., Sima, O., Tomei, C., Vidmar, G., 2008. An intercomparison of Monte Carlo codes used in gamma-ray spectrometry. Applied Radiation and Isotopes 66, 764-768.

Vidmar, T., and Vodenik, B., 2010. Extended relative method of activity determination. Applied Radiation and Isotopes 68, 2421-2424.

Vidmar, T., Celik, N., Cornejo Diaz, N., Dlabac, A., Ewa, I.O.B., Carrazana Gonzalez, J.A., Hult, M., Jovanovic, S., Lepy, M.-C., Mihaljevic, N., Sima, O., Tzika, F., Jurado Vargas, M., Vasilopoulou, T., Vidmar, G., 2010. Testing efficiency transfer codes for equivalence. Applied Radiation and Isotopes 68, 355-359.

Vidmar, T., Vodenik, B., Necemer, M., 2010b. Efficiency transfer between extended sources. Applied Radiation and Isotopes 68, 2352-2354.

Vidmar, T., Kanisch, G., Vidmar, G., 2011. Calculation of true coincidence summing corrections for extended sources with EFFTRAN. Applied Radiation and Isotopes 69, 908-911.

Vidmar, T., and Kanisch, G., 2012. A recursive deterministic algorithm for treatment of true coincidence summing effects in gamma-ray spectrometry. Applied Radiation and Isotopes 70, 726-732.

Vidmar, T., Capogni, M., Hult, M., Hurtado, S., Kastlander, J., Lutter, G., Lepy, M.-C., Martinkovic, J., Rameback, H., Sima, O., Tzika, F., Vidmar, G., 2014. Equivalence of computer codes for calculation of coincidence summing correction factors. Applied Radiation and Isotopes, ISSN 0969-8043 (in press).

Vlachos, D.S., and Tsabaris, C., 2003. Monte Carlo simulation of Nal(TI) gamma-spectra in sea water. Elsevier Oceanography Series 69 (C), 370-372.

Vlachos, D.S., and Tsabaris, C, 2005. Response function calculation of an underwater gamma ray NaI(Tl) spectrometer. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 539, 414-420.

Voitsekhovitch, O., Chronis, G., Kaberi, H., Kanivets, V., Kirnichniy, V., Anagnostou, Ch., Karageorgis, A., 1999. Reconstruction of recent marine environmental pollution history on the basis of Pb-210 and Cs-137 chronology sediment dating in the coastal area of the Black Sea and Aegean Sea. In: Oceanography of the Eastern Mediterranean and Black Sea,

Similarities and Differences of two Interconnected Basins, International Conference, Athens, 23–26 February 1999.

von Gunten, L., Grosjean, M., Beer, J., Grob, P., Morales A., Urrutia, R., 2009. Age modeling of young non-varved lake sediments: methods and limits. Examples from two lakes in Central Chile. Journal of Paleolimnology 42, 401-412.

Voutsinou-Taliadouri, F. and Satsmadjis, J., 1982. Influence of metropolitan waste on the concentration of chlorinated hydrocarbons and metals in striped mullet. Marine Pollution Bulletin 13, 266-269.

Voutsinou-Taliadouri, F. and Balopoulos, E.T., 1991. Geochemical and physical oceanographic aspects of the Amvrakikos Gulf (Ionian Sea, Greece). Toxicological Environmental Chemistry 31/32, 177-185.

VSP, 2014. Visual Sample Plan software, Pacific Northwest National Laboratory, U.S. Department of Energy. Available at: <u>http://vsp.pnnl.gov/</u>

Walkey, A. and Black, I.A., 1934. An examination of the Degtjareff method for determining soil organic matter and a proposed modification of the chromic acid titration method. Soil Science 37, 29-38.

Walling, D.E., 1998. Use of 137Cs and other fallout radionuclides in soil erosion investigations: Progress, problems and prospects. In: Use of 137Cs in the Study of Soil Erosion and Sedimentation. IAEA TECDOC-1028, IAEA, Vienna, 39-62.

Walling, D.E., and He., Q., 1999. Improved models for estimating soil erosion rates from cesium-137 measurements. Journal of Environmental Quality 28, 611-622.

Walling, D.E. and He., Q., 2000. The global distribution of bomb-derived 137Cs reference inventories. Final Report on IAEA Technical Contracts No. 10361/R0-R1. University of Exeter, Exeter.

Wang, T.K., Ying, T.H., Mar, W.Y., Tseng, C.L., Liao, C.H., Wang, M.Y., 1996. HPGe detector true-coincidence correction for extended cylinder and Marinelli- beaker sources. Nuclear Instruments and Methods A 376, 192-202.

