



**ΕΘΝΙΚΟ
ΜΕΤΣΟΒΙΟ
ΠΟΛΥΤΕΧΝΕΙΟ**
ΣΧΟΛΗ
ΕΦΑΡΜΟΣΜΕΝΩΝ
ΜΑΘΗΜΑΤΙΚΩΝ
ΚΑΙ ΦΥΣΙΚΩΝ
ΕΠΙΣΤΗΜΩΝ
ΤΟΜΕΑΣ ΦΥΣΙΚΗΣ

**ΕΛΛΗΝΙΚΟ
ΚΕΝΤΡΟ
ΘΑΛΑΣΣΙΩΝ
ΕΡΕΥΝΩΝ**
ΙΝΣΤΙΤΟΥΤΟ
ΩΚΕΑΝΟΓΡΑΦΙΑΣ



**Μελέτη της κατακόρυφης κατανομής των ραδιονουκλιδίων σε
θαλάσσιο ίζημα από τον κόλπο της Σούδας**

ΔΙΠΛΩΜΑΤΙΚΗ ΕΡΓΑΣΙΑ

ΑΠΟΣΤΟΛΟΠΟΥΛΟΣ ΦΙΛΙΠΠΟΣ

Ερευνητικός Επιβλέπων: Τσαμπάρης Χρήστος

Ακαδημαϊκή Επιβλέπουσα: Βλαστού-Ζάννη Ρόζα

Αθήνα, Σεπτέμβριος 2019



**ΕΘΝΙΚΟ
ΜΕΤΣΟΒΙΟ
ΠΟΛΥΤΕΧΝΕΙΟ**
ΣΧΟΛΗ
ΕΦΑΡΜΟΣΜΕΝΩΝ
ΜΑΘΗΜΑΤΙΚΩΝ
ΚΑΙ ΦΥΣΙΚΩΝ
ΕΠΙΣΤΗΜΩΝ
ΤΟΜΕΑΣ ΦΥΣΙΚΗΣ

**ΕΛΛΗΝΙΚΟ
ΚΕΝΤΡΟ
ΘΑΛΑΣΣΙΩΝ
ΕΡΕΥΝΩΝ**
ΙΝΣΤΙΤΟΥΤΟ
ΩΚΕΑΝΟΓΡΑΦΙΑΣ



**Μελέτη της κατακόρυφης κατανομής των ραδιονουκλιδίων σε
θαλάσσιο ίζημα από τον κόλπο της Σούδας**

ΔΙΠΛΩΜΑΤΙΚΗ ΕΡΓΑΣΙΑ

ΑΠΟΣΤΟΛΟΠΟΥΛΟΣ ΦΙΛΙΠΠΟΣ

Ερευνητικός Επιβλέπων: Τσαμπάρης Χρήστος

Ακαδημαϊκή Επιβλέπουσα: Βλαστού-Ζάννη Ρόζα

Εγκρίθηκε από την τριμελή εξεταστική επιτροπή την 23^η Σεπτεμβρίου 2019.

ΤΡΙΜΕΛΗΣ ΕΠΙΤΡΟΠΗ:

ΒΛΑΣΤΟΥ-ΖΑΝΝΗ ΡΟΖΑ (Καθηγήτρια, ΕΜΠ)

ΤΣΑΜΠΑΡΗΣ ΧΡΗΣΤΟΣ (Δ/ντης Ερευνών, ΕΛΚΕΘΕ)

ΚΟΚΚΟΡΗΣ ΜΙΧΑΛΗΣ (Καθηγητής, ΕΜΠ)

Αθήνα, Σεπτέμβριος 2019

ΕΥΧΑΡΙΣΤΙΕΣ

Θα ήθελα να ευχαριστήσω το Διευθυντή Ερευνών του Ινστιτούτου Ωκεανογραφίας του ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε. και ερευνητικό επιβλέποντα της εργασίας Δρ. Τσαμπάρη Χρήστο και την Καθηγήτρια του Ε.Μ.Π. και επιβλέπουσα της διπλωματικής κα. Βλαστού-Ζάννη Ρόζα για την ανάθεση αυτής της διπλωματικής, τη στήριξη και την καθοδήγησή τους καθόλη τη διάρκεια της εκπόνησης, όπως επίσης και τον Καθηγητή του Ε.Μ.Π. κ. Κόκκορη Μιχάλη, για την ωφέλιμη βοήθεια και τις παρατηρήσεις του.

Επιπροσθέτως, θα ήθελα να ευχαριστήσω θερμά τον Εντεταλμένο Ερευνητή του Ινστιτούτου Ωκεανογραφίας του ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε Δρ. Πατήρη Διονύση, τη Δρ. Φρόσω Ανδρουλακάκη, το Δρ. Ελευθερίου Γιώργο και τη Δρ. Φιλοθέη Παππά για τις συμβουλές τους και τον χρόνο που αφιέρωσαν οι οποίοι συνέβαλαν τα μέγιστα για τη βελτίωση και την ολοκλήρωση της εργασίας.

Τέλος, θα ήθελα να ευχαριστήσω το Δρ. Κάλφα Κώστα για την χορήγηση του προγράμματος ανάλυσης SPECTRW, το οποίο αποτέλεσε και το σημαντικότερο εργαλείο στην ανάλυση των αποτελεσμάτων και το Διευθυντή Ερευνών του Ινστιτούτου Ωκεανογραφίας του ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε Δρ. Καψιμάλη Βασίλειο για τη χορήγηση του πυρήνα του θαλάσσιου ιζήματος ο οποίος μελετήθηκε.

Abstract

Natural radionuclides are found in sediments as a result of natural processes (NORM, Naturally Occurring Radioactive Materials). The human exploitation of these natural resources may lead to enhanced levels of natural radionuclides (higher than in the ore of the area). Souda port, located at the western part of the island of Crete, was a port from ancient times until today being the second largest of the island. Today it is an industrial park and a base of the Hellenic Navy and of NATO forces. These activities lead to a necessity to perform a radioactivity assessment in the area. Until today there are no published data of levels of natural and artificial radioactivity in this area. The aim of this study is to conduct a first evaluation of the radioactivity levels and determine the sedimentation rate. For this purpose, a sediment core was collected from a central point of the port, from the bottom of the sea. The radionuclides concentrations were determined by gamma-ray spectroscopy. The analysis of the samples showed that the radioactivity levels are comparable with reference levels in other Greek areas. Specifically, the concentration of the ^{238}U (^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{226}Ra) and ^{232}Th (^{208}Tl , ^{212}Pb , ^{228}Ac) series radionuclides ranged between 13 Bq kg^{-1} - 34 Bq kg^{-1} and 20 Bq kg^{-1} - 50 Bq kg^{-1} , respectively. The ^{235}U activity concentration ranged between 2 Bq kg^{-1} - 8 Bq kg^{-1} and ^{40}K ranged between 200 Bq kg^{-1} - 540 Bq kg^{-1} . The concentration of the artificial radionuclide ^{137}Cs ranged from 2 Bq kg^{-1} to 6 Bq kg^{-1} . The sedimentation rate using the methods of ^{210}Pb and ^{137}Cs was estimated in 0.32 cm y^{-1} .

ΠΕΡΙΛΗΨΗ

Στην παρούσα εργασία πραγματοποιήθηκε η μελέτη των επιπέδων της φυσικής και τεχνητής ραδιενέργειας στον κόλπο της Σούδας, στα Χανιά Κρήτης. Στόχος της διπλωματικής εργασίας ήταν μία πρώτη εκτίμηση των επιπέδων της φυσικής και τεχνητής ραδιενέργειας καθώς και ο προσδιορισμός του ρυθμού ιζηματογένεσης της περιοχής μελέτης.

Το λιμάνι της Σούδας λειτούργησε από την αρχαιότητα ως κομβικό σημείο εξέλιξης του εμπορίου και της διάδοσης του πολιτισμού της Κρήτης. Σήμερα αποτελεί το δεύτερο μεγαλύτερο λιμάνι του νησιού, είναι βιομηχανικό πάρκο και βάση του Πολεμικού Ναυτικού και του NATO. Μέχρι σήμερα δεν υπάρχουν δημοσιευμένα δεδομένα για τα επίπεδα φυσικής και τεχνητής ραδιενέργειας για την περιοχή. Για τις μετρήσεις της παρούσας εργασίας, πραγματοποιήθηκε δειγματοληψία σε κεντρικό σημείο του λιμένα, συλλέγοντας πυρήνα ιζήματος από τον πυθμένα της θάλασσας. Τα επίπεδα της φυσικής και τεχνητής ραδιενέργειας προσδιορίστηκαν με τη μέθοδο της φασματοσκοπίας-γ.

Τα αποτελέσματα έδειξαν συγκεντρώσεις ενεργότητας για όλα τα ραδιονουκλίδια που μετρήθηκαν (σειρά του ^{238}U , σειρά του ^{232}Th , ^{235}U , ^{40}K) εντός επιπέδων αναφοράς για την Ελλάδα όπως προέκυψε από τη σύγκριση με άλλες δειγματοληψίες. Συγκεκριμένα, για τα ραδιονουκλίδια της σειράς του ^{238}U (^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{226}Ra) οι τιμές κυμάνθηκαν από 13 Bq kg^{-1} έως 34 Bq kg^{-1} , για τα ραδιονουκλίδια της σειράς του ^{232}Th (^{208}Tl , ^{212}Pb , ^{228}Ac) από 20 Bq kg^{-1} έως 50 Bq kg^{-1} , για το ^{235}U από 2 Bq kg^{-1} έως 8 Bq kg^{-1} , για το ^{40}K από 200 Bq kg^{-1} έως 540 Bq kg^{-1} , για το τεχνητό ^{137}Cs από 1 Bq kg^{-1} έως 6 Bq kg^{-1} . Από το συνδυασμό των μεθόδων ραδιοχρονολόγησης με ^{210}Pb και ^{137}Cs ο ρυθμός ιζηματογένεσης της περιοχής εκτιμήθηκε σε 0.32 cm y^{-1} .

ΠΕΡΙΕΧΟΜΕΝΑ

ΕΥΧΑΡΙΣΤΙΕΣ.....	2
Abstract.....	3
ΠΕΡΙΛΗΨΗ.....	4
ΠΕΡΙΕΧΟΜΕΝΑ.....	5
ΛΙΣΤΑ ΕΙΚΟΝΩΝ.....	7
ΛΙΣΤΑ ΠΙΝΑΚΩΝ.....	9
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 1	
ΕΙΣΑΓΩΓΗ.....	10
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 2	
ΣΤΟΙΧΕΙΑ ΘΕΩΡΙΑΣ.....	11
2.1 Ραδιενέργεια και Μηχανισμοί Διάσπασης.....	11
2.2 Νόμος Ραδιενεργών Διασπάσεων.....	13
2.3 Φυσική και Τεχνητή Ραδιενέργεια.....	16
2.4 Αλληλεπίδραση φωτονίων με την ύλη.....	17
2.5 Ανίχνευση Ραδιενέργειας.....	20
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 3	
ΠΕΙΡΑΜΑΤΙΚΕΣ ΜΕΘΟΔΟΙ ΚΑΙ ΥΛΙΚΑ.....	25
3.1 Περιοχή Μελέτης.....	25
3.2 Δειγματοληψία.....	25
3.3 Χαρακτηρισμός Ιζήματος.....	27
3.3.1 Φυσικές Παράμετροι.....	27
3.3.2 Κοκκομετρία.....	27
3.4 Μετρήσεις Ραδιονουκλιδίων.....	29
3.4.1 Δειγματοποίηση.....	29
3.5 Φασματική ανάλυση δειγμάτων.....	29

3.6 Μεθοδολογία βαθμονόμησης.....	31
3.6.1 Πηγές αναφοράς.....	32
3.6.2 Ενεργειακή βαθμονόμηση.....	33
3.6.3 Βαθμονόμηση διακριτικής ικανότητας.....	34
3.6.4 Βαθμονόμηση απόλυτης απόδοσης.....	36
3.7 Ραδιοχρονολόγηση με ²¹⁰Pb.....	42
3.8 Ραδιοχρονολόγηση με ¹³⁷Cs.....	43

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 4

ΑΠΟΤΕΛΕΣΜΑΤΑ ΚΑΙ ΣΥΖΗΤΗΣΗ.....	46
4.1 Πυκνότητα και κοκκομετρία δειγμάτων.....	46
4.2 Εκτίμηση ρυθμού ιζηματογένεσης.....	47
4.2.1 Ρυθμός Ιζηματογένεσης ²¹⁰ Pb.....	47
4.2.2 Ρυθμός Ιζηματογένεσης ¹³⁷ Cs.....	49
4.3 Κατανομή συγκέντρωσης ενεργοτήτων στον πυρήνα.....	51
4.4 Συσχέτιση των αποτελεσμάτων συγκεντρώσεων ενεργότητας.....	58
4.4.1 Συσχέτιση μεταξύ ραδιονουκλιδίων.....	58
4.4.2 Συσχέτιση ραδιονουκλιδίων και κοκκομετρίας.....	60
4.5 Ενδείξεις τεχνητής ραδιενέργειας.....	62

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 5

ΣΥΜΠΕΡΑΣΜΑΤΑ.....	64
--------------------------	-----------

ΒΙΒΛΙΟΓΡΑΦΙΑ.....	66
--------------------------	-----------

ΛΙΣΤΑ ΕΙΚΟΝΩΝ

- Εικόνα 2.1** Οι φυσικές ραδιενεργές σειρές [Juhele,2011].
- Εικόνα 2.2** Αναπαράσταση του φωτοηλεκτρικού φαινομένου [IN2P3].
- Εικόνα 2.3** Αναπαράσταση της σκέδασης Compton [MIT OpenCourseWare, 2006].
- Εικόνα 2.4** Αναπαράσταση της δίδυμης γένεσης [University of Virginia, 2005].
- Εικόνα 2.5** Διάγραμμα επικρατέστερου μηχανισμού αλληλεπίδρασης αναλόγως με τον ατομικό αριθμό του στόχου και την ενέργεια του προσπίπτοντος σε αυτόν φωτονίου [nuclear-power.net, 2015].
- Εικόνα 2.6** Σχηματική αναπαράσταση τομής του ανιχνευτή HPGe [canberra.com].
- Εικόνα 2.7** Σχηματικό διάγραμμα τυπικής ανιχνευτικής διάταξης HPGe [Ελευθερίου Γ, 2014].
- Εικόνα 3.1** Το νησί της Κρήτης.
- Εικόνα 3.2** Σημείο δειγματοληψίας.
- Εικόνα 3.3** Φωτογραφία του κιβωτολήπτη.
- Εικόνα 3.4** Τρόπος λειτουργίας του κιβωτολήπτη [Gage and Tyler, 1991].
- Εικόνα 3.5** Τυπικό φάσμα ανάλυσης για το δείγμα 19 cm (μπλε) μαζί με το υπόβαθρο (κόκκινο) μετρημένα για 24 h.
- Εικόνα 3.6** Φάσμα του επιφανειακού δείγματος για τη διπλή κορυφή στα 238 keV.
- Εικόνα 3.7** Οι πηγές του KCl και ^{152}Eu για τη βαθμονόμηση των ανιχνευτικών συστημάτων.
- Εικόνα 3.8** Διάγραμμα Ενέργεια – Κανάλι για τα δύο ανιχνευτικά συστήματα.
- Εικόνα 3.9** Σχηματική αναπαράσταση φωτοκορυφής κεντρικής τιμής H_0 και του FWHM της [Marcia Dutra Ramos Silva].
- Εικόνα 3.10** Διάγραμμα FWHM – Ενέργειας ανιχνευτή ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε.
- Εικόνα 3.11** Διάγραμμα FWHM – Ενέργειας ανιχνευτή ΕΜΠ.
- Εικόνα 3.12** Σχηματική αναπαράσταση της απόλυτης απόδοσης πριν και μετά τις σχετικές διορθώσεις συναρτήσει της ενέργειας.
- Εικόνα 3.13** Καμπύλη της απόλυτης απόδοσης συναρτήσει της ενέργειας για τον ανιχνευτή του ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε.
- Εικόνα 3.14** Καμπύλη της απόλυτης απόδοσης συναρτήσει της ενέργειας για τον ανιχνευτή του ΕΜΠ.
- Εικόνα 3.15** Αναπαράσταση φυσικών διεργασιών εναπόθεσης ^{210}Pb σε υδάτινα ιζήματα.

Εικόνα 3.16 Πυκνότητα εναπόθεσης ^{137}Cs στο βόρειο και νότιο ημισφαίριο [UNSCEAR, 2000].

ΛΙΣΤΑ ΠΙΝΑΚΩΝ

Πίνακας 3.1 Διευρυμένη κλίμακα Wentworth του μεγέθους των κόκκων ιζήματος [Wentworth, 1992].

Πίνακας 3.2 Τα προς μελέτη ισότοπα, οι ραδιενεργές σειρές που ανήκουν, οι ενέργειες που εμφανίζονται και η πιθανότητα εμφάνισής τους.

Πίνακας 3.3 Τιμές ενέργειας και καναλιών για τα δύο ανιχνευτικά συστήματα.

Πίνακας 3.4 Τιμές ενέργειας και των FWHM των φωτοκορυφών τους για τα δύο ανιχνευτικά συστήματα.

Πίνακας 3.5 Τιμές ενέργειας, διορθωτικοί παράγοντες και απόλυτη απόδοση για τον ανιχνευτή του ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε.

Πίνακας 3.6 Τιμές ενέργειας, διορθωτικοί παράγοντες και απόλυτη απόδοση για τον ανιχνευτή του ΕΜΠ.

Πίνακας 4.1 Τιμές πυκνότητας και κοκκομετρίας για τα δείγματα.

Πίνακας 4.2 Τα αποτελέσματα των συγκεντρώσεων ενεργότητας από την ανάλυση των φωτοκορυφών των θυγατρικών ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{238}U .

Πίνακας 4.3 Τα αποτελέσματα των συγκεντρώσεων ενεργότητας από την ανάλυση των φωτοκορυφών των θυγατρικών ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{232}Th .

Πίνακας 4.4 Τα αποτελέσματα των συγκεντρώσεων ενεργότητας από την ανάλυση των φωτοκορυφών του ^{235}U .

Πίνακας 4.5 Τα αποτελέσματα των συγκεντρώσεων ενεργότητας από την ανάλυση των φωτοκορυφών του ^{40}K .

Πίνακας 4.6 Συγκεντρώσεις ενεργότητας των ραδιονουκλιδίων στην Ελλάδα και τον κόσμο.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 1

ΕΙΣΑΓΩΓΗ

Η ραδιενέργεια είναι ένα φυσικό φαινόμενο που αναφέρεται στην εκπομπή ιοντίζουσας ακτινοβολίας από ασταθείς πυρήνες στοιχείων, τα ραδιονουκλίδια. Τα στοιχεία αυτά είτε φυσικά είτε τεχνητά αποτελούν αναπόσπαστο κομμάτι του περιβάλλοντος.

Η μελέτη, καθώς και η κατανόηση των φυσικών νόμων του φαινομένου της ραδιενέργειας αποτελεί μέρος της πυρηνικής φυσικής επιστημής κυρίως για λόγους ακτινοπροστασίας αλλά και για μελέτη γεωφυσικών ή ωκεανογραφικών φαινομένων όπως δραστηριότητα υποθαλάσσιων ηφαιστειών, ρυθμό ιζηματογένεσης βυθού κ.ά. Πηγές ραδιενέργειας στο περιβάλλον αποτελούν τα ραδιονουκλίδια των τριών φυσικών ραδιενεργών σειρών (^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th), καθώς και άλλα φυσικά ραδιονουκλίδια όπως το ^{40}K που απαντώνται στη φύση και ειδικά στο υδάτινο περιβάλλον. Η αλληλεπίδραση της κοσμικής ακτινοβολίας με τα ανώτερα στρώματα της ατμόσφαιρας είναι μία άλλη πηγή ραδιενέργειας στο περιβάλλον. Εκτός των παραπάνω, σε ορισμένες περιοχές εμφανίζονται μεγάλες συγκεντρώσεις ραδιονουκλιδίων. Αυτό μπορεί να οφείλεται στην ορυκτολογία της περιοχής και στην ύπαρξη μεγάλων συγκεντρώσεων φυσικών ραδιονουκλιδίων (Naturally Occurring Radioactive Materials, NORM). Οι συγκεντρώσεις των ραδιονουκλιδίων μπορούν να έχουν αλλοιωθεί επίσης λόγω βιομηχανικής εκμετάλλευσης της εκάστοτε περιοχής (Technologically Enhanced Natural Occurring Radioactive Materials TENORM).

Το κύριο εργαλείο για τη μελέτη της ραδιενέργειας είναι η φασματοσκοπία- γ καθώς επιτρέπει την ταυτοποίηση των ραδιενεργών στοιχείων αλλά και την ποσοτικοποίηση των συγκεντρώσεών τους. Για τη μέτρηση των επιπέδων ραδιενέργειας χρησιμοποιούνται εργαστηριακές αλλά και επιτόπιες (*in situ*) τεχνικές ή συνδυασμός αυτών των δύο μεθόδων.

Η παρούσα εργασία έχει ως σκοπό τον ποσοτικό προσδιορισμό συγκεντρώσης φυσικής και τεχνητής ραδιενέργειας σε θαλάσσιο ίζημα από τον κόλπο της Σούδας, ώστε να καθοριστεί η επιβάρυνσή του και η χρονική αναδόμηση του εναποτιθέμενου ραδιενεργού υλικού υπολογίζοντας και χρησιμοποιώντας το ρυθμό ιζηματογένεσης της περιοχής.

Στα πλαίσια της εργασίας πραγματοποιήθηκαν μια σειρά από διαδικασίες που αφορούν στη δειγματοληψία, από σημείο του λιμένα της Σούδας, τη δειγματοποίηση του πυρήνα θαλάσσιου ιζήματος, την επεξεργασία του, μετρώντας βασικές φυσικές παραμέτρους όπως η πυκνότητα και η κοκκομετρία καθώς και τη βαθμονόμηση των δύο ανιχνευτικών συστημάτων, του Ινστιτούτου Ωκεανογραφίας του ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε και του εργαστηρίου πυρηνικής φυσικής του ΕΜΠ στα οποία πραγματοποιήθηκαν μετρήσεις ραδιενέργειας. Μέσω της φασματοσκοπίας – γ των μετρήσεων αξιοποιήθηκαν δύο μοντέλα υπολογισμού του ρυθμού ιζηματογένεσης χρησιμοποιώντας τις συγκεντρώσεις ενεργότητας των ραδιονουκλιδίων ^{210}Pb και ^{137}Cs .

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 2

ΣΤΟΙΧΕΙΑ ΘΕΩΡΙΑΣ

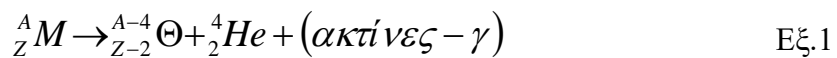
2.1 Ραδιενέργεια και Μηχανισμοί Διάσπασης

Η πυρηνική αποδιέγερση αναφέρεται στους ασταθείς πυρήνες που πρόκειται να μεταπέσουν προς κάποιον ελαφρύτερο με ταυτόχρονη εκπομπή της επιπλέον ενέργειας υπό μορφή ακτινοβολίας. Η εκπέμπουσα ακτινοβολία ονομάζεται ραδιενέργεια. Υπάρχουν 3 φυσικές διαδικασίες οι οποίες επιτρέπουν σε ένα πυρήνα να μεταπέσει σε χαμηλότερη ενεργειακή κατάσταση. Είτε μέσω αποδιέγερσης του πυρήνα σε χαμηλότερη ενεργειακή στάθμη, είτε μέσω μεταβολής του μαζικού αριθμού του, ή μέσω μεταβολής του ατομικού αριθμού του, το οποίο οδηγεί σε μεταστοιχείωση του πυρήνα. Όλοι οι μηχανισμοί πυρηνικής αποδιέγερσης υπακούν στους νόμους της διατήρησης της ορμής, στροφορμής και ολικής ενέργειας. Για τη διατήρηση της ενέργειας θα πρέπει να ληφθεί υπόψη η ενέργεια ηρεμίας κάθε πυρήνα, η οποία δίνεται μέσω της εξίσωσης $E=mc^2$, όπου m η μάζα του πυρηνικού συστήματος και c η ταχύτητα του φωτός στο κενό. Τα προϊόντα της κάθε αντίδρασης καθορίζονται μεταξύ άλλων από τις αρχές διατήρησης του φορτίου και των κβαντικών αριθμών. Και οι τρεις μηχανισμοί είναι στοχαστικής φύσης και προκαλούν εξώθερμες αντιδράσεις.