Wedekind, C., Schilling, G., Grüttmüller, M., Becker, K., 1999. Gamma - radiation monitoring network at sea. Applied Radiation and Isotopes 50, 733-741.

Wei, C.L. and Murray, J.W., 1994. The behavior of scavenged isotopes in marine anoxic environments – Pb-210 and Po-210 in the water column of the black-sea. Geochimica et Cosmochimica Acta 58, 1795-1811.

Weise, K., Hubel, K., Rose, E., Schlager, M., Schrammel, D., Taschner, M., Michel, R., 2006. Bayesian decision threshold, detection limit and confidence limits in ionising-radiation measurement. Radiation Protection Dosimetry 121, 52-63.

Wentworth, C.K., 1922. A scale of grade and class terms for clastic sediments, Journal of Geology 30, 377-392.

Westaway, R., 2002. The Quaternary evolution of the Gulf of Corinth, central Greece: coupling between surface processes and flow in the lower continental crust, Tectonophysics 348, 269-318.

WHO, 2011. Guidelines for Drinking Water Quality, 4rd Edn. World Health Organization, New York.

Williams, C.K.I., 1998. Prediction with Gaussian processes: From linear regression to linear prediction and beyond. In: Jordan, M.I. (Ed.), Learning in graphical models. Massachusetts Institute of Technology Press, Cambridge, 599-612.

Wurl, O., 2009. Sampling and Sample Treatments, in Practical guidelines for the analysis of seawater, Ch. 1, CRC Press, Taylor and Francis Inc., New York.

X-5 Monte Carlo Team, 2003. MCNP5 – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5. LA-UR-03-198, LA-CP-03-0245, Los Alamos National Laboratory, 24.

XGAMMA, 2007. X-ray and Gamma-ray Decay Data Standards for Detector Calibration and Other Applications. IAEA-TECDOC-619, IAEA, Vienna. Available at <u>https://www-nds.iaea.org/xgamma_standards/</u>

Yamada, M. and Nagaya, Y., 1998. Temporal variations of 137Cs concentrations in the surface seawater and marine organisms collected from the Japanese coast during the 1980's. Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry 230, 111-114.

Yii, M.W., Zaharudin, A., Abdul-Kadir, I., 2009. Distribution of naturally occurring radionuclides activity concentration in East Malaysian marine sediment. Applied Radiation and Isotopes 67, 630-635.

Zaborska, A., Carroll, J., Papucci, C., Pempkowiak, J., 2007. Intercomparison of alpha and gamma spectrometry techniques used in 210Pb geochronology. Journal of Environmental Radioactivity 93, 38-50.

Zapata, F., 2002. Handbook for the Assessment of Soil Erosion and Sedimentation Using Environmental Radionuclides. Kluwer Publications, Dordrecht, The Netherlands.

Zarkanellas, A.J. and Bogdanos, C.D., 1977. Benthic studies of a polluted area in the upper Saronikos Gulf. Thalassographica 2, 155-177.

Zervakis, V., Georgopoulos, D., Drakopoulos, P.G., 2000. The role of the North Aegean in triggering the recent Eastern Mediterranean climatic changes. Journal of Geophysical Research 105, 26103-26116.

Zervakis, V., Papucci, C., Georgopoulos D., Delfanti, R., 2001. The evolution of 137Cs in the deep North Aegean Sea, Interreg Meeting–North Aegean System Functioning and Inter-Regional Pollution, Kavala 2001.

Zervakis, V. and Georgopoulos, D., 2002. Hydrology and circulation in the North Aegean (Eastern Mediterranean) throughout 1997 and 1998. Mediterranean Marine Science 3, 5-19.

Zervakis, V., Krasakopoulou, E., Georgopoulos, D., Souvermezoglou, E., 2003. Vertical diffusion and oxygen consumption during stagnation periods in the deep North Aegean. Deep Research I 50, 53-71.

Zijp, W.L., Polle, A.N., Nolthenius, H.J., 1986. International comparison of interpolation procedures for the efficiency of germanium gamma-ray spectrometers : GAM83 exercise. Report ECN-181 (ICRM-S-13), Netherlands Energy Research Foundation, Petten.

Zodiatis, G., Theodorou, A., Demetropoulos, A., 1998. Hydrology and circulation south of Cyprus in late summer 1995 and in spring 1996. Oceanologica Acta 21, 447-458.