Το είδος της ακτινοβολίας καθορίζεται από την εκάστοτε φυσική διαδικασία αποδιέγερσης. Τα τρία είδη ακτινοβολίας που παρατηρούνται είναι [Ασημακόπουλος, 2005]:

Αποδιέγερση ή διάσπαση-α:

Συμβαίνει όταν ένας ασταθής πυρήνας εκπέμπει ένα σωματίδιο το οποίο αποτελείται από δύο πρωτόνια και δύο νετρόνια, δηλαδή έναν πυρήνα ${}^4\text{He}$. Η εκπομπή αυτή οδηγεί σε μείωση του μαζικού αριθμού A και ατομικού Z του μητρικού ραδιονουκλιδίου M κατά 4 και 2 μονάδες αντίστοιχα, με αποτέλεσμα τη δημιουργία του θυγατρικού νουκλιδίου Θ . Η διάσπαση-α μπορεί να συνοδεύεται και από εκπομπή ακτίνων- γ , δηλαδή ηλεκτρομαγνητικής ακτινοβολίας. Η εξίσωση που περιγράφει τη συγκεκριμένη διάσπαση είναι:



Η εκπομπή αυτού του είδους συμβαίνει στους βαρείς πυρήνες μεγάλου μεγέθους, όπου το σωματίδιο-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. Λόγω του μεγάλου μεγέθους τους και των έντονων κρούσεών τους με μόρια της ύλης, διανύουν μόνο μερικά εκατοστά στο αέρα και ακινητοποιούνται μπροστά σε πυκνά μοριακά πλέγματα.

Αποδιέγερση-β:

Είναι η αποδιέγερση ενός νουκλιδίου κατά την οποία ο μαζικός αριθμός A μένει σταθερός ενώ ο ατομικός Z μεταβάλλεται, δηλαδή ένα πρωτόνιο μετατρέπεται σε

νετρόνιο ή αντίστροφα, με την παράλληλη εκπομπή ακτινοβολίας. Η διάσπαση αυτή πραγματοποιείται με τρεις διαφορετικούς τρόπους:

α) αποδιέγερση-β⁻, κατά την οποία εκπέμπεται από τον πυρήνα ένα αρνητικά φορτισμένο ηλεκτρόνιο λόγω της ασθενούς πυρηνικής αλληλεπίδρασης πρωτονίου – νετρονίου: $n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}$. Η εξίσωση για τη διάσπαση αυτή είναι:



και πραγματοποιείται αρκεί η μάζα του θυγατρικού πυρήνα να είναι μικρότερη του μητρικού. Τα νουκλίδια με μεγάλο αριθμό νετρονίων (συνεπώς μεγάλο N/Z) έχουν την μεγαλύτερη πιθανότητα να υποστούν β⁻ διάσπαση.

β) αποδιέγερση-β⁺, κατά την οποία ένα πρωτόνιο στον αρχικό πυρήνα μετατρέπεται σε ένα νετρόνιο με εκπομπή ενός ποζιτρονίου (θετικά φορτισμένο ηλεκτρόνιο):

$p \rightarrow n + e^+ + \nu$. Η εξίσωση για τη διάσπαση αυτή είναι:



και πραγματοποιείται ικανοποιώντας την προηγούμενη συνθήκη. Δηλαδή η μάζα του θυγατρικού πυρήνα να είναι μικρότερη του μητρικού. Η διάσπαση αυτή συμβαίνει κυρίως σε νουκλίδια με μεγάλο αριθμό πρωτονίων (συνεπώς μικρό N/Z).

γ) αποδιέγερση με σύλληψη ηλεκτρονίου (electron capture), κατά την οποία ένα ηλεκτρόνιο παγιδεύεται από ένα διεγερμένο πυρήνα: $p + e \rightarrow n + \bar{\nu}$. Αυτό είναι δυνατό λόγω της κυματοσυνάρτησης Ψ του ηλεκτρονίου, η οποία δεν μας δίνει μια τροχιά αλλά ένα κύμα πιθανότητας, για το που μπορεί να βρεθεί το ηλεκτρόνιο. Η παγίδευση ηλεκτρονίου είναι φαινόμενο ανταγωνιστικό της β⁺ διάσπασης για ενέργειες μεγαλύτερες του 1.022 MeV. Για χαμηλότερες διαφορές ενέργειας η μεταστοιχείωση πραγματοποιείται αποκλειστικά από ηλεκτρονική σύλληψη.

Αποδιέγερση-γ:

Είναι η αποδιέγερση ενός διεγερμένου πυρήνα, που τα νουκλεονία του βρίσκονται για κάποιο λόγο σε υψηλότερες ενεργειακές στάθμες πάνω από τη βασική, με την παράλληλη εκπομπή ηλεκτρομαγνητικής ακτινοβολίας καθώς ο πυρήνας μεταπίπτει σε χαμηλότερη ή στη βασική του κατάσταση. Υπάρχουν τρεις τρόποι διάσπασης:

α) καθαρή εκπομπή ακτίνων-γ, όπου μονοενεργειακές ακτίνες-γ εκπέμπονται κατά τη μετάπτωση μεταξύ ενεργειακών σταθμών του πυρήνα.

β) εσωτερική μετατροπή (internal conversion), κατά την οποία ο διεγερμένος πυρήνας αποδιεγείρεται μεταφέροντας την ενέργεια διέγερσής του σε ένα τροχιακό ηλεκτρόνιο, το οποίο εκπέμπεται από το άτομο.

γ) δίδυμη γένεση (pair production), κατά την οποία δημιουργείται ένα ζεύγος ηλεκτρονίου και ποζιτρονίου, από την ενέργεια μετάπτωσης του διεγερμένου πυρήνα, το οποίο διαφεύγει από τον πυρήνα.

2.2 Νόμος Ραδιενεργών Διασπάσεων

Ο ρυθμός αποδιέγερσης ενός πλήθους πυρήνων ονομάζεται ενεργότητα, συμβολίζεται με το αγγλικό γράμμα A , και δηλώνει τον αριθμό των αρχικών πυρήνων που θα έχουν αποδιεγερθεί σε χρονικό διάστημα Δt . Η μονάδα μέτρησής της είναι το Becquerel, το οποίο συμβολίζεται ως Bq , και ορίζεται ως μία αποδιέγερση το δευτερόλεπτο. Η αποδιέγερση πλήθους πυρήνων N ενός στοιχείου περιγράφεται από το νόμο των ραδιενεργών διασπάσεων σύμφωνα με τον οποίο:

$$A = -\frac{dN}{dt} = \lambda N \quad \text{Εξ.4}$$

Όπου,

N : ο πληθυσμός των πυρήνων την χρονική στιγμή t .

λ : σταθερά αποδιέγερσης. Δηλώνει την πιθανότητα ένας πυρήνας να αποδιεγερθεί στη μονάδα του χρόνου. Καθορίζεται εν μέρει από τον εκάστοτε μηχανισμό που ακολουθεί ο κάθε πυρήνας. Εάν ο πυρήνας αποδιεγείρεται με πολλαπλούς τρόπους, η σταθερά λ είναι το άθροισμα των επιμέρους σταθερών κάθε δυνατής αποδιέγερσης.

Το αρνητικό πρόσημο δηλώνει τη μείωση του αρχικού πληθυσμού με την πάροδο του χρόνου.

Ο νόμος αυτός είναι στατιστικής φύσης και δεν καθορίζει το πότε θα αποδιεγερθεί ένας συγκεκριμένος πυρήνας. Περιγράφει τη μεταβολή στον αριθμό ενός πλήθους όμοιων πυρήνων στο χρόνο. Παρέχει επομένως τον αριθμό των αποδιεγέρσεων ή αλλιώς των γεγονότων που μπορούν να καταγραφούν σε δεδομένο χρονικό διάστημα. Ολοκληρώνοντας την παραπάνω σχέση προκύπτει η χρονικά εξαρτημένη συνάρτηση ενός πληθυσμού ραδιενεργών πυρήνων:

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad \text{Εξ.5}$$

Με βάση την παραπάνω σχέση προκύπτει ότι ένας πληθυσμός ραδιενεργών πυρήνων μειώνεται εκθετικά. Το γεγονός αυτό βέβαια αρκετές φορές αντισταθμίζεται από το μεγάλο χρόνο αποδιέγερσης που έχουν κάποια στοιχεία. Για το λόγο αυτό είναι αναγκαία η ύπαρξη ενός μέτρου μακροβιότητας, άρα και επικινδυνότητας, για το κάθε στοιχείο. Το μέτρο αυτό το ονομάζεται μέσος χρόνος ζωής του στοιχείου και ορίζεται ως η μέση τιμή του χρόνου διάσπασης των ασταθών πυρήνων:

$$\tau = \frac{\int_0^{\infty} t dN}{\int_0^{\infty} dN} = \frac{1}{\lambda} \quad \text{Εξ.6}$$

Ομοίως ορίζεται και ο *χρόνος ημιζωής* ο οποίος αναφέρεται στο χρονικό διάστημα που απαιτείται ώστε ο αρχικός πληθυσμός των πυρήνων να μειωθεί στο μισό:

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad \text{Εξ.7}$$

Οι χρόνοι αυτοί ποικίλουν, καλύπτοντας ένα μεγάλο εύρος από 10^{-6} s έως και 10^{10} χρόνια.

Το αποτέλεσμα της πυρηνικής αποδιέγερσης είναι ένα θυγατρικό πυρηνικό σύστημα με χαμηλότερη ενέργεια από το αρχικό. Το θυγατρικό σύστημα όμως δεν είναι απαραίτητα σταθερό. Σε πολλές περιπτώσεις είναι αναγκαίες διαδοχικές αποδιεγέρσεις ώστε να προκύψει ένας σταθερός πυρήνας. Αυτές ονομάζονται ραδιενεργές σειρές και απαντώνται στη φύση.

Έστω η σειρά: $A \rightarrow B \rightarrow C \rightarrow D$

Η μεταβολή του πληθυσμού του πυρήνα A δίνεται από το νόμο των ραδιενεργών διασπάσεων ως:

$$\frac{dN_A}{dt} = -\lambda_A N_A \quad \text{Εξ.8}$$

Ο πληθυσμός των B πυρήνων N_B αυξάνεται με την πάροδο του χρόνου λόγω της μετάπτωσης των A πυρήνων σε B, ενώ ταυτόχρονα μειώνεται λόγω της αποδιέγερσης των B πυρήνων σε C πυρήνες. Επομένως η διαφορική εξίσωση που περιγράφει τη μεταβολή του πληθυσμού N_B είναι:

$$\frac{dN_B}{dt} = \lambda_A N_A - \lambda_B N_B \quad \text{Εξ.9}$$

Ολοκληρώνοντας την παραπάνω σχέση και χρησιμοποιώντας τη λύση της εξίσωσης των ραδιενεργών διασπάσεων για τους πυρήνες A προκύπτει ότι ο πληθυσμός των B πυρήνων μεταβάλλεται σύμφωνα με την παρακάτω εξίσωση, όπου k σταθερά της ολοκλήρωσης:

$$N_B(t) = \frac{\lambda_A}{\lambda_B - \lambda_A} N_A(0) e^{-\lambda_A t} + k e^{-\lambda_B t} \quad \text{Εξ.10}$$

Εάν τη χρονική στιγμή $t=0$ είναι $N_B=N_B(0)$ τότε η παραπάνω σχέση παίρνει τη μορφή:

$$N_B(t) = \frac{\lambda_A}{\lambda_B - \lambda_A} N_A(0) [e^{-\lambda_A t} - e^{-\lambda_B t}] + N_B(0) e^{-\lambda_B t} \quad \text{Εξ.11}$$

Εάν τη χρονική στιγμή $t=0$ είναι $N_B=0$ τότε η σχέση γίνεται:

$$N_B(t) = \frac{\lambda_A}{\lambda_B - \lambda_A} N_A(0) [e^{-\lambda_A t} - e^{-\lambda_B t}] \quad \text{Εξ.12}$$

Η μεταβολή του πληθυσμού των πυρήνων του θυγατρικού, μη σταθερού στοιχείου εξαρτάται από τη σχέση μεταξύ των δύο πιθανοτήτων αποδιέγερσης λ_A και λ_B . Υπάρχουν δύο περιπτώσεις:

α) Ο μητρικός πυρήνας A να έχει μικρότερη πιθανότητα να διασπαστεί από τον θυγατρικό πυρήνα B, δηλαδή $\lambda_A < \lambda_B$. Τότε με το πέρασμα του χρόνου προκύπτει:

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \frac{\lambda_B N_B(t)}{\lambda_A N_A(t)} = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} (1 - e^{-(\lambda_B - \lambda_A)t}) \quad \text{Εξ.13}$$

Δηλαδή, ο λόγος των πληθυσμών των πυρήνων των δύο στοιχείων τείνει να σταθεροποιηθεί στο κλάσμα $\frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A}$. Η κατάσταση αυτή ονομάζεται μεταβατική ισορροπία. Όταν έχει επέλθει μεταβατική ισορροπία, ο λόγος των δύο ενεργοτήτων και του πληθυσμού των πυρήνων των δύο στοιχείων παραμένουν σταθεροί.

Στην περίπτωση όπου $\lambda_A \ll \lambda_B$, το παραπάνω όριο τείνει στο 1 και επομένως προκύπτει ότι:

$$\lambda_A N_A = \lambda_B N_B \quad \text{Εξ.14}$$

Η παραπάνω κατάσταση ονομάζεται μόνιμη ή διαρκής ραδιενεργός ισορροπία. Κατά τη μόνιμη ραδιενεργό ισορροπία ο θυγατρικός και ο μητρικός πυρήνας έχουν την ίδια ενεργότητα. Για τον καθορισμό της χρονικής στιγμής t' κατά την οποία επιτυγχάνεται η ραδιενεργός ισορροπία αρκεί να υπολογιστεί το τοπικό ακρότατο της $N_B(t)$, καθώς στη ραδιενεργό ισορροπία μεγιστοποιείται η ενεργότητα του θυγατρικού πυρήνα. Για την εύρεση του ακρότατου απαιτείται $\frac{dN_B}{dt} = 0$. Μέσω αυτής της απαίτησης, η χρονική στιγμή t' είναι:

$$t' = \frac{1}{\lambda_B - \lambda_A} \ln \frac{\lambda_B}{\lambda_A} = \frac{1}{\tau_A - \tau_B} \ln \frac{\tau_A}{\tau_B} \quad \text{Εξ.15}$$

Είναι εμφανές ότι η σταθερά αποδιέγερσης των στοιχείων που συμμετέχουν στις διαδοχικές αποδιεγέρσεις καθορίζει το πότε αυτά θα έρθουν σε ραδιενεργό ισορροπία μεταξύ τους.

β) Εάν ο θυγατρικός πυρήνας B έχει μικρότερη πιθανότητα διάσπασης σε σχέση με τον μητρικό πυρήνα A, δηλαδή $\lambda_B < \lambda_A$ ο πληθυσμός των B πυρήνων θα αυξάνεται. Η αύξηση αυτή θα συνεχιστεί έως ότου σχεδόν εξαντληθεί ο πληθυσμός των μητρικών πυρήνων. Ύστερα από αυτό το σημείο, ο πληθυσμός των θυγατρικών πυρήνων θα αρχίσει να φθίνει. Σε αυτή την περίπτωση τα δύο ραδιενεργά στοιχεία δε θα έρθουν πότε σε ραδιενεργό ισορροπία. Και στις δυο περιπτώσεις, ο πληθυσμός των πυρήνων

του σταθερού στοιχείου, το οποίο θα βρίσκεται στο τέλος της σειράς θα αυξάνει με τα χρόνια [Ασημακόπουλος, 2005].

2.3 Φυσική και Τεχνητή Ραδιενέργεια

Η ραδιενέργεια απαντάται στο περιβάλλον από φυσικές ή τεχνητές πηγές προέλευσης. Τα νουκλίδια με $Z > 82$ (στοιχεία μετά τον ^{208}Pb) που προϋπάρχουν στη Γη ή έχουν κατασκευαστεί τεχνητά είναι μετασταθή και αποδιεγείρονται με σταδιακές διασπάσεις μέσω εκπομπής ακτινοβολίας- α ή β προς σταθερούς πυρήνες με $Z \leq 82$. Οι ασταθείς πυρήνες που υπάρχουν σήμερα στη φύση προέρχονται είτε από την αρχική πυρηνοσύνθεση, είτε από κοσμικές εκρηκτικές διαδικασίες, είτε από πυρηνικές αντιδράσεις που συμβαίνουν στη Γη από φυσικά και ανθρωπογενή αίτια.

Το μεγαλύτερο ποσοστό φυσικών ραδιονουκλιδίων που βρίσκονται διάχυτα στο στερεό φλοιό της Γης, με $Z > 82$, ομαδοποιούνται σε τέσσερις σειρές φυσικής ραδιενέργειας, με τα παρακάτω χαρακτηριστικά:

i) Κάθε σειρά χαρακτηρίζεται αντίστοιχα από τη συναρτησιακή μορφή του μαζικού αριθμού A των πυρήνων που περιέχει σύμφωνα με τις ακολουθίες $4n$, $4n+1$, $4n+2$, $4n+3$ (n ακέραιος)

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

iii) Κάθε σειρά αρχίζει με ένα μακρόβιο ισότοπο με μέσο χρόνο ζωής συγκρίσιμο με την ηλικία της δημιουργίας του σύμπαντος ($\sim 14 \times 10^9$ y) [Verde et al., 2013].

iv) Κάθε σειρά καταλήγει σε σταθερό πυρήνα.

Έτσι λοιπόν οι τέσσερις φυσικές ραδιενεργές σειρές είναι:

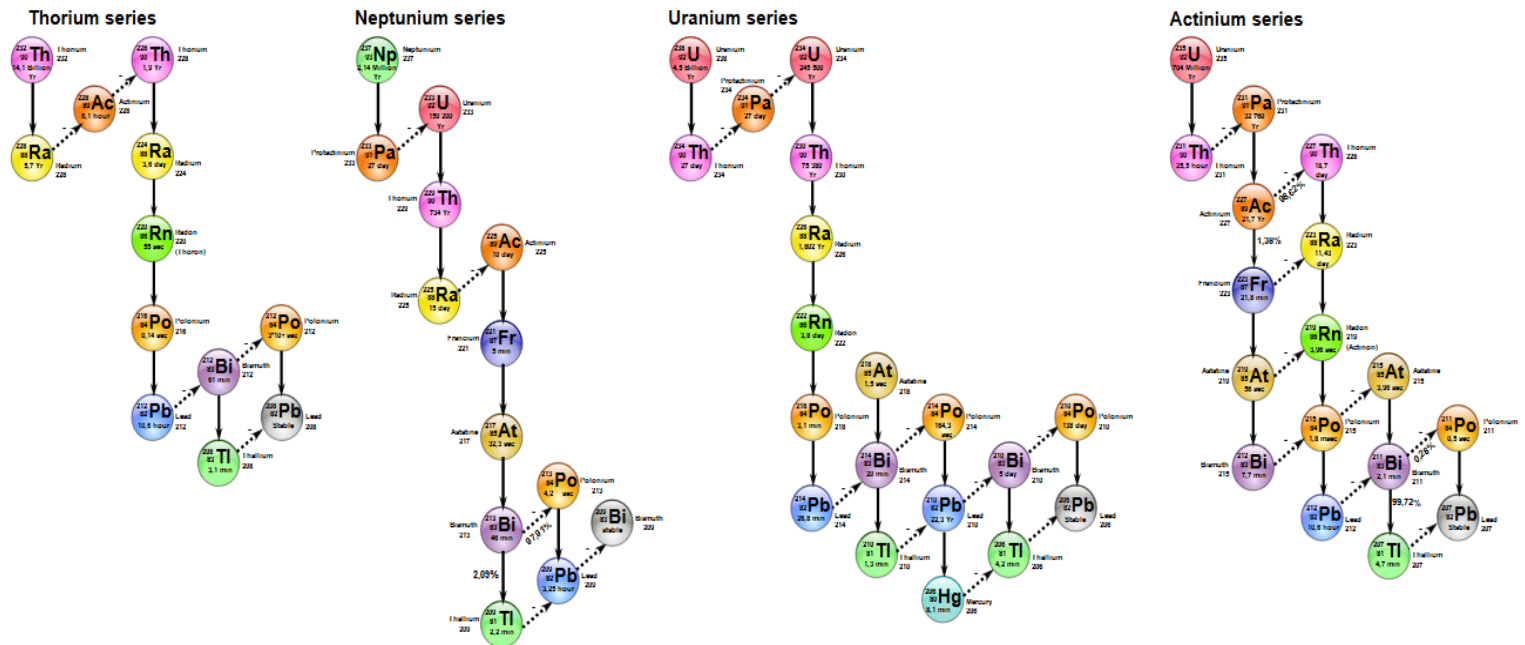
Η σειρά του Θωρίου ($4n$) $^{232}\text{Th} \rightarrow \dots \rightarrow ^{208}\text{Pb}$ με $t_{1/2} = 1,39 \times 10^{10}$ y

Η σειρά του Ποσειδωνίου ($4n + 1$) $^{237}\text{Np} \rightarrow \dots \rightarrow ^{205}\text{Th}$ με $t_{1/2} = 2,25 \times 10^6$ y

Η σειρά του Ουρανίου ($4n + 2$) $^{238}\text{U} \rightarrow \dots \rightarrow ^{206}\text{Pb}$ με $t_{1/2} = 4,51 \times 10^9$ y

Η σειρά του Ακτινίου ($4n + 3$) $^{235}\text{U} \rightarrow \dots \rightarrow ^{207}\text{Pb}$ με $t_{1/2} = 7,07 \times 10^8$ y

Στην Εικόνα 2.1 παρουσιάζονται οι 4 φυσικές ραδιενεργές σειρές.



Εικόνα 2.1: Οι φυσικές ραδιενεργές σειρές [Juhele,2011].

Η σειρά του Ποσειδωνίου λόγω του μικρού χρόνου ημιζωής του αρχικού του στοιχείου σε σχέση με την ηλικία της Γης έχει εκλείψει. Ανακαλύφθηκε λόγω εμφάνισης τεχνητών ισοτόπων που ανήκουν σε αυτή τη σειρά μέσα σε αντιδραστήρες.

Εκτός των παραπάνω, πολλά στοιχεία με ατομικό αριθμό μικρότερο του 82 διαθέτουν ραδιενεργά ισότοπα. Τα ισότοπα αυτά απαντώνται ως προσμίξεις με τα σταθερά τους ισότοπα. Πιο σημαντικό είναι το κάλιο ^{40}K . Παρόλο που βρίσκεται στη φύση σε ποσοστό 0.012% προς τα σταθερά του ισότοπα ^{39}K (93%) και ^{41}K (6.1%), λόγω του μεγάλου χρόνου ημιζωής ($t_{1/2}=1.277 \times 10^9$ y) και της αφθονίας του, στα στερεά πετρώματα και σε διαλυτή μορφή στο νερό, συνεισφέρει με την ακτινοβολία του στη συνολική θερμότητα του πλανήτη.

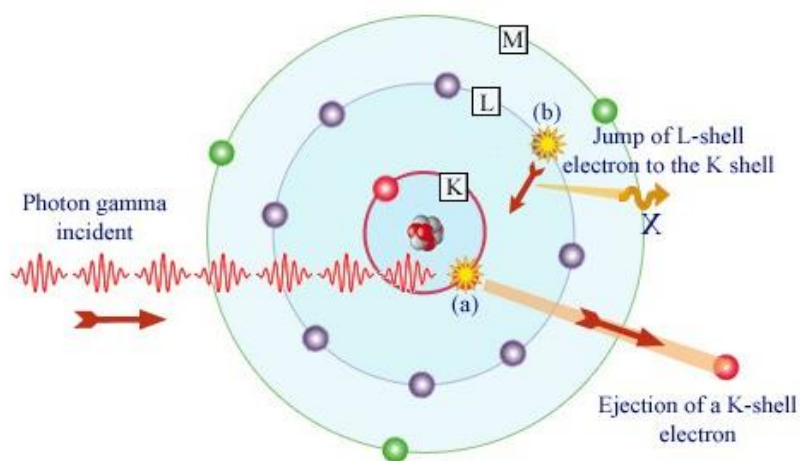
Πέραν της φυσικής ακτινοβολίας, που είναι και το μεγαλύτερο ποσοστό (~90%), στο περιβάλλον συναντάμε και ραδιενεργά ισότοπα που απελευθερώνονται από ανθρώπινες δραστηριότητες, που χρονολογικά παράγονται τα τελευταία 70 χρόνια. Οι κυριότερες πηγές τεχνητής ραδιενέργειας, με κύριο αποδέκτη τα θαλάσσια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

2.4 Αλληλεπίδραση φωτονίων με την ύλη

Κατά την αποδιέγερση των ραδιενεργών πυρήνων εκπέμπονται φορτισμένα και ουδέτερα σωματίδια 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.

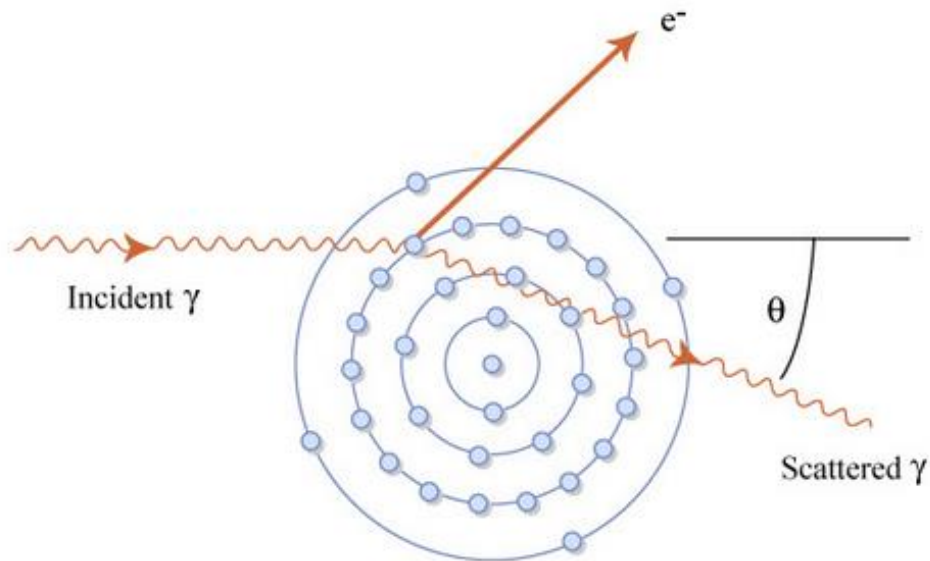
Στην περίπτωση της ηλεκτρομαγνητικής ακτινοβολίας, οι ακτίνες- γ μπορούν είτε να σκεδαστούν ελαστικά ή ανελαστικά, είτε να απορροφηθούν πλήρως από την ύλη μέσω της αλληλεπίδρασης τους με τα ατομικά ηλεκτρόνια, τα νουκλεόνια του πυρήνα ή το ηλεκτρικό τους πεδίο. Οι κυριότεροι μηχανισμοί αλληλεπίδρασης 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 με παράλληλη εκπομπή ενός από τα δεσμευμένα ηλεκτρόνια στιβάδας του ατόμου (φωτοηλεκτρόνιο). Παράλληλα η αλληλεπίδραση προκαλεί ιονισμό του ατόμου με κενό σε μία από τις ενεργειακές του στιβάδες, που καλύπτεται με σύλληψη ενός ελεύθερου ηλεκτρονίου από τις άλλες στιβάδες του ατόμου με παράλληλη εκπομπή χαρακτηριστικών ακτίνων-X. Η σχηματική αναπαράσταση του φωτοηλεκτρικού φαινομένου παρουσιάζεται στην Εικόνα 2.2.



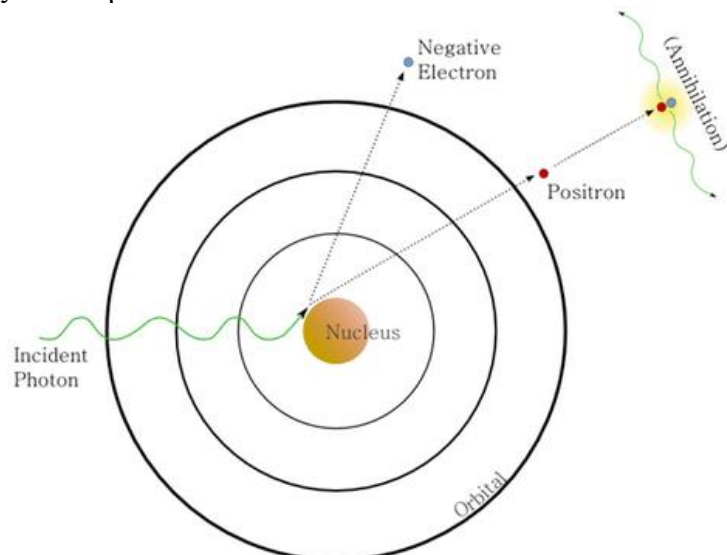
Εικόνα 2.2: Αναπαράσταση του φωτοηλεκτρικού φαινομένου [IN2P3].

- 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. Όλες οι γωνίες σκέδασης είναι πιθανές (όχι όμως και ισοπίθανες), έτσι η ενέργεια του ηλεκτρονίου ανάκρουσης κυμαίνεται από μηδέν έως μια μέγιστη τιμή για $\theta=180^\circ$. Η σχηματική αναπαράσταση της σκέδασης Compton παρουσιάζεται στην Εικόνα 2.3.



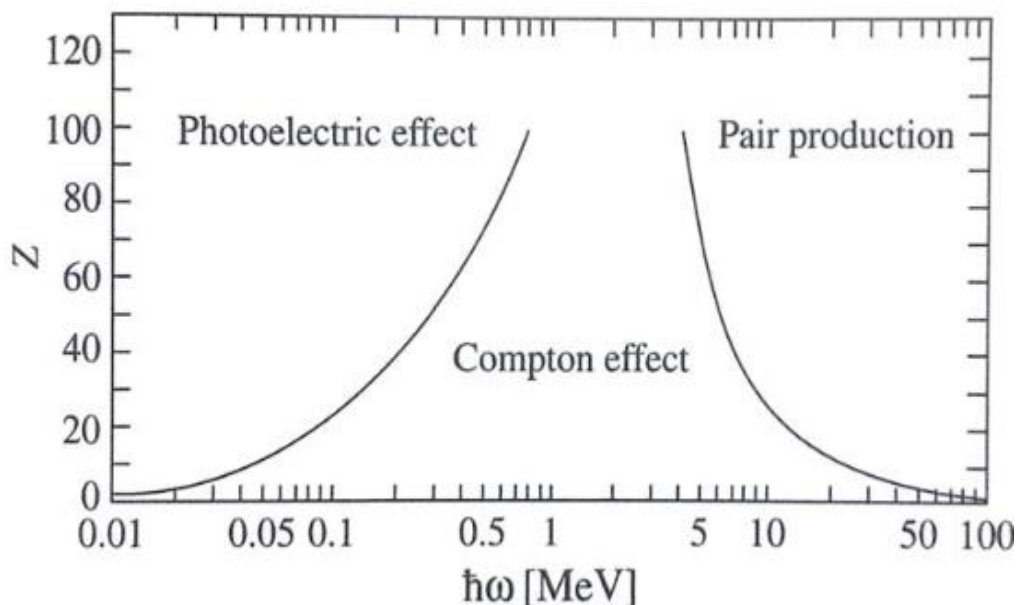
Εικόνα 2.3: Αναπαράσταση της σκέδασης Compton [FESAus, 2004].

- 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 πραγματοποιείται όταν η ενέργεια της ακτίνας-γ υπερβαίνει δύο φορές την ενέργεια της μάζας ηρεμίας του ηλεκτρονίου (1.022 MeV). Στην αλληλεπίδραση, το φωτόνιο εξαφανίζεται και αντικαθίσταται από ένα ζευγάρι ηλεκτρονίου και ποζιτρονίου. Όλη η πλεονάζουσα ενέργεια του φωτονίου μοιράζεται στην κινητική ενέργεια του ζεύγους των προϊόντων. Επειδή το ποζιτρόνιο στη συνέχεια θα εξαϋλωθεί, παράγονται δύο φωτόνια εξαϋλωσης ως δευτερογενή προϊόντα της αλληλεπίδρασης. Η σχηματική αναπαράσταση της δίδυμης γένεσης παρουσιάζεται στην Εικόνα 2.4.



Εικόνα 2.4: Αναπαράσταση της δίδυμης γένεσης [University of Virginia, 2005].

Στην Εικόνα 2.5 παρουσιάζεται το διάγραμμα του επικρατέστερου μηχανισμού αλληλεπίδρασης ανάλογα με τον ατομικό αριθμό του στόχου και την ενέργεια του προσπίπτοντος σε αυτόν φωτονίου.



Εικόνα 2.5: Διάγραμμα επικρατέστερου μηχανισμού αλληλεπίδρασης αναλόγως με τον ατομικό αριθμό του στόχου και την ενέργεια του προσπίπτοντος σε αυτόν φωτονίου [nuclear-power.net, 2015].

2.5 Ανίχνευση ραδιενέργειας

Από τις πιθανές αλληλεπιδράσεις της ιοντίζουσας ακτινοβολίας με την ύλη έχουν αναπτυχθεί κατάλληλα ανιχνευτικά συστήματα με τα οποία γίνεται αντιληπτή η παρουσία καθώς και η ποιοτική και ποσοτική μέτρηση της ακτινοβολίας, επομένως και η ανίχνευση των ραδιονουκλιδίων. Τα συστήματα χρησιμοποιούνται για τη μετατροπή του γεγονότος 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. Αυτά τα συστήματα ονομάζονται *ανιχνευτές ακτινοβολίας*. Λόγω των διαφόρων ειδών ιοντίζουσας ακτινοβολίας, τα οποία παρουσιάζουν διακυμάνσεις στο ρυθμό εκπομπής τους (από λίγες εκπομπές την ώρα μέχρι και 10^{15} εκπομπές/s) και στην ενέργειά τους (από μερικά eV έως και GeV), έχουν αναπτυχθεί ποικίλα ανιχνευτικά συστήματα.

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 οι υπόλοιποι, που περιλαμβάνουν τις *φωτογραφικές πλάκες*, τους *θερμιδομετρικούς ανιχνευτές* και τους *θαλάμους νεφώσεως*, που δεν απαιτούν την άμεση μέτρηση ηλεκτρικού παλμού ή ρεύματος. Για την ανίχνευση των ραδιονουκλιδίων χρησιμοποιούνται κυρίως ηλεκτρονικοί ανιχνευτές φορτισμένων σωματιδίων και ακτινοβολίας-γ. Στην παρούσα εργασία χρησιμοποιήθηκαν ανιχνευτές στερεάς κατάστασης:

Ανιχνευτές στερεάς κατάστασης: πρόκειται για ημιαγωγούς που βασίζουν τη λειτουργία τους στις ιδιότητες των ενεργειακών ζωνών, που φέρουν οι κρύσταλλοι όταν αλληλεπιδρούν με την ακτινοβολία. Κατασκευάζονται συνήθως από Ge ή Si και έχουν δομή με ζώνες όπως και οι σπινθηριστές, με τη διαφορά ότι στους ημιαγωγούς η απόσταση των ζωνών είναι πολύ μικρότερη από εκείνη των σπινθηριστών. 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. Η οπή και το ηλεκτρόνιο μπορούν να μετακινηθούν μέσα στον κρύσταλλο κάτω από την επίδραση ενός ηλεκτρικού πεδίου και να δημιουργήσουν ηλεκτρικό σήμα.

Εντελώς καθαροί ημιαγωγοί κρύσταλλοι δεν μπορούν να παρασκευασθούν στην πράξη διότι πάντα υπάρχουν διάφορες προσμίξεις ή προστίθενται σκόπιμα επιδρώντας σημαντικά στις ιδιότητές τους. Οι προσμίξεις αυτές είναι στοιχεία 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 και οι ημιαγωγοί είναι τύπου-n, ενώ στην περίπτωση λιγότερων ηλεκτρονίων ονομάζεται στάθμη δέκτη και οι ημιαγωγοί είναι τύπου-p.

Έχει βρεθεί ότι για ανιχνευτικό σύστημα ακτινοβολίας τα πιο χρήσιμα αποτελέσματα δίδονται για επαφή ημιαγωγών των δύο τύπων με εφαρμογή σε αυτούς αντίστροφης τάσης (εφαρμογή θετικής τάσης στην n-πλευρά και αρνητικής στην p-πλευρά). Όταν οι δύο τύποι ημιαγωγών έρχονται σε επαφή, στο σημείο επαφής πραγματοποιείται μετακίνηση φορέων (ηλεκτρονίων και οπών) στις περιοχές p- και n-ζώνης αντίστοιχα. Με αυτό τον τρόπο, στο σημείο επαφής δημιουργείται μια ουδέτερη περιοχή. Η περιοχή αυτή ονομάζεται *περιοχή κενώσεως* ή *ενδογενής περιοχή* και διευρύνεται με την εφαρμογή αντίστροφης τάσης. Έτσι, όταν ακτινοβολία προσπέσει στην περιοχή αυτή, δημιουργούνται φορείς φορτίου που έλκονται προς την p- ή την n-πλευρά.

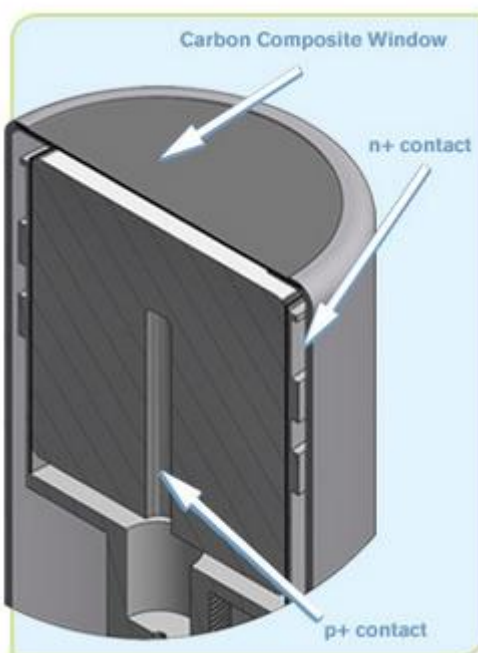
Τα συνηθέστερα υλικά ανίχνευσης είναι διαθέσιμα σε μορφή μεγάλων κρυστάλλων λόγω της διαδεδομένης εφαρμογής τους στην κατασκευή ηλεκτρονικών εξαρτημάτων. Το κύριο μειονέκτημά τους είναι το μικρό σχετικά εύρος της απαγορευμένης ζώνης. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα θερμικές διαταραχές του πλέγματος να προωθούν ηλεκτρόνια στη ζώνη αγωγιμότητας με αποτέλεσμα το ρεύμα που δημιουργείται με την ανάπτυξη ηλεκτρικού πεδίου να υπερβαίνει ανεκτά όρια. Το πρόβλημα αυτό λύνεται είτε με ψύξη του ανιχνευτή (υγρό άζωτο, -196°C) ή με την εισαγωγή προσμίξεων στον κρύσταλλο του ημιαγωγού. Τέτοιοι ανιχνευτές χρησιμοποιούνται τόσο για την ανίχνευση ηλεκτρομαγνητικής ακτινοβολίας όσο και φορτισμένων σωματιδίων. Υπερτερούν σε απόδοση και ποιότητα αποτελεσμάτων σε σχέση με κάθε άλλο τύπο ανιχνευτή ιοντίζουσας ακτινοβολίας.

Όλες οι μετρήσεις φασματοσκοπίας- γ των δειγμάτων πραγματοποιήθηκαν με ανιχνευτικές διατάξεις HPGe στο εργαστήριο Πυρηνικής Φυσικής του ΕΜΠ καθώς και στο εργαστήριο του Ινστιτούτου Ωκεανογραφίας του ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε.

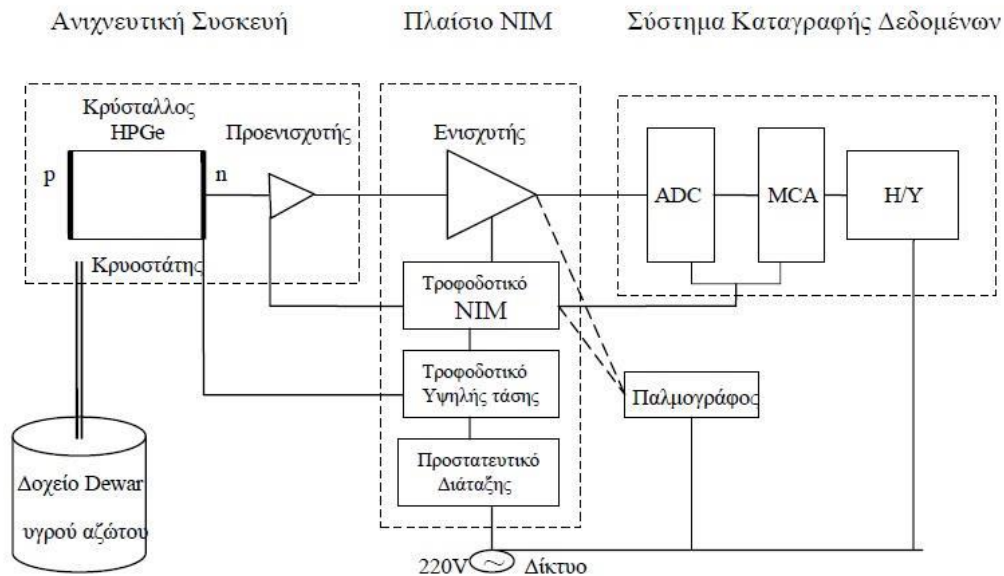
Η αρχή λειτουργίας τους βασίζεται στον ημιαγωγό κρύσταλλο Ge που διαθέτουν, που λόγω της μικρής ενεργειακής απόστασης μεταξύ των ζωνών σθένους-αγωγιμότητας ($\sim 0.66\text{ keV}$) αλληλεπιδρά έντονα με την προσπίπτουσα ακτινοβολία.

Όμως ακόμα και στους υπερκαθαρούς κρυστάλλους Ge υπάρχουν επιπλέον ενδιάμεσες ζώνες λόγω κρυσταλλικών ατελειών και τυχαίων προσμίξεων. Για τη βελτίωση των ιδιοτήτων τους προστίθενται προσμίξεις διαφορετικών στοιχείων.

Στις διατάξεις φασματοσκοπίας-γ που χρησιμοποιήθηκαν, ο ανιχνευτής ήταν κρύσταλλος Ge υψηλής καθαρότητας p-τύπου ($\sim 10^3$ άτομα τυχαίων πλεγματικών προσμίξεων/cm³). Γεωμετρικά πρόκειται για ομοαξονικό κύλινδρο κλειστού άκρου με εσωτερική αξονική οπή, για την παροχή υψηλής τάσης. Μια επαφή n-τύπου στην εξωτερική επιφάνεια του κρυστάλλου, που πρόκειται για διασκορπισμένο στρώμα Λιθίου Li, στο Ge και μια p-τύπου στην επιφάνεια της εσωτερικής οπής από εμφυτευμένο Βόριο B, αποτελούν τα ηλεκτρόδια της διάταξης. Βασικό χαρακτηριστικό της ποιότητας ενός τέτοιου είδους κρυστάλλου είναι το πάχος της n-τύπου επαφής, καθώς όσο μικρότερο είναι τόσο αυξάνεται η ευαισθησία σε χαμηλής ενέργειας φωτόνια, λόγω της χαμηλής εξασθένησης της ακτινοβολίας-γ σε αυτό το στρώμα. Για τον ίδιο λόγο σημαντικό ρόλο παίζει και το «παράθυρο» (end cap) του ανιχνευτή, δηλαδή το μπροστινό μέρος του περιβλήματος του κρυστάλλου, τόσο όσον αφορά το πάχος όσο και το υλικό κατασκευής του. Επίσης και οι διαστάσεις του κρυστάλλου είναι σημαντικές καθώς ο όγκος του είναι ανάλογος της συνολικής ανιχνευτικής απόδοσης. Η τομή του ανιχνευτή HPGe παρουσιάζεται στην Εικόνα 2.6.



Εικόνα 2.6: Σχηματική αναπαράσταση τομής του ανιχνευτή HPGe [canberra.com].



Εικόνα 2.7: Σχηματικό διάγραμμα τυπικής ανιχνευτικής διάταξης HPGe [Ελευθερίου Γ, 2014].

Μια τυπική ανιχνευτική διάταξη φασματοσκοπίας- γ Γερμανίου παρουσιάζεται στην Εικόνα 2.7 και περιλαμβάνει τον κρύσταλλο Ge, ηλεκτρικά και ηλεκτρονικά κυκλώματα και ψυκτικό μέσο (υγρό άζωτο). Αποτελείται από τρία μέρη: α) τον ανιχνευτή HPGe, β) ένα κιβώτιο ηλεκτρικών μονάδων πυρηνικής φασματοσκοπίας (nuclear instrument model) NIM υπό μορφή ειδικών πλαισίων και γ) το ηλεκτρονικό σύστημα καταγραφής των δεδομένων.

Το ανιχνευτικό σύστημα τροφοδοτείται με συνεχή υψηλή και χαμηλή τάση για τη 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 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 ενώ τα αναλογικά σήματα του προενισχυτή και του ενισχυτή μπορούν να ελεγχθούν από παλμογράφο. Όπως όλους τους ανιχνευτές Ge, έτσι και οι HPGe πρέπει να ψύχονται όταν βρίσκονται υπό τάση, για να αποφευχθεί η θερμικά παραγόμενη διαρροή ρεύματος στον κρύσταλλο λόγω θερμικής κίνησης των ατόμων του πλέγματος. Η μακροπρόθεσμη σταθερότητά τους συντηρείται καλύτερα διατηρώντας τον κρύσταλλο σε χαμηλές θερμοκρασίες. Η ψύξη γίνεται με κατάλληλο εξωτερικό δοχείο (Dewar) που φέρει ποσότητα υγρού αζώτου (LN_2) και επανατροφοδοτείται ανά τακτά χρονικά διαστήματα.

Τα περιβαλλοντικά δείγματα είναι χαμηλής έντασης. Για αυτό το λόγο οι ρυθμίσεις των ηλεκτρονικών συστημάτων για τέτοιου είδους μετρήσεις πρέπει να γίνονται με τρόπο ώστε να λαμβάνονται 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 μεγάλης 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 που βγαίνουν από τον ενισχυτή και την επιλογή του εύρους του ύψους των ηλεκτρικών παλμών που τελικά θα καταγραφούν στο φάσμα. Οι παράμετροι αυτές καθορίζονται από το χρόνο διαμόρφωσης (shaping time), την εξάλειψη ασυμμετρίας (pole zero cancellation) και την ενίσχυση (coarse/fine gain) του παλμού εξόδου του ενισχυτή. Η καταγραφή φάσματος 24 h σε διακριτοποίηση 4096 ενεργειακών καναλιών που καλύπτουν ενεργειακό εύρος από 0 έως 2000 keV είναι η συνήθης μέθοδος μέτρησης.

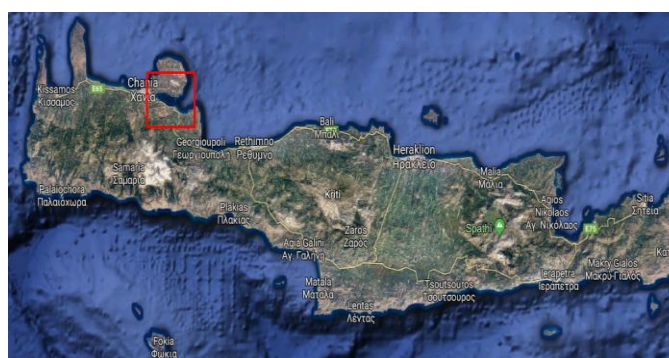
Ένα απαραίτητο στοιχείο για μετρήσεις ραδιενέργειας περιβαλλοντικών δειγμάτων είναι η θωράκιση της ανιχνευτικής διάταξης από την ακτινοβολία υποβάθρου με σκοπό τη βελτίωση των επιπέδων ανιχνευσιμότητας και της ακρίβειας των μετρήσεων, καθώς και η παρακολούθηση της ποιοτικής, ποσοτικής και χρονικής διακύμανσης. Βασικές πηγές αυτής της ακτινοβολίας είναι: α) η ραδιενέργεια του περιβάλλοντος χώρου που προέρχεται από τα πετρώματα του εδάφους και τα υλικά δόμησης, β) η ύπαρξη ραδιενεργών ιχνοστοιχείων στα υλικά και τις επιφάνειες του κρυστάλλου και της θωράκισης, γ) το αέριο ^{222}Rn που κυκλοφορεί στην ατμόσφαιρα και τα θυγατρικά του ραδιονουκλίδια και δ) δευτερογενής ακτινοβολία λόγω των αντιδράσεων της κοσμικής ακτινοβολίας με τα υλικά της ανιχνευτικής διάταξης.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 3

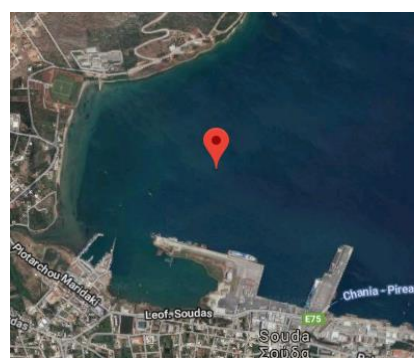
ΠΕΙΡΑΜΑΤΙΚΕΣ ΜΕΘΟΔΟΙ ΚΑΙ ΥΛΙΚΑ

3.1 Περιοχή Μελέτης

Η προτεινόμενη μεθοδολογία και όλες οι πειραματικές μετρήσεις πραγματοποιήθηκαν για σημείο ενδιαφέροντος του λιμένα της Σούδας στα Χανιά Κρήτης ($35^{\circ} 29.757'N - 24^{\circ} 4.213'E$) με βάθος 9.6 m όπως παρουσιάζεται στις Εικόνες 3.1 και 3.2 αντίστοιχα. Πρόκειται για βιομηχανικό πάρκο όπως επίσης και εμπορικό λιμάνι. Αποτελεί ναύσταθμο για το ελληνικό Πολεμικό Ναυτικό και είναι βάση του ΝΑΤΟ.



Εικόνα 3.1: Το νησί της Κρήτης.



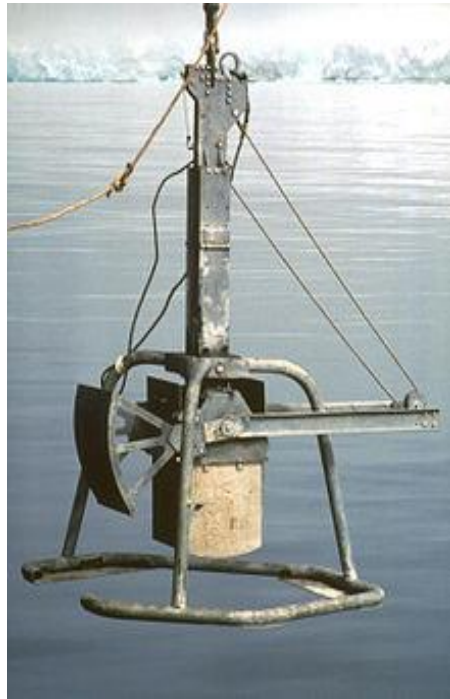
Εικόνα 3.2: Σημείο δειγματοληψίας.

3.2 Δειγματοληψία

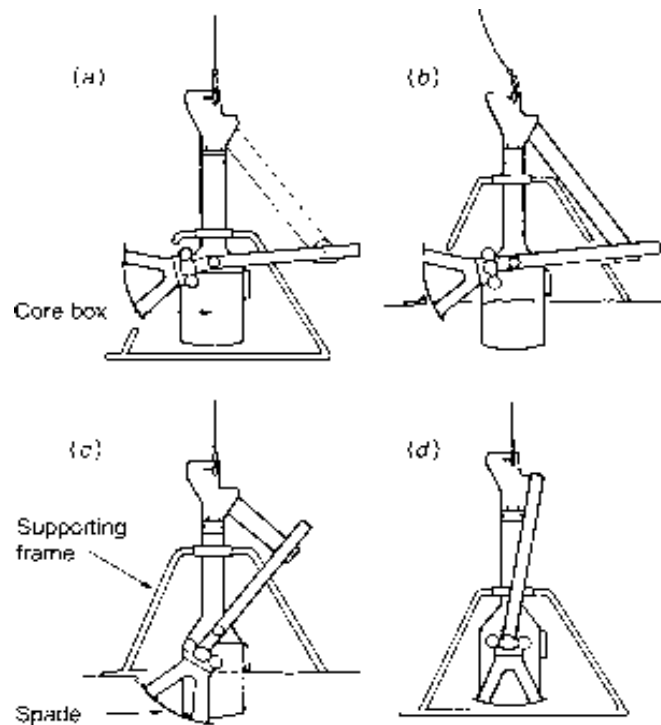
Η δειγματοληψία που πραγματοποιήθηκε αφορά στη συλλογή κατακόρυφου πυρήνα ιζήματος πυθμένα στη θαλάσσια περιοχή που προαναφέρθηκε. Στη δειγματοληψία χρησιμοποιήθηκε ο εξοπλισμός του ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε [HCMR, 2014]. Ακολουθήθηκε η καθιερωμένη διαδικασία ώστε να διασφαλιστεί η ποιότητα των δειγμάτων που συλλέγονται [ΙΑΕΑ, 2003]. Η επιλογή του σημείου της δειγματοληψίας έγινε λαμβάνοντας υπόψη τα γεωλογικά-ιζηματολογικά χαρακτηριστικά και τη μορφολογία του πυθμένα, ώστε αυτά να είναι αντιπροσωπευτικά. Για την περίπτωση προσδιορισμού συγκέντρωσης των ραδιονουκλιδίων στο ιζήμα, βασική προϋπόθεση ποιοτικών μετρήσεων είναι τα δείγματα να είναι όσο το δυνατόν αδιαταράκτα και ομοιογενή. Ο εξοπλισμός που χρησιμοποιείται για αυτό το σκοπό είναι όργανα πυρηνοληψίας (cogers).

Οι πυρηνολήπτες διεισδύουν σε βάθος λαμβάνοντας πυρήνες ιζήματος, επιτρέποντας έτσι τη μελέτη της κατακόρυφης κατανομής τους. Τα δείγματα των πυρήνων χρησιμοποιούνται για τον καθορισμό του ρυθμού ιζηματογένεσης και τις συνολικές αποθέσεις ρύπων. Κατά τη λήψη του πυρήνα είναι σημαντικό να συλλεγούν αδιατάρακτα 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 δυνατόν μεγαλύτερη, προκειμένου να παρέχει επαρκές υλικό για ανάλυση, να ελαχιστοποιούνται οι επιπτώσεις της επάλειψης κατά μήκος της ακμής του πυρήνα και να ελαχιστοποιείται η πιθανότητα

συμπιέσής του. Ο πυρηνολήπτης που χρησιμοποιήθηκε στην παρούσα μελέτη ήταν τύπου κιβωτολήπτη (box corer) με επιφάνεια δειγματοληψίας 0.25 και 0.1 m², και παρουσιάζεται στην Εικόνα 3.3, ενώ ο τρόπος λειτουργίας του στην Εικόνα 3.4.



Εικόνα 3.3: Φωτογραφία του κιβωτολήπτη.



Εικόνα 3.4: Τρόπος λειτουργίας του κιβωτολήπτη [Gage and Tyler, 1991].

3.3 Χαρακτηρισμός ιζήματος

Μετά τη δειγματοληψία του ιζήματος ακολουθεί η κατάλληλη επεξεργασία του και οι εργαστηριακές μετρήσεις. Η προετοιμασία των δειγμάτων, η δειγματοποίηση και οι μετρήσεις που αφορούν στο χαρακτηρισμό του ιζήματος πραγματοποιήθηκαν στο εργαστήριο Ιζηματολογίας του ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε και περιλαμβάνουν τον προσδιορισμό φυσικών παραμέτρων και της κοκκομετρίας.

Η ποσότητα που συλλέχθηκε μεταφέρεται με κατάλληλα δοχεία στο εργαστήριο ώστε να παραμείνουν αναλλοίωτα τα κύρια χαρακτηριστικά του ιζήματος (πορώδες, πυκνότητα κλπ) και κατόπιν για κάθε μία από τις αναλύσεις επιλέγεται ορισμένη ποσότητα. Πραγματοποιείται διάνοιξη με κοπτικά εργαλεία για το σωλήνα και με σκληρό νήμα για το ίζημα ώστε να μην υπάρχουν απώλειες σε νερό και ανάμειξη των επιμέρους στρωμάτων. Απο την κατακόρυφη διατομή που προκύπτει γίνεται ένας οπτικός γεωλογικός χαρακτηρισμός (διαστρωματώσεις, χρώμα, υφή κλπ). Για κάθε διαδικασία που πραγματοποιείται και ακολουθεί, και περιλαμβάνει συλλογή, μεταφορά, αποθήκευση και επεξεργασία ιζήματος, τα όργανα που χρησιμοποιούνται (πετρί, δοχεία, γουδί, λαβίδες κ.ά) ξεπλένονται με απιονισμένο νερό και στεγνώνουν έτσι ώστε κατά την επαναχρησιμοποίησή τους στο επόμενο δείγμα να μην αλλοιώνουν τα χαρακτηριστικά του.

3.3.1 Φυσικές Παράμετροι

Οι κύριες φυσικές παράμετροι που προσδιορίζονται πρώτες είναι η μάζα και η πυκνότητα του ιζήματος.

Η διαδικασία επεξεργασίας των δειγμάτων περιλαμβάνει:

- 1) Κοσκίνισμα του δείγματος και απομάκρυνση των μη χρήσιμων στοιχείων με κόκκο διαμέτρου μεγαλύτερης των 2 mm (πέτρες, κοχύλια κλπ).
- 2) Μέτρηση της μάζας του εναπομείναντος δείγματος.
- 3) Μέτρηση της πυκνότητας με χρήση ογκομετρικής φιάλης.
- 4) Αποξήρανση του δείγματος. Το δείγμα παραμένει σε κλίβανο στους 55° C. Τυπικός χρόνος αποξήρανσης ενός δείγματος 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 αποξηραμένου δείγματος.
- 6) Μέτρηση της πυκνότητας του στεγνού δείγματος με χρήση ογκομετρικής φιάλης.

3.3.2 Κοκκομετρία

Αφού έχουν προσδιορισθεί οι φυσικές παράμετροι, ακολουθεί ο υπολογισμός του μεγέθους των κόκκων των δειγμάτων. Το μέγεθος του κόκκου από το οποίο αποτελείται ένα ίζημα είναι η πιο θεμελιώδης φυσική ιδιότητά του καθώς έχει παρατηρηθεί ότι τα ραδιονουκλίδια προσκολλώνται ευκολότερα σε λεπτόκοκκα ιζήματα.

Η ανάλυση του μεγέθους 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 του δείγματος. Το μέγεθος του κόκκου αναφέρεται στη διάμετρο των μεμονωμένων κόκκων του ιζήματος. Στα θαλάσσια ιζήματα οι τιμές αυτές ποικίλλουν σε μέγεθος από λίγα μικρόμετρα σε μερικά χιλιοστά. Για την περιγραφή της ποικιλίας κόκκων χρησιμοποιούνται κλάσεις μεγέθους των διαμέτρων μέσω ειδικών ιζηματολογικών κλιμάκων, όπως η διευρυμένη κλίμακα Wentworth [Wentworth, 1992] που παρουσιάζεται στον Πίνακα 3.1.

Κλάση	Κοκκομετρική τάξη	Διάμετρος κόκκων (mm)
Ψηφίτες (gravel)	Ογκόλιθοι (boulders)	256 – 1024
	Κροκάλες (cobble)	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
Ίλος (mud)	Πηλός (silt)	0.002 – 0.0625
	Αργίλος (clay)	<0.002

Πίνακας 3.1: Διευρυμένη κλίμακα Wentworth του μεγέθους των κόκκων ιζήματος [Wentworth, 1992].

Ο εξοπλισμός και οι τεχνικές που χρησιμοποιούνται για την κοκκομετρική ανάλυση πρέπει να είναι τέτοιες ώστε τα αποτελέσματα να είναι γρήγορα, ακριβή και να παρουσιάζουν επαναληψιμότητα. Η ακρίβεια των μετρήσεων καθορίζεται από τον τρόπο δειγματοληψίας, τις συνθήκες αποθήκευσης, τις αναλυτικές μεθόδους, τον εξοπλισμό αλλά και την ικανότητα του αναλυτή. Δεν υπάρχει απόλυτη ή ιδανική διαδικασία για όλα τα είδη δειγμάτων και ως εκ τούτου έχουν αναπτυχθεί πολλές διαφορετικές τεχνικές.

Η μέθοδος του κοκκοδιαχωρισμού που εφαρμόστηκε αφορούσε μέρη των αποξηραμένων δειγμάτων (8-10 g). Αρχικά για κλάσμα κόκκου μεγαλύτερο από 63 μm , διακρίνει δύο περιπτώσεις για το διαχωρισμό σε ιλύς, άμμο και ψηφίτες:

1. Στην περίπτωση όπου το δείγμα είναι αμμώδες (χοντρόκοκκο ιζήμα όπου οι κόκκοι φαίνονται καθαρά διαχωρισμένοι) επιλέγεται η μέθοδος του *ξηρού διαχωρισμού* (dry separation). Το δείγμα χωρίζεται σε τρεις κλάσεις (>2 mm, 2 mm – 63 μm , <63 μm) χρησιμοποιώντας κόσκινα δύο διαφορετικών διαμέτρων (2 mm και 63 μm) και προσδιορίζεται η ποσότητα δείγματος από κάθε κόσκινο με ζυγό ακριβείας.
2. Στην περίπτωση όπου το δείγμα είναι λασπώδες (λεπτόκοκκο ιζήμα όπου οι κόκκοι του εμφανίζονται σαν συσσωματώματα) επιλέγεται η μέθοδος του *υγρού διαχωρισμού* (wet separation) των κόκκων. Σε αυτή την περίπτωση το αφυδατωμένο δείγμα τοποθετείται σε ποτήρι ζέσεως (50 ml) και προστίθενται 20 ml MilliQ (υπερκαθαρό απιονισμένο νερό) για την αποκόλληση των κόκκων, αναδεύεται ήπια και ηρεμεί σε συνθήκες περιβάλλοντος. Κατόπιν, το υγρό δείγμα διαχωρίζεται με κόσκινα (διαμέτρου 2 mm και 63 μm) και η ποσότητα δείγματος που παρέμεινε σε κάθε ένα από αυτά μετά το διαχωρισμό,

τοποθετείται σε πετρί και ζυγίζεται σε ζυγό ακριβείας. Έπειτα τοποθετείται στον κλίβανο μέχρι να αποξηραθεί και ζυγίζεται ξανά.

3.4 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 ημιαγωγίμους ανιχνευτές *υψηλής καθαρότητας γερμανίου* (High Purity Germanium) HPGe.

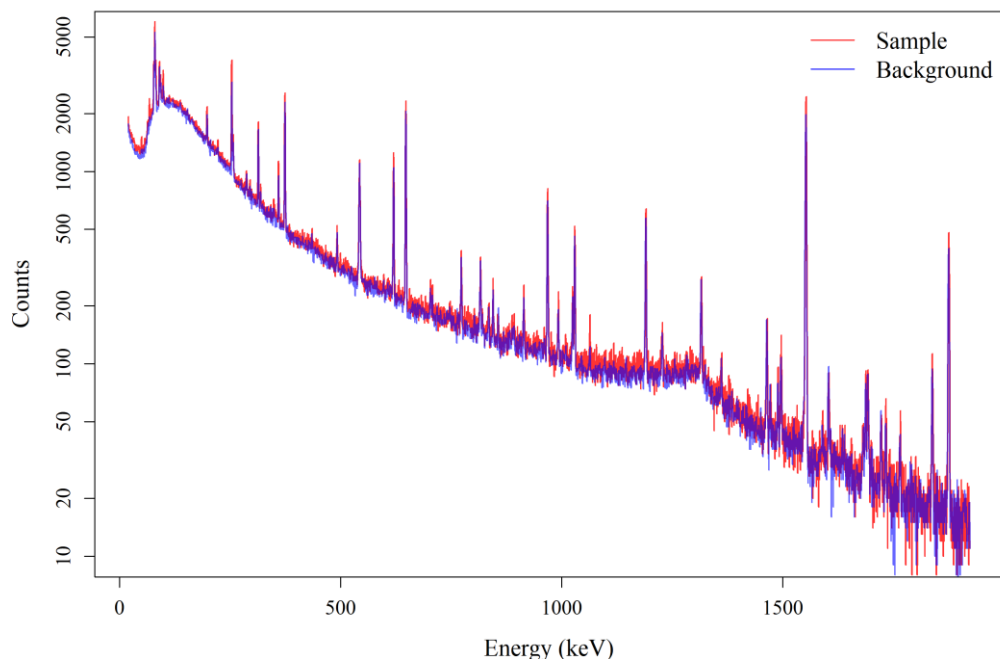
3.4.1 Δειγματοποίηση

Για την απευθείας μέτρηση των ιζημάτων, ποσότητα αποξηραμένου δείγματος κονιορτοποιείται σε ειδικό μύλο με σκοπό το θρυμματισμό των κόκκων και τη μείωση του μεγέθους τους σε διάμετρο μικρότερη των 63 μm . Εναλλακτικά, η κονιορτοποίηση μπορεί να πραγματοποιηθεί χρησιμοποιώντας γουδί από αχάτη. Το λεπτόκοκκο δείγμα τοποθετείται σε δοχείο μέτρησης μέχρι την ολοκλήρωσή του, διασφαλίζοντας έτσι και την ομοιογένειά του. Χρησιμοποιήθηκε κυλινδρική γεωμετρία των 65.35 cm^3 (68 mm διάμετρος, 18 mm ύψος) κατασκευασμένη από ακρυλικό πολυμερές (plexiglass) πάχους 1 mm ώστε να διασφαλίζεται η μικρότερη δυνατή απορρόφηση ακτίνων- γ από τα τοιχώματα. Η τελική πυκνότητα όλων των δειγμάτων κυμαίνεται κοντά στο 0.7 g/cm^3 , ανάλογα τη σύστασή του, ενώ σε περίπτωση που το δείγμα δεν επαρκεί προστίθεται ραδιενεργά ουδέτερο λεπτόκοκκο υλικό (talc) 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 βαθμονόμησης των ανιχνευτικών συστημάτων. Τα δείγματα σφραγίστηκαν με σταγανωτική ταινία ώστε να αποφευχθεί η διαφυγή των αέριων ραδιονουκλιδίων, Ραδονίου ^{222}Rn ($t_{1/2}=3.8$ d) και Θορονίου ^{220}Rn ($t_{1/2}=5.4$ s).

3.5 Φασματική ανάλυση δειγμάτων

Η ανάλυση των φασμάτων πραγματοποιήθηκε με τη βοήθεια του λογισμικού SPECTRW [Kalfas, 2011]. Το ολοκληρωμένο πρόγραμμα περιλαμβάνει ένα σύνολο 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 κεντροειδούς των φωτοκορυφών γίνεται με τη μέθοδο της διπλής διαφόρισης του φάσματος και τον εντοπισμό των αρνητικών ακροτάτων, ενώ υπάρχει η δυνατότητα επιλογής μεταξύ πολλών εξισώσεων προσδιορισμού του υποβάθρου (πολυωνυμικές, σιγμοειδείς κ.ά). Τα γεγονότα της φωτοκορυφής υπολογίζονται από την ολοκλήρωση ως προς το ύψος της Γκαουσιανής κατανομής στην περιοχή της φωτοκορυφής πάνω από τη γραμμή του υποβάθρου. Ένα

τυπικό φάσμα 24h τόσο για το υπόβαθρο όσο και για ένα δείγμα σε βάθος 19 cm , παρουσιάζεται στην Εικόνα 3.5.



Εικόνα 3.5: Τυπικό φάσμα ανάλυσης για το δείγμα 19 cm (μπλε) μαζί με το υπόβαθρο (κόκκινο) μετρημένα για 24 h.

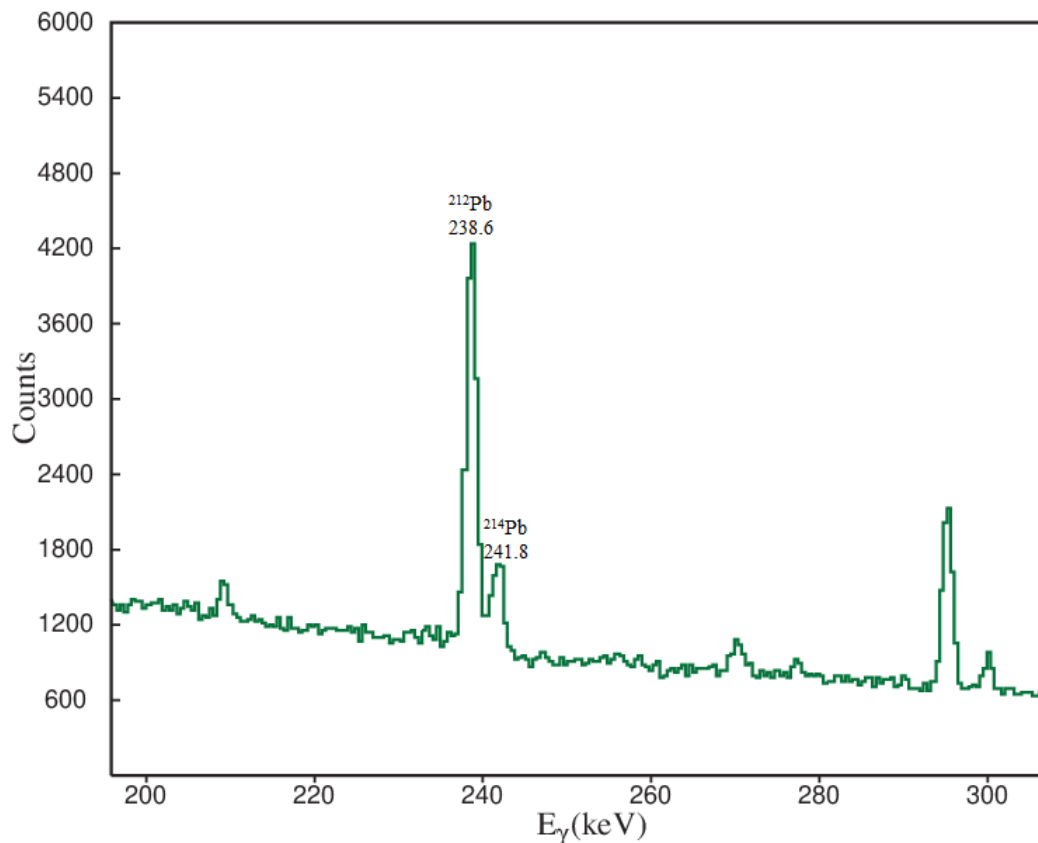
Στον Πίνακα 3.2 παρουσιάζονται οι φυσικές ραδιενεργές σειρές με τα ισότοπά τους που μελετώνται στο ίζημα καθώς και η ενέργεια της ακτίνας-γ και η ένταση εμφάνισής τους.

Το ^{241}Am και το ^{137}Cs δεν ανήκουν σε κάποια φυσική ραδιενεργό σειρά καθώς είναι τεχνητά ραδιενεργά ισότοπα και αποτελούν πυρηνικά απόβλητα αντιδραστήρων. Το ^{40}K είναι ραδιενεργό ισότοπο του φυσικού Καλίου.

Ραδιενεργός σειρά	Ισότοπο	E_γ (keV)	I_γ (%)
^{238}U	^{210}Pb	46.5	4.25
-	^{241}Am	59.5	35.9
^{238}U	^{234}Th	63.3	3.8
^{238}U	^{226}Ra	185.6	3.51
^{232}Th	^{212}Pb	238.6	43.3
^{238}U	^{214}Pb	351.9	37.6
^{232}Th	^{208}Tl	583.2	84.5
^{238}U	^{214}Bi	609.3	46.1
-	^{137}Cs	661.6	85.1
^{232}Th	^{228}Ac	911.2	25.8
-	^{40}K	1460.8	10.67
^{238}U	^{214}Bi	1764.5	15.4

Πίνακας 3.2: Τα προς μελέτη ισότοπα, οι ραδιενεργές σειρές που ανήκουν, οι ενέργειες που εμφανίζονται και η πιθανότητα εμφάνισής τους.

Ένα πρόβλημα που παρουσιάστηκε κατά την ανάλυση των φασμάτων των δειγμάτων ήταν οι διπλές φωτοκορυφές των ραδιοϊσοτόπων όπως για παράδειγμα η φωτοκορυφή 238.6 keV του ^{212}Pb με τη φωτοκορυφή 241.8 keV του ^{214}Pb και η φωτοκορυφή 964.3 keV του ^{214}Bi με τη φωτοκορυφή 968.7 keV του ^{228}Ac . Οι φωτοκορυφές αυτές εμφανίζονται αρκετά κοντά η μία στην άλλη με αποτέλεσμα η εφαρμογή Γκαουσιανής καμπύλης και η ολοκλήρωση να αποτυγχάνουν. Το πρόβλημα αυτό επιλύεται εύκολα με την ικανότητα του προγράμματος SPECTRW, την αποσυνέλιξη (deconvolution). Βασίζεται στην εφαρμογή διπλής Γκαουσιανής καμπύλης πάνω στις κορυφές ώστε να προσαρμόζονται όσο το δυνατόν καλύτερα λαμβάνοντας υπόψη το ύψος τους, τα κεντροειδή τους και το FWHM. Στην Εικόνα 3.6 παρουσιάζονται οι φωτοκορυφές του ^{212}Pb και του ^{214}Pb .



Εικόνα 3.6: Φάσμα του επιφανειακού δείγματος για τη διπλή κορυφή στα 238 keV.

3.5 Μεθοδολογία βαθμονόμησης

Προκειμένου να πραγματοποιηθούν προσοτικές αναλύσεις για τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης ενεργότητας των ραδιονουκλιδίων σε δείγματα θαλάσσιου ιζήματος είναι απαραίτητο τα συστήματα ανίχνευσης να βαθμονομηθούν. Η βαθμονόμηση περιλαμβάνει την ενεργειακή βαθμονόμηση, τη βαθμονόμηση της διακριτικής ικανότητας και τη βαθμονόμηση της απόλυτης απόδοσης του ανιχνευτή. Οι δύο πρώτες αφορούν στα χαρακτηριστικά του ανιχνευτή και των υπολοίπων ηλεκτρονικών, ενώ η τελευταία αναφέρεται κάθε φορά σε συγκεκριμένη γεωμετρία ανίχνευσης και επηρεάζεται από τα χαρακτηριστικά του ανιχνευόμενου δείγματος. Οι βαθμονομήσεις

πραγματοποιούνται πειραματικά με χρήση ραδιενεργών πηγών αναφοράς γνωστής ενεργότητας.

3.5.1 Πηγές αναφοράς

Χρησιμοποιήθηκε μία γεωμετρία των 65 g ίδιων διαστάσεων με αυτή των δειγμάτων (65.35 cm^3 όγκος, 68 mm διάμετρος, 18 mm ύψος). Οι βαθμονομήσεις πραγματοποιήθηκαν εντός της θωράκισης του ανιχνευτή για να μειωθεί η επίδραση της ακτινοβολίας υποβάθρου. Το φάσμα υποβάθρου καταγράφηκε αμέσως μετά την καταγραφή του φάσματος βαθμονόμησης με τις ίδιες ρυθμίσεις ώστε να αποφευχθεί οποιαδήποτε τυχαία μετατόπιση καναλιών στα δύο φάσματα. Το φάσμα υποβάθρου ήταν για την ίδια γεωμετρία με αυτή της βαθμονόμησης συμπληρωμένης με ουδέτερο υλικό μηδενικής εκπομπής ακτινοβολίας-γ (talc, πυκνότητας $\rho=0.8 \text{ g/cm}^3$).

Όλες οι βαθμονομήσεις έγιναν με πηγές αναφοράς $^{152}\text{Eu}/^{154}\text{Eu}$ (αναλογίας 93% : 7%, ενεργότητας $(6700 \pm 200) : (500 \pm 15) \text{ Bq}$ στις 20/02/2001 και πυκνότητας $\rho=0.02 \text{ g/cm}^3$) παρασκευασμένες στο Εργαστήριο Ραδιοχημείας του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος».

Η πειραματική βαθμονόμηση με πηγή Eu περιλαμβάνει την καταγραφή δύο φασμάτων της πηγής αναφοράς και από τις δύο όψεις (30 min το καθένα), την άθροιση των δύο φασμάτων και την αφαίρεση φάσματος υποβάθρου (24 h για ικανοποιητική στατιστική) ύστερα από χρονική κανονικοποίηση. Η απόλυτη απόδοση ανίχνευσης ως συνάρτηση της ενέργειας προσδιορίστηκε από την ανάλυση των δέκα πιο έντονων, και καθαρών από το ^{154}Eu , φωτοκορυφών ακτίνων-γ που ανήκουν στο ^{152}Eu .

Επίσης, χρησιμοποιήθηκε εκτεταμένη πηγή ^{40}K με ενεργότητα $1133.5 \pm 45 \text{ Bq}$. Δεδομένου ότι είναι μακρόβιο ραδιονουκλίδιο και με πυκνότητα περίπου ίδια με τη μέση πυκνότητα των δειγμάτων, η απόδοση δεν παρουσιάζει μεταβολές. Η πηγή είναι κονιοροποιημένο άλας KCl και η ενεργότητά του προσδιορίστηκε από την ακριβή μέτρηση του βάρους του και τη μετατροπή του σε Bq αφού το ^{40}K βρίσκεται σε αναλογία 0.0117% στο φυσικό Κάλιο. Το πειραματικό φάσμα βαθμονόμησης ήταν 1 h καθώς παρείχε επαρκή στατιστική. Η πηγή ^{40}K προσφέρει τη δυνατότητα υπολογισμού της απόδοσης στην ενέργεια της εκπεμπόμενης ακτινοβολίας-γ στα 1460.8 keV.

Τέλος χρησιμοποιήθηκε μια ακόμα πηγή αναφοράς, δείγμα μεσοζωικού ίζηματογενούς πετρώματος από *τεκτονισμένο πλούσιο σε οργανικό υλικό φωσφορικό ασβεστόλιθο* (tectonized organic rich phosphatized limestones) που συλλέχθηκε από την περιοχή του Περιβλεπτου της Ηπείρου, ΒΔ Ελλάδα. Το δείγμα (PER2B) μετρήθηκε στον ανιχνευτή του εργαστηρίου του ΕΜΠ όπου διαπιστώθηκε ιδιαίτερα έντονη παρουσία ραδιονουκλιδίων των φυσικών σειρών του ^{238}U και ^{235}U . Η ενεργότητα της πηγής στις 29/6/2018 ήταν $640.43 \pm 35 \text{ Bq}$ και η πυκνότητά του $\rho=1.45 \text{ g/cm}^3$. Η πηγή αυτή δίνει τη δυνατότητα για ακριβή προσδιορισμό της καμπύλης βαθμονόμησης στις χαμηλές ενέργειες, λόγω της μεγάλης ενεργότητάς του και το πλήθος των φωτοκορυφών αναφοράς για ενέργειες κάτω από τα 100 keV. Φωτοκορυφές μεγαλύτερων ενεργειών δε χρησιμοποιήθηκαν λόγω φαινομένων προσθετικών αθροίσεων. Στην Εικόνα 3.7 παρουσιάζονται οι εκτεταμένες πηγές αναφοράς του ^{152}Eu και του ^{40}K



Εικόνα 3.7: Οι πηγές του KCl και ^{152}Eu για τη βαθμονόμηση των ανιχνευτικών συστημάτων.

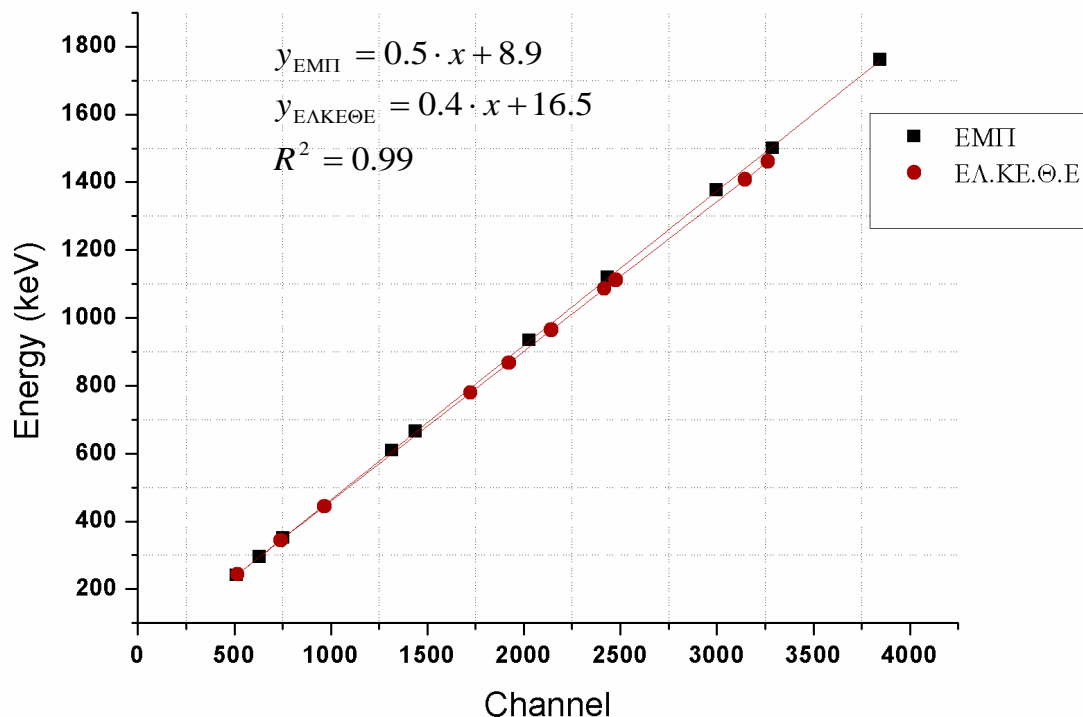
3.5.2 Ενεργειακή βαθμονόμηση

Η ενεργειακή βαθμονόμηση εξυπηρετεί στον προσδιορισμό της ενεργειακής διακριτοποίησης στο τελικό φάσμα. Πραγματοποιείται αντιστοίχιση μεταξύ ενέργειας των ακτίνων-γ από τις πηγές αναφοράς και του καναλιού στο οποίο εμφανίζονται στο ενεργειακό φάσμα του MCA. Η σχέση που προκύπτει είναι γραμμική της μορφής $\text{ενέργεια} = a + b \times \text{κανάλι}$. Ο παράγοντας a εκφράζει το κατώτατο όριο ηλεκτρικών παλμών εισόδου του ADC πάνω από το οποίο τους ψηφιοποιεί, ενώ η κλίση b την ενέργεια που αντιστοιχεί τελικά ανά κανάλι του MCA. Στον Πίνακα 3.3 που ακολουθεί παρουσιάζονται οι τιμές της ενέργειας από τις πηγές αναφοράς καθώς και το κανάλι στο οποίο εντοπίζονται.

Ενέργεια (keV)	Κανάλι (EMΠ)	Κανάλι (ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε)
244.7	520	516
344.3	739	741
444.1	957	967
779.1	1693	1723
867.3	1887	1923
963.9	2099	2142
1085.7	2367	2417
1111.9	2424	2476
1407.6	3074	3145
1460.8	3190	3265

Πίνακας 3.3: Τιμές ενέργειας και καναλιών για τα δύο ανιχνευτικά συστήματα.

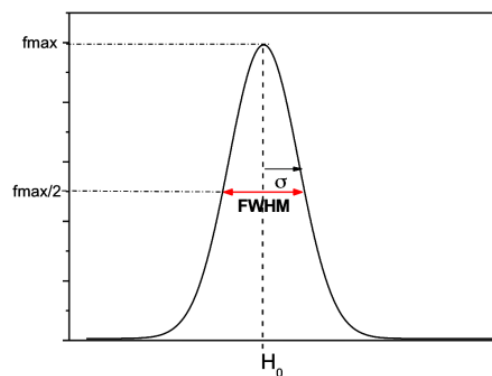
Σύμφωνα με τις παραπάνω τιμές, τα δεδομένα παρουσιάζονται στη γραφική παράσταση (Εικόνα 3.8) που ακολουθεί:



Εικόνα 3.8: Διάγραμμα Ενέργεια – Κανάλι για τα δύο ανιχνευτικά συστήματα.

3.5.3 Βαθμονόμηση διακριτικής ικανότητας

Εκτός από την ενεργειακή βαθμονόμηση, πραγματοποιείται και η βαθμονόμηση της διακριτικής ικανότητας. Με τον όρο αυτό εννοείται η ικανότητα του ανιχνευτή να ξεχωρίζει φωτόνια που έχουν παραπλήσια ενέργεια. Το μέτρο της είναι το FWHM (Full Width at Half Maximum) (Εικόνα 3.8) και ορίζεται ως το πλάτος της κατανομής σε ύψος, ακριβώς στο μέσο της κορυφής H_0 . Ο ορισμός αυτός εμπεριέχει το γεγονός ότι, οποιοδήποτε υπόβαθρο πρέπει να θεωρηθεί αμελητέο σε σχέση με τη φωτοκορυφή και μετράται συνήθως σε keV.



Εικόνα 3.9: Σχηματική αναπαράσταση φωτοκορυφής κεντρικής τιμής H_0 και του FWHM της. Έτσι η σχετική διακριτική ικανότητα του ανιχνευτή δίνεται από τον τύπο:

$$resolution = \frac{FWHM}{H_0}$$

Εξ.16

Όπου,

H_0 : η κεντρική τιμή της ενέργειας της Γκαουσιανής κατανομής (κορυφή)

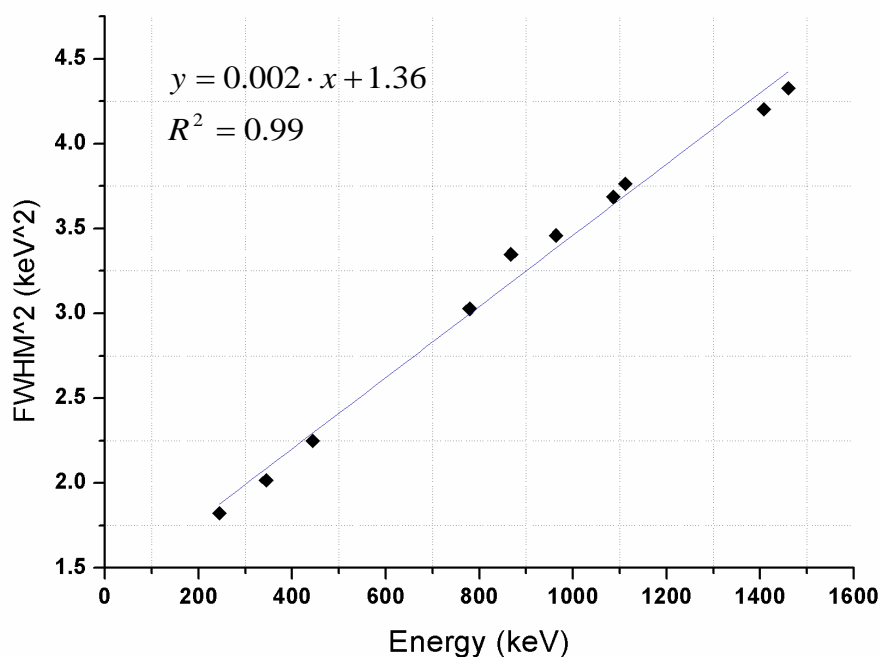
FWHM: το πλάτος της κατανομής στο μίσο της ύψος, το οποίο μεταβάλλεται ανάλογα με την ενέργεια

Στον Πίνακα 3.4 παρουσιάζονται οι τιμές της ενέργειας από τις πηγές αναφοράς και η τιμή του FWHM τους.

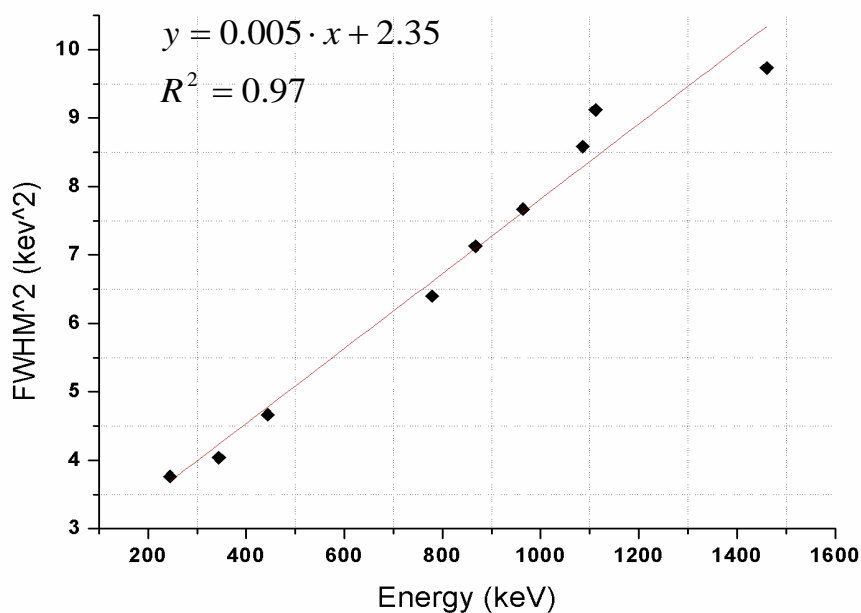
Ενέργεια (keV)	FWHM (EMΠ)	FWHM (ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε)
244.7	1.94	1.35
344.3	2.01	1.42
444.1	2.16	1.50
779.1	2.53	1.74
867.3	2.67	1.83
963.9	2.77	1.86
1085.7	2.93	1.92
1111.9	3.02	1.94
1407.6	2.85	2.05
1460.8	3.12	2.08

Πίνακας 3.4: Τιμές ενέργειας και των FWHM των φωτοκορυφών τους για τα δύο ανιχνευτικά συστήματα.

Τα δεδομένα παρουσιάζονται στις παρακάτω γραφικές παράστασεις (Εικόνες 3.10 και 3.11):



Εικόνα 3.10: Διάγραμμα FWHM – Ενέργειας ανιχνευτή ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε.



Εικόνα 3.11: Διάγραμμα FWHM – Ενέργειας ανιχνευτή EMΠ.

3.5.4 Βαθμονόμηση απόλυτης απόδοσης

Η βαθμονόμηση της απόδοσης του ανιχνευτή HPGe, έχει να κάνει με τον ποιοτικό χαρακτηρισμό και τον ποσοτικό προσδιορισμό της ενεργότητας ραδιονουκλιδίων των δειγμάτων. Δίνεται από τη σχέση:

$$\varepsilon = \frac{cps}{I_{\gamma} \cdot A_{ref}} \quad \text{Εξ.17}$$

Όπου,

cps: τα γεγονότα που καταγράφονται στη μονάδα του χρόνου (counts per second) στη φωτοκορυφή της εκπεμπόμενης ακτίνας-γ ενέργειας E

I_{γ} : η ένταση (intensity) ή πιθανότητα εκπομπής της ακτίνας-γ κατά την αποδιέγερση του ραδιενεργού πυρήνα

A_{ref} : η ενεργότητα του ραδιονουκλιδίου της πηγής αναφοράς

Ωστόσο πρέπει να ληφθούν υπόψη μερικές διορθώσεις της απόλυτης απόδοσης που έχουν να κάνουν με την *πραγματική συμπτωτική άθροιση* φωτοκορυφών και τη διαφορά στην *ενδοαπορρόφηση* μεταξύ δείγματος και πηγής βαθμονόμησης.

Στην περίπτωση της διόρθωσης της πραγματικής συμπτωτικής άθροισης φωτονίων, το φαινόμενο παρουσιάζεται όταν φωτόνια που εκπέμπονται ταυτόχρονα, μετά από άμεση διαδοχική μετάπτωση ενός διεγερμένου πυρήνα από δύο ή και περισσότερες ενεργειακές στάθμες, εισέρχονται στον ανιχνευτή και καταφέρνουν να απορροφηθούν πλήρως ή μερικώς 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 μια αθροιστική όταν απορροφούνται πλήρως. Η πιθανότητα να συμβεί το φαινόμενο συνδέεται με τη στερεά γωνία πηγής-ανιχνευτή αφού τα φωτόνια εκπέμπονται ισότροπα από τους ραδιενεργούς πυρήνες. Για δεδομένη στερεά γωνία ο αριθμός των πραγματικών συμπτωτικών αθροίσεων ανά δευτερόλεπτο είναι ανάλογος της ενεργότητας του δείγματος. Επομένως για γεωμετρία επαφής, όπου η στερεά γωνία είναι μεγάλη, το φαινόμενο της πραγματικής συμπτωτικής άθροισης είναι συχνό.

Στην περίπτωση της διόρθωσης της ενδοαπορρόφησης μεταξύ δείγματος και πηγής βαθμονόμησης, ο βαθμός ενδοαπορρόφησης εξαρτάται κυρίως από την πυκνότητα του δείγματος και τη σύστασή του. Έτσι είναι απαραίτητο τα δείγματα να συγκρίνονται άμεσα, με πηγές αναφοράς ίδιας γεωμετρίας μέτρησης, πυκνότητας και σύστασης. Αυτό θα σήμαινε ότι για κάθε δείγμα θα έπρεπε να παράγεται νέα πηγή αναφοράς. Για το λόγο αυτό εφαρμόζεται η υπολογιστική μέθοδος της μεταφοράς απόδοσης (efficiency transfer). Πρόκειται για μια μέθοδο υπολογισμού της απόλυτης απόδοσης φωτοκορυφής ενός δείγματος ενδιαφέροντος με βάση την αντίστοιχη πειραματική τιμή απόδοσης μετρημένη στον ίδιο ανιχνευτή, αλλά με πηγή αναφοράς διαφορετικού μεγέθους, γεωμετρίας, πυκνότητας και σύστασης.

Οι διορθώσεις αυτές γίνονται με τη βοήθεια του προγράμματος EFFTRAN [Vidmar, 2005].

Πρόγραμμα EFFTRAN: Επιτρέπει τον υπολογισμό διορθωτικών παραγόντων για το φαινόμενο πραγματικής συμπτωτικής άθροισης (True Coincidence Summing) και τη μεταφορά απόλυτης απόδοσης φωτοκορυφής για εφαρμογές στη φασματοσκοπία-γ περιβάλλοντος. Ο κώδικας έχει αναπτυχθεί σε Fortran 77 και βασίζεται σε Monte Carlo ολοκληρώσεις. Η διάθεση του είναι ελεύθερη και τρέχει σε Windows λειτουργικό μέσω φύλλων excel. Για τον υπολογισμό διορθωτικών παραγόντων για το φαινόμενο πραγματικής σύμπτωσης, ο χρήστης χρησιμοποιεί το excel φύλλο coincidence summing.xls. Σε αυτό εισάγονται πληροφορίες για τον τύπο και τα χαρακτηριστικά του ανιχνευτή που έχει χρησιμοποιηθεί καθώς και πληροφορίες για τον τύπο της πηγής όπως διαστάσεις, ύψος και πυκνότητα δείγματος, ραδιενεργά στοιχεία από τα οποία αποτελείται και απόσταση από τον ανιχνευτή. Έπειτα ο κώδικας υπολογίζει διορθωτικούς παράγοντες για κάθε ενέργεια εκπομπής του στοιχείου της πηγής. Για τη διόρθωση των αποτελεσμάτων, αρκεί ο πολλαπλασιασμός των πειραματικών τιμών της ανιχνευτικής απόδοσης με τους αντίστοιχους διορθωτικούς παράγοντες. Μέσω του excel φύλλου efficiency transfer.xls ο χρήστης συμπληρώνει τα χαρακτηριστικά του ανιχνευτή, της πηγής βαθμονόμησης και του δείγματος καθώς και τις τιμές της απόδοσης όπως αυτές προέκυψαν από τη βαθμονόμηση. Βάσει των παραπάνω, το πρόγραμμα υπολογίζει καινούργιες τιμές για την απόλυτη απόδοση του συστήματος. Για τους υπολογισμούς λαμβάνονται υπόψη αλληλεπιδράσεις φωτονίων με φωτόνια αλλά και φωτονίων με ακτίνες-Χ (ηλεκτρόνια).

Ο κώδικας έχει αναπτυχθεί για διατάξεις που παρουσιάζουν αξονική συμμετρία και κυλινδρικούς ανιχνευτές και πηγές. Οι ανιχνευτές που μπορεί να δεχτεί το πρόγραμμα είναι τύπου HPGe, NaI και LaBr₃. Μαζί με τα υπόλοιπα, στο πακέτο του προγράμματος συμπεριλαμβάνεται ένα επιπλέον excel φύλλο (material.xls) το οποίο επιτρέπει τη

δημιουργία υλικών τα οποία χρησιμοποιούνται στην περιγραφή των ανιχνευτών. Μέσω αυτού τροποποιούνται υπάρχοντα μοντέλα ανιχνευτών για τη δημιουργία καινούργιων. Οι πληροφορίες για τις αποδιεγέρσεις των στοιχείων προέρχονται από τη βιβλιοθήκη KORDATEN ενώ οι ενεργές διατομές και οι αλληλεπιδράσεις των φωτονίων βασίζονται στο πακέτο XCOM.

Με βάση τις παραπάνω διορθώσεις, η απόλυτη απόδοση δίνεται από τη σχέση:

$$\varepsilon = f_{TCS} \cdot f_{ET} \cdot \frac{cps}{I_{\gamma} \cdot A_{ref}} \quad \text{Εξ.18}$$

Όπου,

f_{TCS} : παράγοντας διόρθωσης φαινομένου πραγματικής συμπτωτικής άθροισης

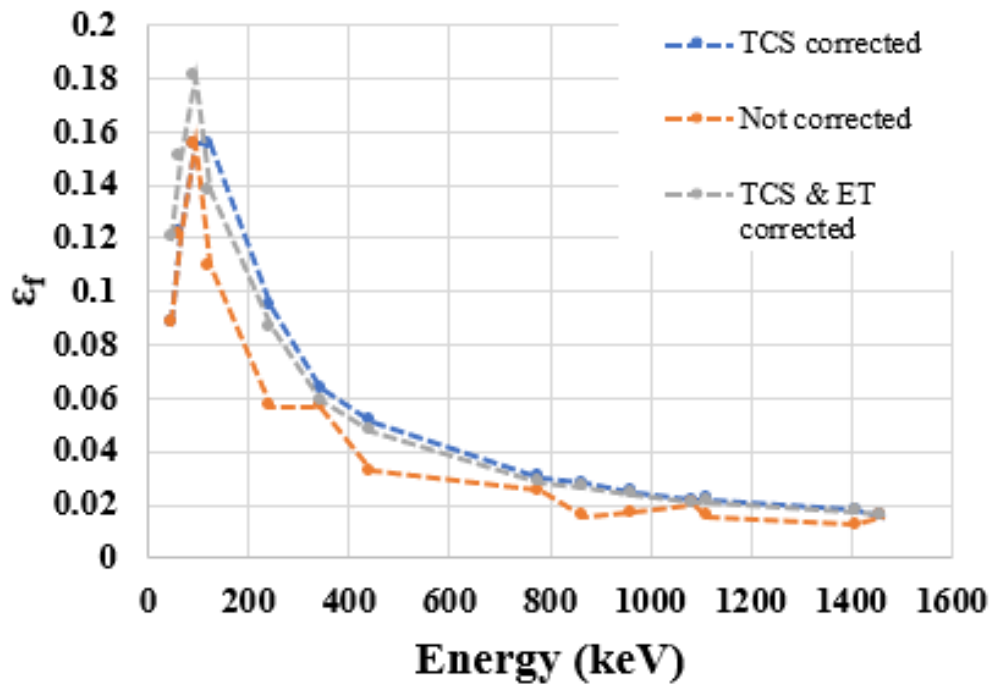
f_{ET} : παράγοντας διόρθωσης φαινομένου ενδοαπορρόφησης.

Χρησιμοποιώντας τις διορθώσεις που δίνει το πρόγραμμα EFFTRAN οι τιμές της απόλυτης απόδοσης του ανιχνευτή του ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε παρουσιάζονται στον Πίνακα 3.5 που ακολουθεί:

Ενέργεια (keV)	Μη διορθωμένη απόδοση ε_f ($\times 10^{-3}$)	TCS παράγοντας	ET παράγοντας	Διορθωμένη απόδοση ε_f ($\times 10^{-3}$)	$\delta\varepsilon_f$ ($\times 10^{-3}$)
46.56	88.3	1.000	1.363	120	7.3
63.29	121	1.009	1.231	150	9.2
92.61	156	1.000	1.161	181	11
121.78	110	1.417	0.889	138	5.9
244.7	56.8	1.661	0.917	86.6	3.7
344.28	57.0	1.123	0.927	59.3	2.5
443.34	32.8	1.561	0.934	47.8	2.8
609.32	29.3	1.183	1.071	37.1	2.2
778.9	25.2	1.195	0.947	28.5	1.2
867.37	15.6	1.781	0.949	26.4	1.4
964.08	17.0	1.471	0.951	23.7	1.0
1085.9	20.3	1.072	0.956	20.8	1.0
1112.1	15.8	1.390	0.958	21.0	1.0
1408	12.7	1.421	0.962	17.3	0.9
1460.8	15.8	1.000	1.022	16.2	0.7
1764.5	13.8	0.997	1.042	14.4	0.8

Πίνακας 3.5: Τιμές ενέργειας, διορθωτικοί παράγοντες και απόλυτη απόδοση για τον ανιχνευτή του ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε.

Στην Εικόνα 3.12 που ακολουθεί, παρουσιάζονται τρεις γραφικές παραστάσεις: της μη διορθωμένης απόδοσης, της απόδοσης μόνο με διόρθωση πραγματικής συμπτωτικής άθροισης και της απόλυτης απόδοσης ύστερα από όλες τις διορθώσεις.

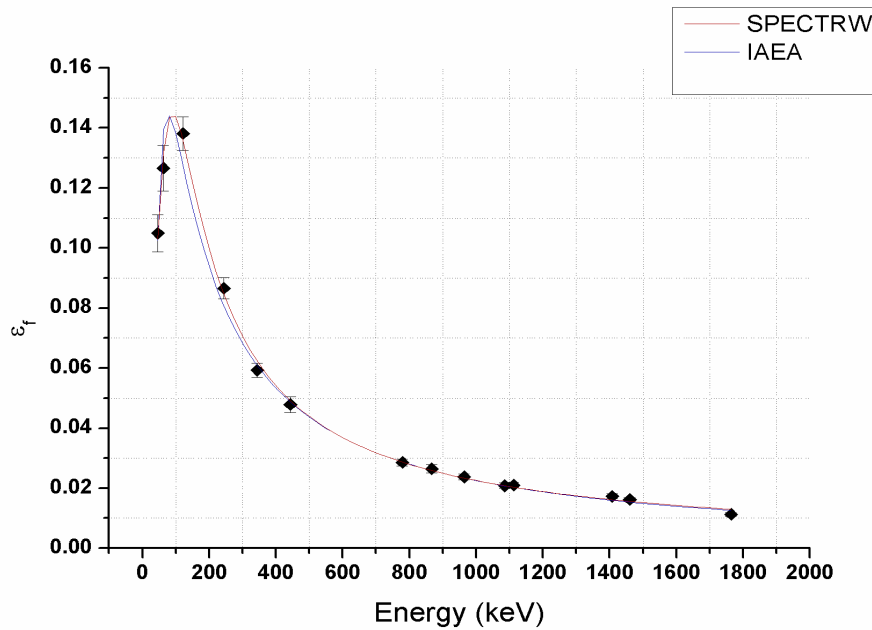


Εικόνα 3.12: Σχηματική αναπαράσταση της απόλυτης απόδοσης πριν και μετά τις σχετικές διορθώσεις συναρτήσει της ενέργειας.

Παρακάτω (Εικόνα 3.13) ακολουθεί η γραφική παράσταση της απόλυτης απόδοσης μετά τις διορθώσεις σε συνάρτηση με την ενέργεια για τον ανιχνευτή του ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε αφού έχουν χρησιμοποιηθεί για τη χάραξή της οι εμπειρικές σχέσεις τεσσάρων ελεύθερων παραμέτρων:

$$\varepsilon_{SPECTRW} = \frac{a \cdot E^b}{1000 \cdot c + E^d} \quad \text{Εξ.19}$$

$$\varepsilon_{IAEA} = a + \frac{b}{E} + \frac{c}{E^2} + \frac{d}{E^3} \quad \text{Εξ.20}$$



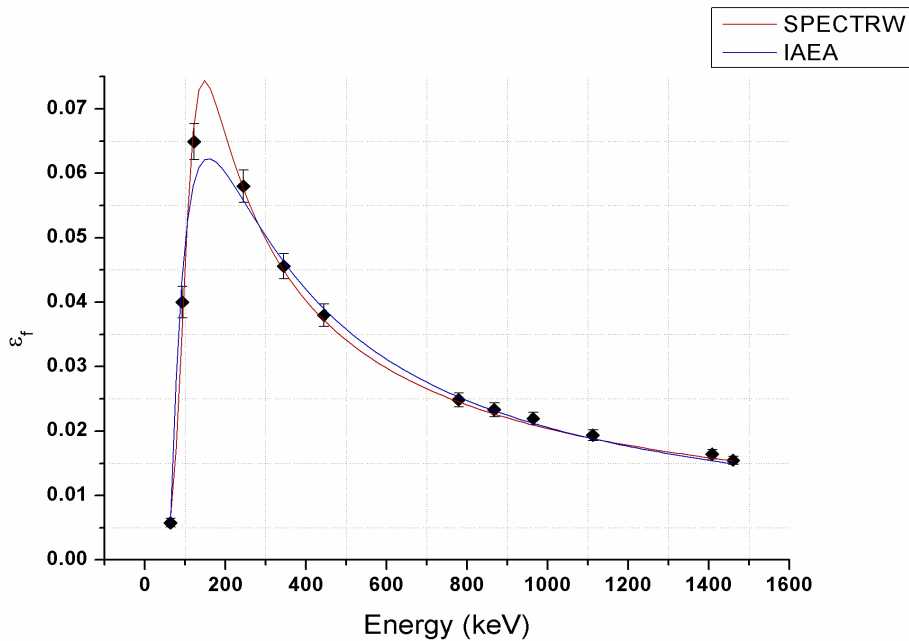
Εικόνα 3.13: Καμπύλη της απόλυτης απόδοσης συναρτήσει της ενέργειας για τον ανιχνευτή του ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε.

Ακολουθεί ο Πίνακας 3.6 με τις τιμές της απόλυτης απόδοσης για τον ανιχνευτή του ΕΜΠ:

Ενέργεια (keV)	Μη διορθωμένη απόδοση ϵ_f ($\times 10^{-3}$)	TCS παράγοντας	ΕΤ παράγοντας	Διορθωμένη απόδοση ϵ_f ($\times 10^{-3}$)	$\delta\epsilon_f$ ($\times 10^{-3}$)
63.07	5.7	1.000	1.224	6.9	0.8
92.45	42.3	1.000	1.155	48.9	2.9
121.78	55.0	1.115	0.893	61.1	2.7
244.7	45.5	1.157	0.920	56.1	2.4
344.28	41.5	1.077	0.930	44.8	1.9
443.95	30.2	1.141	0.936	36.8	1.7
609.3	21.7	1.144	1.069	30.3	1.7
778.9	20.9	1.107	0.950	24.3	1.1
867.37	17.0	1.178	0.952	22.5	1.0
964.08	19.8	1.069	0.955	21.7	0.9
1085.9	19.6	0.948	0.957	16.9	0.7
1112.1	18.8	1.034	0.958	19.2	0.8
1408	15.3	1.049	0.962	16.2	0.7
1460.8	15.2	1.000	1.021	15.5	0.6
1764.5	13.8	0.996	1.040	14.3	0.8

Πίνακας 3.6: Τιμές ενέργειας, διορθωτικοί παράγοντες και απόλυτη απόδοση για τον ανιχνευτή του ΕΜΠ.

Έχοντας χρησιμοποιήσει τις ίδιες εμπειρικές σχέσεις τεσσάρων ελεύθερων παραμέτρων για τη χάραξη της καμπύλης της διορθωμένης απόλυτης απόδοσης συναρτήσει της ενέργειας, παρουσιάζεται το διάγραμμα για το ανιχνευτικό σύστημα του ΕΜΠ στην Εικόνα 3.14:



Εικόνα 3.14: Καμπύλη της απόλυτης απόδοσης συναρτήσει της ενέργειας για τον ανιχνευτή του ΕΜΠ.

Όλες οι μαθηματικές μέθοδοι προσδιορισμού της καμπύλης βαθμονόμησης στερούνται θεωρητικής βάσης και είναι αναμενόμενο να μην υπάρχει εν γένει βέλτιστη εξίσωση για όλες τις περιπτώσεις. Άλλωστε φαίνεται και στα γραφήματα (Εικόνες 3.13 και 3.14) ότι στα ~180 keV η προσαρμογή είναι εντελώς διαφορετική για τα δύο ανιχνευτικά συστήματα με αυτό του ΕΛ.ΚΕ.Θ.Ε να έχει πιο απότομη αλλαγή στο ακρότατο σε σχέση με του ΕΜΠ. Γενικά τα πολυώνυμα υψηλότερου βαθμού δίνουν πιο ικανοποιητικά αποτελέσματα. Όσον αφορά στη στατιστική ποιότητα της προσαρμογής, 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 αβεβαιότητας των πειραματικών δεδομένων. Για το λόγο αυτό ιδανικά θα πρέπει να λαμβάνεται υπόψη η αβεβαιότητα κάθε πειραματικού σημείου κατά τη διάρκεια των μαθηματικών προσαρμογών έτσι ώστε να αποδίδεται στατιστικό βάρος σε κάθε σημείο.

Όσον αφορά την εκτίμηση του σφάλματος των καμπυλών απόδοσης, δεδομένου ότι οι ελεύθερες παράμετροι 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 δε μπορεί να προσδιοριστεί με κανένα τρόπο, οπότε γίνεται μια εκτίμηση της συσχέτισης με το συστηματικό πειραματικό σφάλμα.

Στις μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν στην παρούσα εργασία λαμβάνοντας υπόψη το σφάλμα των πειραματικών τιμών της απόλυτης απόδοσης, την ποιότητα προσαρμογής (τιμή χ^2) της θεωρητικής καμπύλης (Εξ.20), τη μέση αβεβαιότητα των ελεύθερων παραμέτρων, την απόκλιση από τις πειραματικές τιμές και την

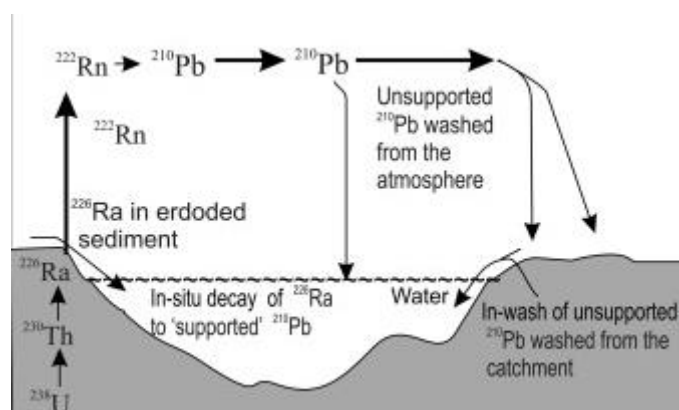
επαναληψιμότητα των αποτελεσμάτων προσαρμογής, η αβεβαιότητα της απόλυτης απόδοσης εκτιμήθηκε ότι κυμαινόταν από 4-5%, ανάλογα την ενεργειακή περιοχή.

3.6 Ραδιοχρονολόγηση με ^{210}Pb

Το ^{210}Pb είναι ένα φυσικό ραδιονουκλίδιο με χρόνο ημιζωής $t_{1/2}=22.2$ y που ανήκει στη ραδιενεργό σειρά του ^{238}U . 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 ραδιοχρονολόγησης ιζημάτων [Koide et al., 1972; Sanchez-Cabeza et al., 1999]. Η ραδιοχρονολόγηση με ^{210}Pb βασίζεται στις μετρήσεις των συγκεντρώσεων ενεργότητάς του σε πυρήνες ιζήματος ή εδάφους.

Στη στήλη του ιζήματος η συνολική συγκέντρωση ραδιενέργειας ^{210}Pb έχει δύο συνιστώσες, την υποστηριζόμενη (supported) $^{210}\text{Pb}_{\text{sup}}$ και την επιπλέον (excess) $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, έτσι ώστε $^{210}\text{Pb} = ^{210}\text{Pb}_{\text{sup}} + ^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$. Ο $^{210}\text{Pb}_{\text{sup}}$ παράγεται με επιτόπια αποδιέγερση του μητρικού ραδιονουκλιδίου ^{226}Ra ως μέρος της ραδιενεργού σειράς που προϋπάρχει σε σωματίδια του ιζήματος, ενώ ο $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ προέρχεται από τη ραδιενεργό διάσπαση του ^{222}Rn στον αέρα, όπου συνδέεται με αερολύματα και εναποτίθεται στην επιφάνεια του ιζήματος [Turekian et al., 1977].

Η εναπόθεση ^{210}Pb στην επιφάνεια του εδάφους είναι μια σταθερή φυσική διαδικασία, λόγω της συνεχούς έκλυσης ^{222}Rn στην ατμόσφαιρα. Από τη στιγμή που βρεθεί στο έδαφος ή στο ιζήμα ο ^{210}Pb προσροφάται, όπως και το ^{137}Cs , γρήγορα και ισχυρά. Σε συστήματα που έχουν μείνει κλειστά για επαρκές χρονικό διάστημα (>150 y), οι συγκεντρώσεις του $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ είναι μεγαλύτερες στην επιφάνεια και μειώνονται με το βάθος. Στις περισσότερες περιπτώσεις, ο ^{210}Pb στα ιζήματα μεγάλου βάθους βρίσκεται σε ισορροπία με το μητρικό ραδιονουκλίδιο ^{226}Ra [Brenner et al., 1994]. Η σχηματική αναπαράσταση των φυσικών διεργασιών εναπόθεσης ^{210}Pb σε υδάτινα ιζήματα παρουσιάζεται στην Εικόνα 3.15.



Εικόνα 3.15: Αναπαράσταση φυσικών διεργασιών εναπόθεσης ^{210}Pb σε υδάτινα ιζήματα.

Η μέτρηση του $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ σε πυρήνες ιζήματος έχει χρησιμοποιηθεί για τη μελέτη της αναδιανομής του εδάφους και την εκτίμηση του ρυθμού ιζηματογένεσης για το χρονικό διάστημα των τελευταίων 100-150 χρόνων. Ο προσδιορισμός του $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ επιτυγχάνεται

από το γεγονός ότι σε κάθε ιζηματικό επίπεδο ο $^{210}\text{Pb}_{\text{sup}}$ είναι σε ραδιενεργό ισορροπία με τα προγονικά του ^{226}Ra και ως εκ τούτου, ο $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ προκύπτει από τη διαφορά στην ενεργότητα του συνολικού ^{210}Pb και του μητρικού ^{226}Ra . Η συγκέντρωση του ^{210}Pb στα ιζήματα προσδιορίζεται με φασματοσκοπία- γ της εκπεμπόμενης ακτίνας- γ στα 46.5 keV [Schelske et al., 1994].

Το ^{226}Ra που δίνει την ποσότητα του $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ καθορίζεται συνήθως από τη φασματοσκοπία- γ , κυρίως μέσω της κορυφής 351.9 keV του ^{214}Pb με τον οποίο βρίσκεται σε ισορροπία.

Η μελέτη της αποδιέγερσης του $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ είναι η βάση της χρονολόγησης των πυρήνων ιζημάτων. Από την εκθετική εξίσωση του νόμου της ραδιενεργού αποδιέγερσης και υποθέτοντας ότι: (α) η καθίζηση και η επαναιώρηση του ιζήματος δε διακόπτεται στο χρόνο, (β) δεν υπάρχει καμία κινητικότητα του $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ μετά την απόθεσή 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 A με το βάθος x του ιζήματος:

$$A(t) = A_0 e^{-\lambda t} \Rightarrow A(x) = A_0 e^{-\lambda \frac{x}{v}} \quad \text{Εξ.21}$$

Όπου A_0 η επιφανειακή ενεργότητα $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ στο χρόνο $t=0$,

v η ταχύτητα καθίζησης και

λ η σταθερά αποδιέγερσης

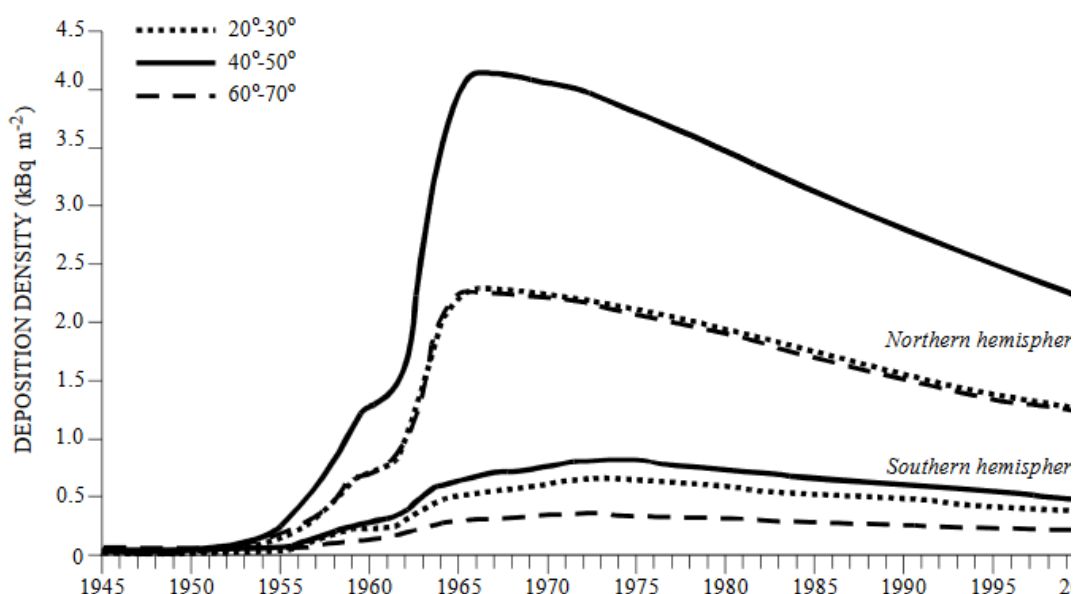
Αν η συσσώρευση του ιζήματος καθώς και η ροή του $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ στην επιφάνειά του είναι σταθερές, το προφίλ της συγκέντρωσης κατά μήκος του πυρήνα αναμένεται να είναι εκθετική καμπύλη. Έτσι, με τις πειραματικές μετρήσεις των $A(x)$ κατά μήκος του πυρήνα και βέλτιστη εκθετική προσαρμογή της παραπάνω σχέσης στα δεδομένα μπορεί να προσδιοριστεί η ταχύτητα καθίζησης του ιζήματος.

3.7 Ραδιοχρονολόγηση με ^{137}Cs

Η εκτεταμένη διασπορά του ^{137}Cs στο περιβάλλον άρχισε με τις ατμοσφαιρικές δοκιμές των πυρηνικών όπλων υψηλής απόδοσης στη δεκαετία του 1950 και στις αρχές του 1960. Το παγκόσμιο νέφος ^{137}Cs 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 ^{137}Cs . Το ατύχημα του Chernobyl τον Απρίλιο του 1986 είχε ως αποτέλεσμα μια πρόσθετη ατμοσφαιρική απόθεση ^{137}Cs σε ορισμένες περιοχές της Ευρώπης. Οι συγκεντρώσεις του ^{137}Cs στο έδαφος παρακολουθούνται από τις αρχές της δεκαετίας του 1950, δίνοντας έτσι τη δυνατότητα αρχικά μιας εκτίμησης της συνολικής διασποράς του ^{137}Cs [Garcia Agudo, 1998] στην ατμόσφαιρα και αργότερα, με βάση τα πειραματικά δεδομένα, την ανάπτυξη μοντέλου προσδιορισμού της εναπόθεσης ^{137}Cs σε παγκόσμιο επίπεδο [Walling and He, 2000]. Η ποσότητα ^{137}Cs που κατέπεσε στο βόρειο ημισφαίριο ήταν κατά πολύ μεγαλύτερη από ότι στο νότιο (Εικόνα 3.16), καθώς περισσότερες πυρηνικές δοκιμές διεξήχθησαν εκεί. 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 ^{137}Cs που εναποτέθηκε σε παγκόσμιο επίπεδο, το ^{137}Cs χρησιμοποιείται ως ραδιοϊχνηθέτης του ρυθμού καθίζησης – διάβρωσης στο έδαφος και ιζηματογένεσης. Είναι ο πιο ευρέως χρησιμοποιούμενος ιχνηθέτης στην έρευνα ραδιοχρονολόγησης, κυρίως λόγω της ταχείας και ισχυρής προσρόφησής του από τα λεπτόκοκκα σωματίδια του εδάφους, το μεσοπρόθεσμο χρόνο ημιζωής του ($t_{1/2}=30.2$ y), την ευκολία της μέτρησης με φασματοσκοπία-γ (στα 661.6 keV) και το σαφώς καθορισμένο πρότυπο εισόδου του στο περιβάλλον (πυρηνικές δοκιμές και ατύχημα Chernobyl).



Εικόνα 3.16: Πυκνότητα εναπόθεσης ^{137}Cs στο βόρειο και νότιο ημισφαίριο [UNSCEAR, 2000].

Το ^{137}Cs 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 κolloειδή μορφή, την άμεση δέσμευσή τους από απορρόφηση, της απόθεσης οργανικών αποβλήτων που τα έχουν συγκρατήσει και άλλες διαδικασίες, 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 κ.ά. Έχει διαπιστωθεί ότι η συγκέντρωση του ^{137}Cs αυξάνεται με τη μείωση του κοκκομετρικού μεγέθους και ιδιαίτερα σε λεπτόκοκκα ιζημάτων και υλικά με μεγάλη πυκνότητα.

Το πρότυπο εισόδου του ^{137}Cs στο περιβάλλον αντανακλάται στα προφίλ των θαλάσσιων ιζημάτων. Σε πυρήνες ιζήματος, μπορούν να γίνουν εμφανείς τρεις 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]. Συνήθως η συγκέντρωση ^{137}Cs στα ανώτερα στρώματα του προφίλ αντανάκλα την επίδραση των διεργασιών βιοανάδευσης σε συνδυασμό με την πιθανή εισροή νέου ^{137}Cs από απορροές έκπλυσης του ηπειρωτικού εδάφους ή σύγχρονων τοπικών εκπλύσεων (πυρηνικών αντιδραστήρων ή εργοστασίων επαναχρησιμοποίησης ραδιενεργών καυσίμων), ενώ σε άλλες περιπτώσεις, οι συγκεντρώσεις ^{137}Cs 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].

Η εμφάνιση των κορυφών του ^{137}Cs στον 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]:

$$v_i = \frac{z_i}{t_0 - t_i} \quad \text{Εξ.22}$$

Όπου t_0 είναι το έτος συλλογής του πυρήνα, t_i και z_i τα βάθη και η χρονολογία των κορυφών του ^{137}Cs λόγω της πρώτης εμφάνισης ($t_1=1954$), των πυρηνικών δοκιμών ($t_2=1963$) και του ατυχήματος του Chernobyl ($t_3=1986$) αντίστοιχα ενώ ο μέσος ρυθμός καθίζησης του πυρήνα δίνεται ως ο μέσος όρος των επιμέρους ρυθμών:

$$\bar{v} = \frac{\sum_i^n v_i}{n} \quad \text{Εξ.23}$$

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 4

ΑΝΑΛΥΣΕΙΣ ΚΑΙ ΑΠΟΤΕΛΕΣΜΑΤΑ

4.1 Πυκνότητα και κοκκομετρία δειγμάτων

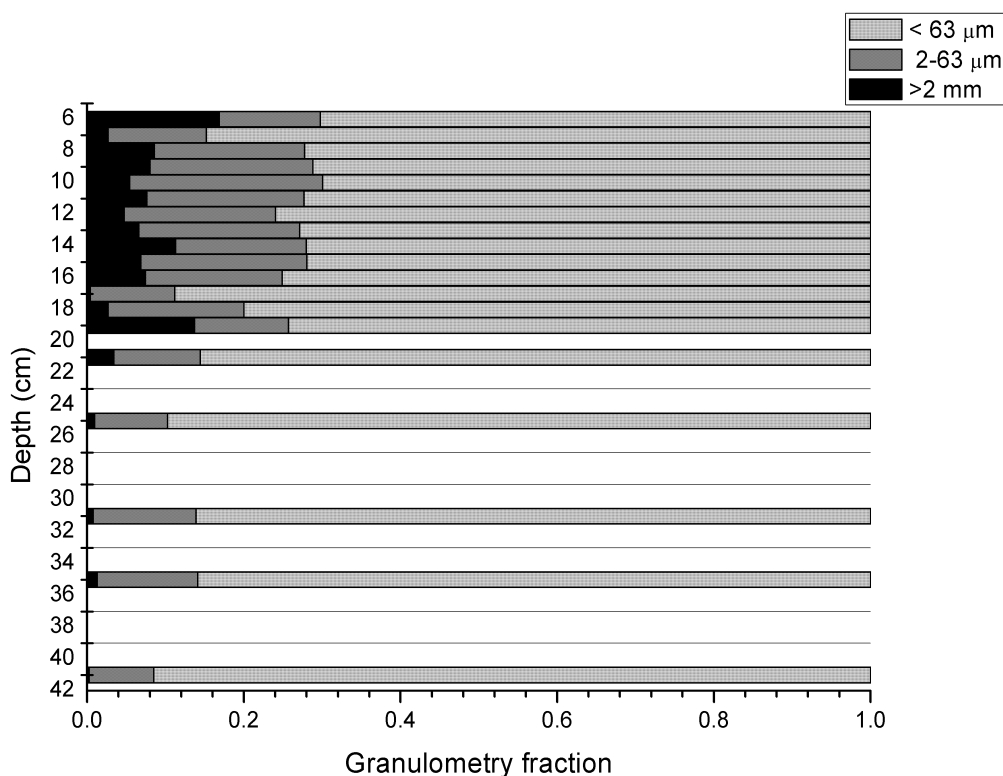
Σύμφωνα με τις διαδικασίες που έχουν περιγραφεί στο προηγούμενο κεφάλαιο όσον αφορά τις μετρήσεις της πυκνότητας και της κοκκομετρίας των δειγμάτων, τα αποτελέσματα περιέχονται στον παρακάτω πίνακα.

Δείγμα	Πυκνότητα (g cm ⁻³)	>2 mm (g) (Gravel)	2-63 μm (g) (Sand)	<63 μm (g) (Mud)
SD 5-6	0.98	4.142	3.157	17.25
SD 6-7	1.04	0.6115	2.872	16.58
SD 7-8	0.96	1.679	3.749	14.16
SD 8-9	0.69	0.8083	2.088	7.166
SD 9-10	0.75	0.5281	2.408	6.834
SD 10-11	0.77	0.7708	2.034	7.344
SD 11-12	0.68	0.4464	1.826	7.181
SD 12-13	0.69	0.6266	1.958	6.942
SD 13-14	0.65	1.1167	1.654	7.146
SD 14-15	0.74	0.6949	2.158	7.330
SD 15-16	0.65	0.7306	1.713	7.372
SD 16-17	0.79	0.0374	1.077	8.852
SD 17-18	0.73	0.242	1.563	7.214
SD 18-19	0.63	1.279	1.121	6.947
SD 20-21	0.56	0.6016	1.946	15.12
SD 24-25	0.65	0.2075	2.056	19.83
SD 30-31	0.66	0.1792	3.140	20.60
SD 34-35	0.59	0.3072	3.160	21.14
SD 40-41	0.63	0.0509	1.909	21.08

Πίνακας 4.1: Τιμές πυκνότητας και κοκκομετρίας για τα δείγματα.

Παρατηρείται ότι το ίζημα δεν είναι ομοιογενές καθώς υπάρχουν διακυμάνσεις στην πυκνότητά του ανά εκατοστό.

Η αναπαράσταση των ποσοστών κοκκομετρίας του ιζήματος για κάθε εκατοστό του παρουσιάζεται στην Εικόνα 4.1.



Εικόνα 4.1: Σχηματική αναπαράσταση της κοκκομετρίας των δειγμάτων για τις τρεις περιοχές.

Όπως φαίνεται, τα δείγματα είναι κυρίως λεπτόκοκκα αφού το μεγαλύτερο μέρος τους (~70%) είναι <63 μm.

4.2 Εκτίμηση ρυθμού ιζηματογένεσης

4.2.1 Ρυθμός ιζηματογένεσης ^{210}Pb

Το μοντέλο που χρησιμοποιήθηκε για τον προσδιορισμό του ρυθμού ιζηματογένεσης και ραδιοχρονολόγησης ονομάζεται μοντέλο σταθερής ροής-σταθερής ιζηματογένεσης (Constant Flux – Constant Sedimentation) και βασίζεται στην παρακάτω εξίσωση:

$$A(x) = A_0 e^{-\lambda \frac{x}{v}} \Rightarrow \ln A(x) = \ln A_0 - \frac{\lambda}{v} x \quad \text{Εξ.24}$$

Από τις μετρήσεις προσδιορίστηκαν οι συγκεντρώσεις ενεργότητας (σε Bq kg⁻¹ ξηρού δείγματος) του ^{210}Pb . Η τιμή της συγκέντρωσης ενεργότητας υπολογίζεται από τη σχέση:

$$A = f_{TCS} \cdot f_{ET} \cdot \frac{cps}{I_{\gamma} \cdot \epsilon \cdot m} \quad \text{Εξ.25}$$

Όπου, f_{TCS} : ο παράγοντας διόρθωσης φαινομένου πραγματικής συμπτωτικής άθροισης

f_{ET} : ο παράγοντας διόρθωσης φαινομένου ενδοαπορρόφησης.

cps: τα γεγονότα που καταγράφονται στη μονάδα του χρόνου (counts per second) στη φωτοκορυφή της εκπεμπόμενης ακτίνας-γ ενέργειας E.

I_γ : η ένταση της εκπεμπόμενης φωτοκορυφής.

ϵ : η απόλυτη απόδοση.

m: η μάζα του δείγματος σε kg.

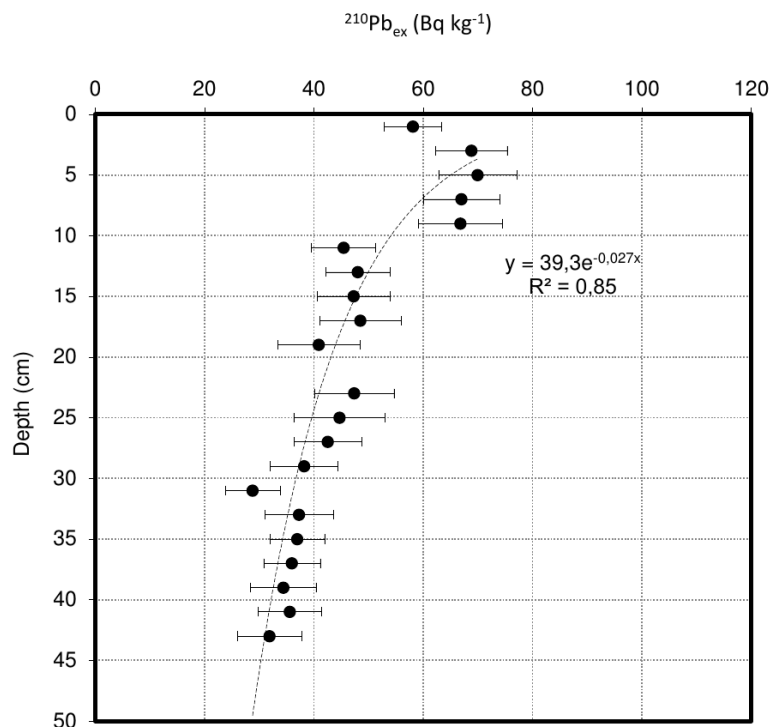
Για τον υπολογισμό της αβεβαιότητας της συγκέντρωσης ενεργότητας

$$\text{χρησιμοποιήθηκε η εξίσωση: } \delta A = \sqrt{\left(\frac{\delta cps}{cps}\right)^2 + \left(\frac{\delta \epsilon}{\epsilon}\right)^2 + \left(\frac{\delta m}{m}\right)^2} \quad \text{Εξ.26}$$

Οι τιμές του ^{210}Pb κυμαίνονταν από $70.0 \pm 7.2 \text{ Bq kg}^{-1}$ έως $28.8 \pm 5.0 \text{ Bq kg}^{-1}$ με διαρκώς μειούμενη ενεργότητα με το βάθος. Οι τιμές του ^{226}Ra κυμαίνονταν από $34.0 \pm 3.0 \text{ Bq kg}^{-1}$ έως $12.8 \pm 2.2 \text{ Bq kg}^{-1}$.

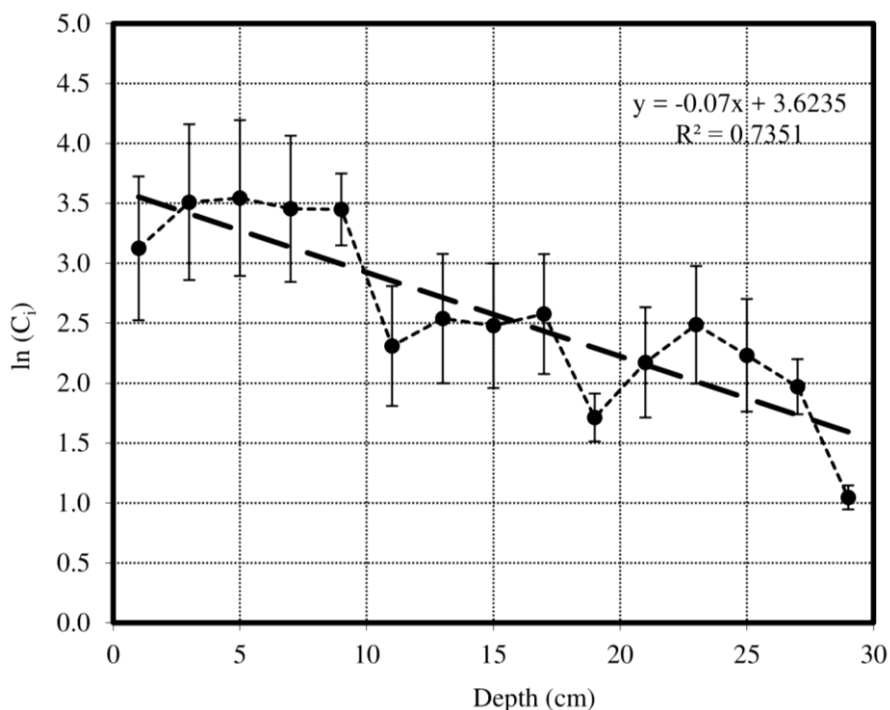
Από τη διαφορά της ενεργότητας του ^{210}Pb με το μητρικό ^{226}Ra , υπολογίστηκε το επιπλέον $^{210}\text{Pb}_{ex}$, με τιμές που κυμαίνονταν από $46.8 \pm 6.7 \text{ Bq kg}^{-1}$ στην επιφάνεια έως $11.8 \pm 5.8 \text{ Bq kg}^{-1}$ σε βάθος 43 cm, παρουσιάζοντας εκθετική μείωση.

Με βάση τις παραπάνω τιμές το κατακόρυφο προφίλ του $^{210}\text{Pb}_{ex}$ παρουσιάζεται στην Εικόνα 4.2.



Εικόνα 4.2: Κατακόρυφη διασπορά $^{210}\text{Pb}_{ex}$ του δείγματος.

Σύμφωνα με το προφίλ του $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, λογαριθμίζοντας τον οριζόντιο άξονα υπολογίζεται η κλίση της ευθείας $\ln A(x) = \ln A_0 - \frac{\lambda}{v} x$ η οποία είναι της μορφής $y=ax+b$ και από την κλίση υπολογίζεται ο ρυθμός ιζηματογένεσης.



Εικόνα 4.3: Διάγραμμα της ενεργότητας του $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ συναρτήσει του βάθους σε λογαριθμικό άξονα.

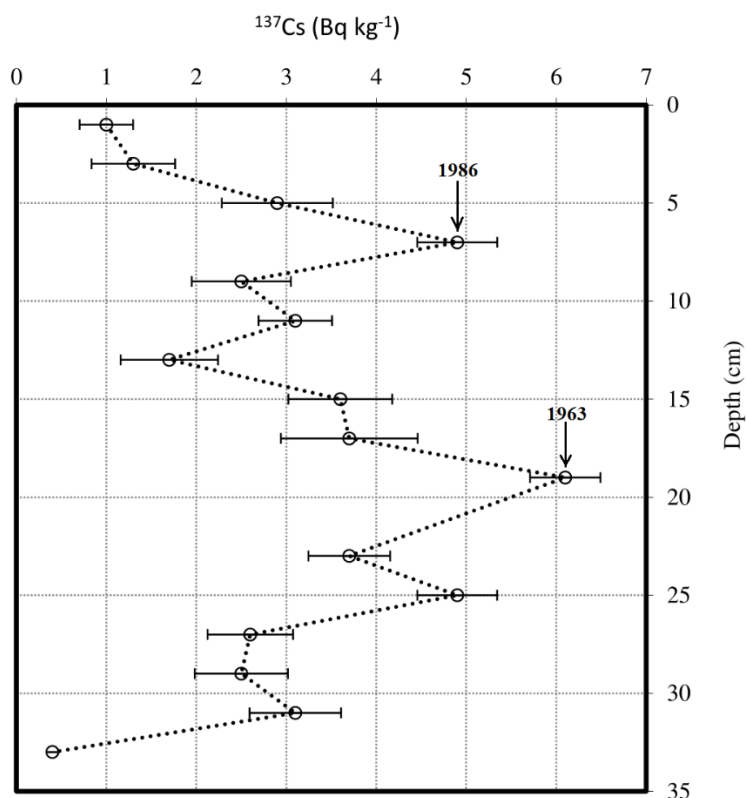
Από το παραπάνω διάγραμμα, η κλίση της ευθείας δίνεται $a = -0.07 \text{ cm}$. Γνωρίζοντας ότι η σταθερά διάσπασης του ^{210}Pb είναι $\lambda = 0.03114 \text{ y}^{-1}$, ο ρυθμός διάσπασης υπολογίζεται ως:

$$a = \frac{\lambda}{v} \Rightarrow v = \frac{\lambda}{a} \quad \text{Εξ.27}$$

και τελικά **SAR = $0.35 \pm 0.06 \text{ cm y}^{-1}$** .

4.2.2 Ρυθμός ιζηματογένεσης ^{137}Cs

Από την ανάλυση των δειγμάτων υπολογίστηκαν οι τιμές των συγκεντρώσεων ενεργότητας του ^{137}Cs . Αυτές κυμαίνονταν από $1.0 \pm 0.3 \text{ Bq kg}^{-1}$ έως $6.1 \pm 0.8 \text{ Bq kg}^{-1}$ με μέση τιμή 3.0 Bq kg^{-1} . Οι υψηλότερες τιμές καταγράφονται στα 7 cm με τιμή $4.9 \pm 0.6 \text{ Bq kg}^{-1}$ και στα 19 cm με τιμή $6.1 \pm 0.8 \text{ Bq kg}^{-1}$. Στο γράφημα που ακολουθεί (Εικόνα 4.3) παρουσιάζεται η κατακόρυφη κατανομή της συγκέντρωσης ενεργότητας του ^{137}Cs :



Εικόνα 4.4: Κατακόρυφο προφίλ ¹³⁷Cs του δείγματος.

Σύμφωνα με το μοντέλο ραδιοχρονολόγησης ¹³⁷Cs όπως περιγράφηκε στο 3^ο κεφάλαιο ο συντελεστής ιζηματογένεσης υπολογίζεται σε:

$$\text{SAR} = 0.30 \pm 0.09 \text{ cm y}^{-1}.$$

Επομένως, συνδυάζοντας όλες τις παραπάνω μετρήσεις προκύπτει ότι και οι δύο μέθοδοι βρίσκονται σε αρκετά καλή συμφωνία δίνοντας έναν εκτιμώμενο ρυθμό ιζηματογένεσης:

$$\text{SAR} = 0.32 \pm 0.09 \text{ cm y}^{-1}.$$

Η τιμή αυτή, και δεδομένου ότι το σημείο δειγματοληψίας βρίσκεται σε κεντρικό σημείο του λιμένα, θεωρείται αυξημένη γεγονός που επιβεβαιώνεται και με τη σύγκριση της δειγματοληψίας σε ημίκλειστο κόλπο όπως το ρήγμα της Ελίκης στον Κυπαρισσιακό κόλπο (0.09 cm y^{-1}) [Cundy and Stewart, 2004].

Όμως η υπολογισθείσα τιμή θεωρείται συγκρίσιμη με άλλες δειγματοληψίες σε κλειστούς κόλπους όπως ο κόλπος της Ελευσίνας (0.24 cm y^{-1}), ο Αμβρακικός κόλπος (0.55 cm y^{-1}) και ο Θερμαϊκός κόλπος (0.18 cm y^{-1}) [Ελευθερίου Γ., 2014].

4.3 Κατανομή συγκέντρωσης ενεργοτήτων στον πυρήνα

Στο σημείο αυτό παρατίθενται τα αποτελέσματα της ανάλυσης των ραδιονουκλιδίων.

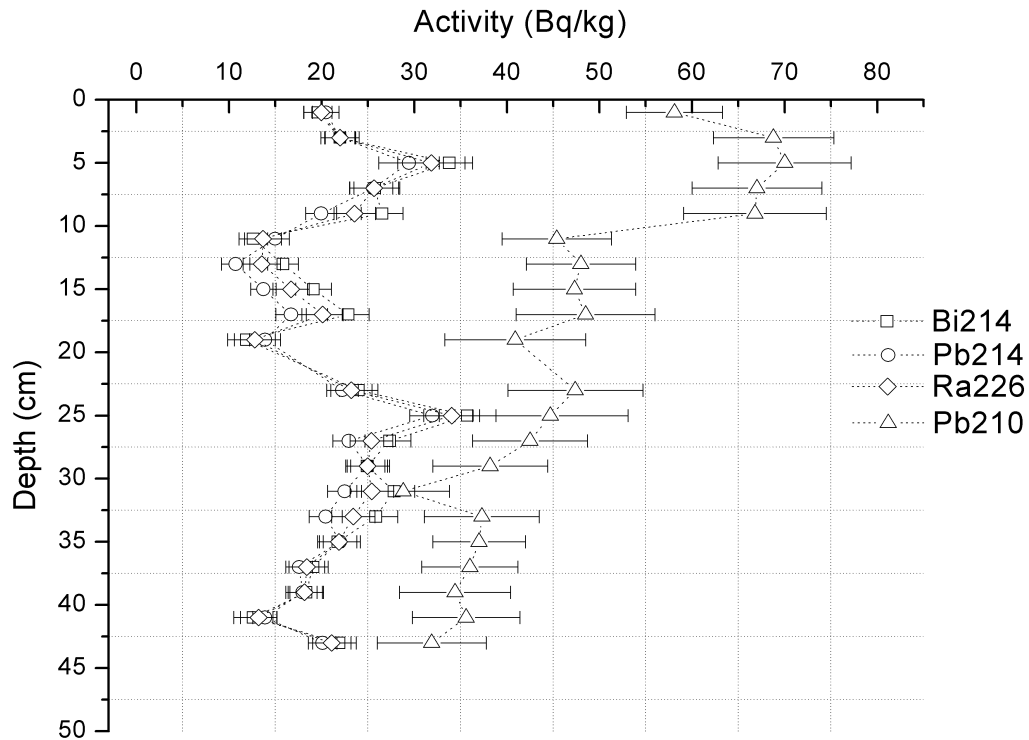
Σειρά ^{238}U

Στον πίνακα 4.3 δίνονται τα αποτελέσματα των συγκεντρώσεων ενεργότητας για τα θυγατρικά της σειράς του ^{238}U και απεικονίζονται στο γράφημα που ακολουθεί.

Βάθος (cm)	^{238}U		
	^{226}Ra (Bq kg ⁻¹)	^{214}Pb (Bq kg ⁻¹)	^{214}Bi (Bq kg ⁻¹)
1	20.0 ± 1.9	20.4 ± 1.4	19.6 ± 1.5
3	22.0 ± 2.1	22.0 ± 1.6	22.0 ± 1.7
5	31.8 ± 3.6	29.4 ± 3.3	33.8 ± 2.5
7	25.7 ± 2.7	25.6 ± 2.1	25.7 ± 2.7
9	23.6 ± 2.2	19.9 ± 1.7	26.5 ± 2.3
11	13.7 ± 2.0	15.0 ± 1.5	12.6 ± 1.5
13	13.5 ± 2.0	10.7 ± 1.5	15.8 ± 1.6
15	16.7 ± 2.0	13.7 ± 1.4	19.1 ± 1.9
17	20.1 ± 2.2	16.7 ± 1.6	22.9 ± 2.2
19	12.8 ± 2.2	13.9 ± 1.7	11.9 ± 2.0
23	23.2 ± 2.2	22.2 ± 1.7	24.0 ± 2.1
25	34.0 ± 3.0	31.9 ± 2.4	35.8 ± 3.1
27	25.4 ± 2.3	22.9 ± 1.7	27.3 ± 2.3
29	25.0 ± 2.4	25.0 ± 1.9	24.9 ± 2.2
31	25.4 ± 2.4	22.5 ± 1.8	27.8 ± 2.2
33	23.4 ± 2.3	20.4 ± 1.8	25.8 ± 2.4
35	21.9 ± 2.3	22.0 ± 1.8	21.8 ± 2.0
37	18.4 ± 1.9	17.6 ± 1.4	19.1 ± 1.6
39	18.2 ± 2.1	17.9 ± 1.6	18.3 ± 1.7
41	13.2 ± 2.0	13.9 ± 1.3	12.6 ± 2.1
43	21.1 ± 2.1	20.1 ± 1.5	21.9 ± 1.9

Πίνακας 4.2: Τα αποτελέσματα των συγκεντρώσεων ενεργότητας από την ανάλυση των φωτοκορυφών των θυγατρικών ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{238}U .

Η αναπαράσταση των αποτελεσμάτων της συγκέντρωσης ενεργότητας των θυγατρικών ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{238}U παρουσιάζεται στην Εικόνα 4.5.



Εικόνα 4.5: Κατακόρυφη κατανομή της συγκέντρωσης ενεργότητας των θυγατρικών ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{238}U .

Ως τιμή του ^{226}Ra έχει θεωρηθεί ο σταθμισμένος μέσος όρος των ^{214}Pb και ^{214}Bi λαμβάνοντας σαν συντελεστή βαρύτητας την ένταση της φωτοκορυφής I_γ . Από το γράφημα και τον Πίνακα 4.3 φαίνεται ότι οι τιμές της ενεργότητας του ^{226}Ra κυμαίνονται από 13 Bq kg^{-1} έως 34 Bq kg^{-1} .

Σειρά ^{232}Th

Στον Πίνακα 4.4 δίνονται τα αποτελέσματα των συγκεντρώσεων ενεργότητας για τα θυγατρικά ραδιονουκλίδια της σειράς του ^{232}Th και απεικονίζονται στο γράφημα που ακολουθεί.

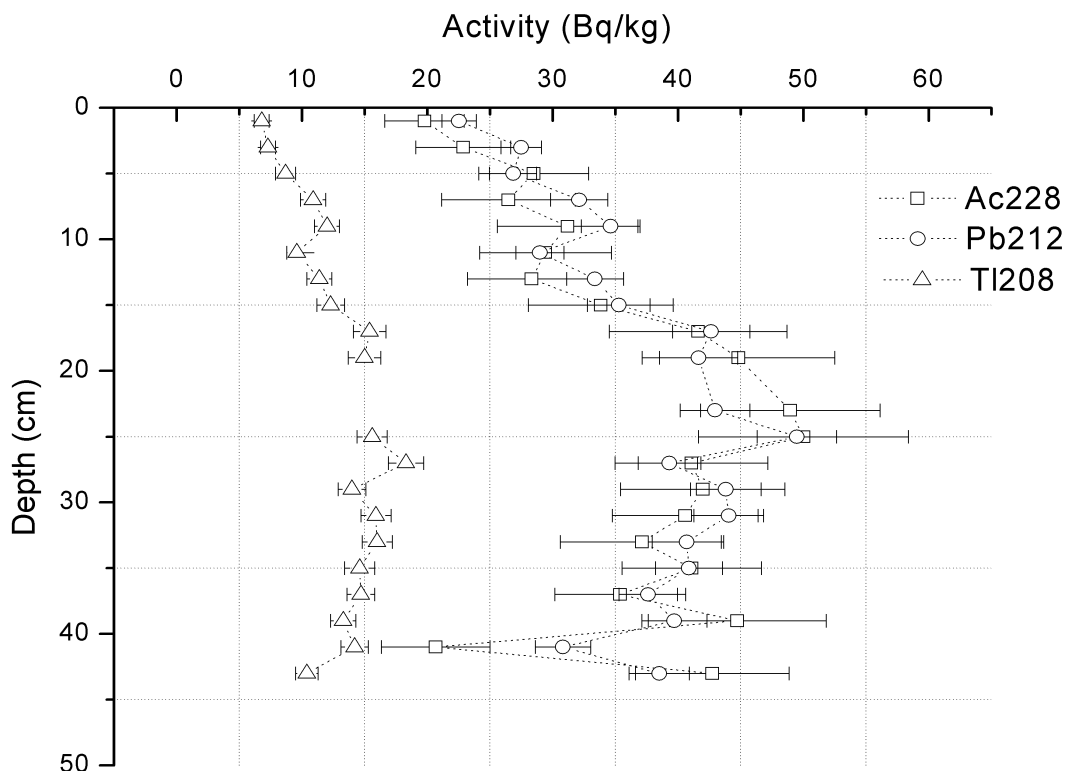
Βάθος (cm)	^{232}Th		
	^{228}Ac (Bq kg^{-1})	^{208}Tl (Bq kg^{-1})	^{212}Pb (Bq kg^{-1})
1	19.8 ± 3.2	6.8 ± 0.6	22.2 ± 1.5
3	22.9 ± 3.8	8.9 ± 0.7	25.3 ± 1.7
5	28.5 ± 4.4	8.7 ± 0.8	28.5 ± 1.9
7	26.5 ± 5.3	10.9 ± 1.0	34.5 ± 2.3
9	31.2 ± 5.6	12.0 ± 1.0	32.7 ± 2.2
11	29.4 ± 5.3	9.6 ± 0.8	18.8 ± 1.6

Πίνακας 4.3 (α): Τα αποτελέσματα των συγκεντρώσεων ενεργότητας από την ανάλυση των φωτοκορυφών των θυγατρικών ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{232}Th .

^{232}Th			
Βάθος (cm)	^{228}Ac (Bq kg ⁻¹)	^{208}Tl (Bq kg ⁻¹)	^{212}Pb (Bq kg ⁻¹)
13	30.7 ± 5.1	11.4 ± 1.0	40.2 ± 2.7
15	33.8 ± 5.8	12.3 ± 1.1	32.8 ± 2.5
17	41.6 ± 7.1	15.4 ± 1.3	46.3 ± 3.1
19	44.8 ± 7.7	15.0 ± 1.3	54.5 ± 3.6
23	48.9 ± 7.2	15.6 ± 1.2	48.1 ± 3.1
25	50.0 ± 8.4	18.3 ± 1.4	48.2 ± 3.2
27	41.1 ± 6.1	14.0 ± 1.1	38.5 ± 2.5
29	42.0 ± 6.5	15.9 ± 1.2	39.5 ± 2.6
31	40.6 ± 5.8	16.0 ± 1.2	43.0 ± 2.8
33	37.1 ± 6.5	14.6 ± 1.2	40.2 ± 2.7
35	41.1 ± 5.6	14.7 ± 1.1	40.0 ± 2.6
37	35.4 ± 5.2	13.3 ± 1.0	36.9 ± 2.4
39	44.7 ± 7.1	14.2 ± 1.1	43.4 ± 2.8
41	20.7 ± 4.3	10.4 ± 0.9	31.0 ± 2.1
43	42.7 ± 6.1	13.6 ± 1.0	41.1 ± 2.7

Πίνακας 4.3 (β): Τα αποτελέσματα των συγκεντρώσεων ενεργότητας από την ανάλυση των φωτοκορυφών των θυγατρικών ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{232}Th .

Η αναπαράσταση των αποτελεσμάτων των συγκεντρώσεων ενεργότητας των θυγατρικών ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{232}Th παρουσιάζεται στην Εικόνα 4.6.



Εικόνα 4.6: Κατακόρυφη κατανομή της συγκέντρωσης ενεργότητας των θυγατρικών ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{232}Th .

Παρατηρώντας την Εικόνα 4.6 φαίνεται ότι το ^{228}Ac και το ^{212}Pb βρίσκονται σε ισορροπία με παρόμοιες τιμές συγκέντρωσης ενεργότητας. Το ^{208}Tl έχει την

αναμενόμενη κατανομή και συγκεντρώσεις ενεργότητας με τιμές από $6.8 \pm 0.6 \text{ Bq kg}^{-1}$ έως $18.3 \pm 1.4 \text{ Bq kg}^{-1}$. Οι τιμές αυτές είναι υποτριπλάσιες των ^{228}Ac και ^{212}Pb το οποίο αναμενόμενο καθώς από τη ραδιενεργό σειρά του ^{232}Th (Εικόνα 2.1) το ^{212}Bi διασπάται με 36% πιθανότητα σε ^{208}Tl .

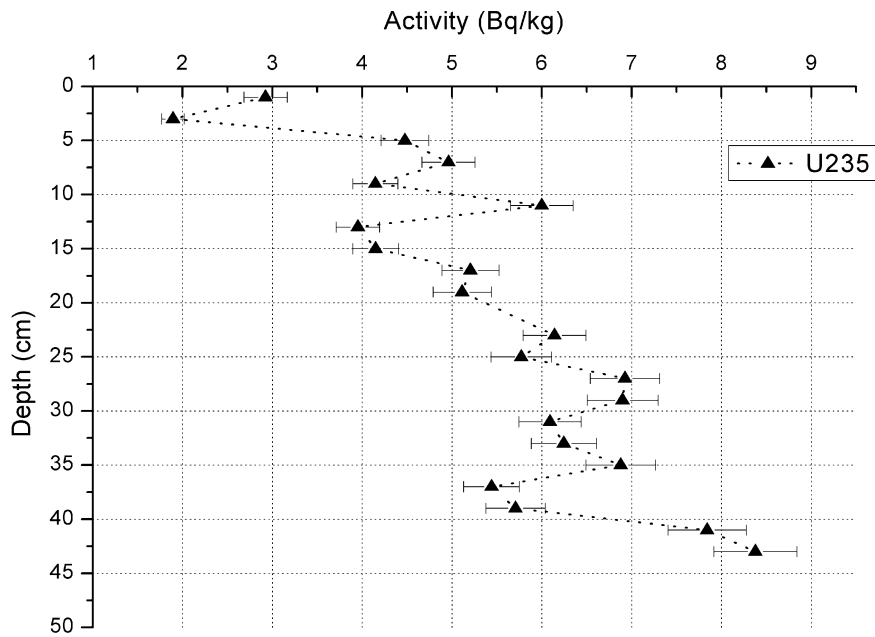
Ραδιονουκλίδιο ^{235}U

Στον πίνακα 4.5 παρουσιάζονται τα αποτελέσματα των συγκεντρώσεων ενεργότητας για το ^{235}U καθώς και μια σχηματική αναπαράσταση αυτών στο ακόλουθο σχήμα.

Βάθος (cm)	^{235}U (Bq kg^{-1})
1	2.9 ± 0.2
3	1.9 ± 0.1
5	4.5 ± 0.3
7	5.0 ± 0.3
9	4.1 ± 0.3
11	6.0 ± 0.3
13	4.0 ± 0.2
15	4.2 ± 0.3
17	5.2 ± 0.3
19	5.1 ± 0.3
23	6.1 ± 0.4
25	5.8 ± 0.3
27	6.9 ± 0.4
29	6.9 ± 0.4
31	6.1 ± 0.3
33	6.2 ± 0.4
35	6.9 ± 0.4
37	5.4 ± 0.3
39	5.7 ± 0.3
41	7.8 ± 0.5
43	8.4 ± 0.5

Πίνακας 4.4: Τα αποτελέσματα των συγκεντρώσεων ενεργότητας από την ανάλυση των φωτοκορυφών του ^{235}U .

Η αναπαράσταση των αποτελεσμάτων των συγκεντρώσεων ενεργότητας του ^{235}U παρουσιάζεται στην Εικόνα 4.7.



Εικόνα 4.7: Κατακόρυφη κατανομή της συγκέντρωσης ενεργότητας του ^{235}U .

Όπως φαίνεται και από το σχήμα η συγκέντρωση ενεργότητας του ^{235}U για τα διάφορα βάθη κυμαίνεται από 2 Bq kg^{-1} έως 8 Bq kg^{-1} .

Ραδιονουκλίδιο ^{40}K

Στον Πίνακα 4.6 παρουσιάζονται τα αποτελέσματα των συγκεντρώσεων ενεργότητας για το ^{40}K και απεικονίζονται στο γράφημα (Εικόνα 4.8) παρακάτω.

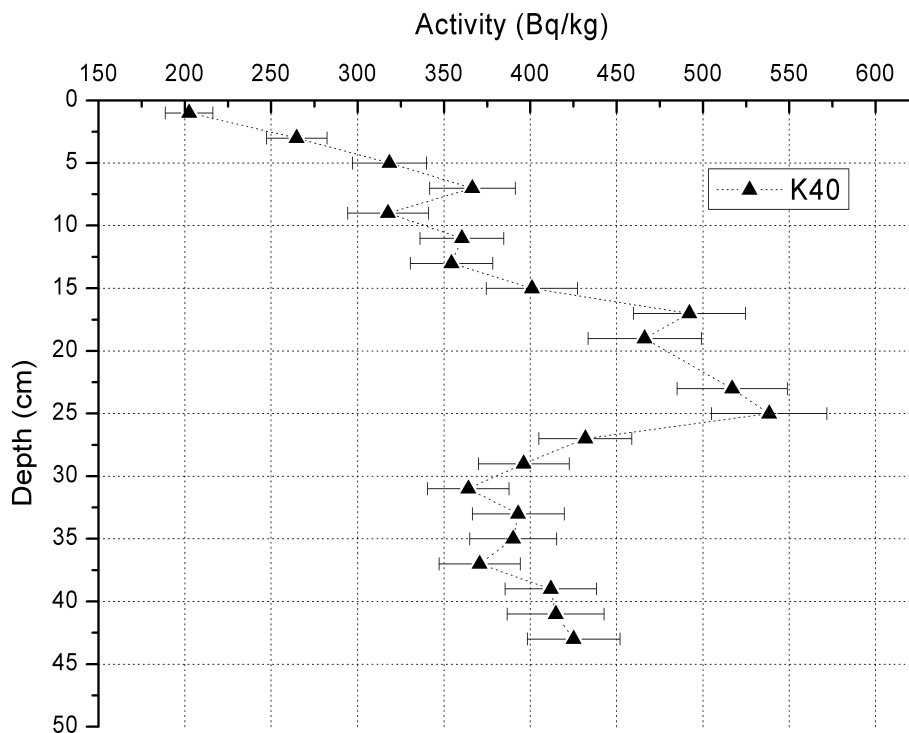
Βάθος (cm)	^{40}K (Bq kg^{-1})
1	202.5 ± 13.8
3	264.8 ± 17.5
5	318.5 ± 21.5
7	366.5 ± 24.8
9	317.7 ± 23.5
11	360.4 ± 24.3
13	354.4 ± 23.8
15	401.1 ± 26.5
17	492.1 ± 32.5
19	466.2 ± 32.8

Πίνακας 4.5 (α): Τα αποτελέσματα των συγκεντρώσεων ενεργότητας από την ανάλυση των φωτοκορυφών του ^{40}K .

23	516.9 ± 31.9
25	538.3 ± 33.4
27	431.9 ± 26.9
29	396.2 ± 26.3
31	364.1 ± 23.5
33	393.0 ± 26.6
35	390.1 ± 25.1
37	370.7 ± 23.5
39	411.9 ± 26.5
41	414.7 ± 28.0
43	425.2 ± 26.8

Πίνακας 4.5 (β): Τα αποτελέσματα των συγκεντρώσεων ενεργότητας απο την ανάλυση των φωτοκορυφών του ^{40}K .

Η αναπαράσταση των αποτελεσμάτων της συγκέντρωσης ενεργότητας του ^{40}K παρουσιάζεται στην Εικόνα 4.8.



Εικόνα 4.8: Κατακόρυφη κατανομή της συγκέντρωσης ενεργότητας του ^{40}K .

Όπως φαίνεται και από το γράφημα οι τιμές της συγκέντρωσης ενεργότητας του ^{40}K κυμαίνονται από 203 Bq kg^{-1} έως 538 Bq kg^{-1} .

Στον κόλπο της Σούδας δεν υπάρχουν δημοσιευμένα δεδομένα μέχρι σήμερα για τις συγκεντρώσεις ενεργότητας φυσικής ραδιενέργειας. Στον Πίνακα 4.7 παρουσιάζονται οι μέγιστες και οι ελάχιστες τιμές των συγκεντρώσεων ενεργότητας για τα ραδιονουκλίδια που μελετήθηκαν στην παρούσα εργασία καθώς και δεδομένα από μελέτες στην Ελλάδα και στον κόσμο που επηρεάζονται από ανθρωπογενείς δραστηριότητες. Μέχρι στιγμής, δεν έχουν καθιερωθεί διεθνή επίπεδα συγκεντρώσεων ραδιονουκλιδίων τα οποία δηλώνουν το βαθμό επικινδυνότητας κάθε περιοχής, οπότε πραγματοποιήθηκε μία σύγκριση των τιμών της παρούσας μελέτης με τιμές αναφοράς από μετρήσεις σε παγκόσμια κλίμακα.

Περιοχή		Σειρά ²³⁸ U (Bq kg ⁻¹)	Σειρά ²³² Th (Bq kg ⁻¹)	²²⁶ Ra (Bq kg ⁻¹)	⁴⁰ K (Bq kg ⁻¹)
Παράκτια Λαυρεωτικής ¹	Min	<1.9	3	<1.9	75
	Max	16	18	19	375
Περιοχή Λαυρεωτικής ^{2,3}	Min	30	15	15	300
	Max	45	35	35	600
Στρατώνι ⁴	Min	19	22	19	419
	Max	101	33	97	696
Θερμαϊκός Κόλπος ⁵	Min	-	19	26	350
	Max	-	60	68	542
Ελλάδα ⁶	Min	1	1	1	12
	Max	240	190	240	1570
Παγκόσμιος μέσος ⁶	Min	16	11	17	140
	Max	110	64	60	850

Πίνακας 4.6: Συγκεντρώσεις ενεργότητας των ραδιονουκλιδίων στην Ελλάδα και τον κόσμο (1: [Μιχαλοπούλου-Πετροπούλου Β., 2014], 2: [Anagnostakis et al., 1996], 3: [Anagnostakis et al., 2002], 4: [Παππά Φ., 2014], 5: [Ελευθερίου Γ., 2014], 6: [UNSCEAR, 2000])

Συγκρίνοντας τις τιμές συγκέντρωσης ενεργότητας των ραδιονουκλιδίων της παρούσας εργασίας με άλλες δειγματοληψίες όπως για παράδειγμα την ευρύτερη περιοχή της Λαυρεωτικής, οι τιμές που υπολογίστηκαν για τη σειρά του ²³⁸U είναι 2 φορές μεγαλύτερες από την Παράκτια της Λαυρεωτικής και συγκρίσιμες με την Περιοχή της Λαυρεωτικής, για τη σειρά του ²³²Th είναι 3 φορές μεγαλύτερες από την Παράκτια της Λαυρεωτικής και 1 φορά μεγαλύτερες από την Περιοχή της Λαυρεωτικής, για το ²²⁶Ra είναι 2 φορές μεγαλύτερες από την Παράκτια της Λαυρεωτικής και συγκρίσιμες με την Περιοχή της Λαυρεωτικής και για το ⁴⁰K είναι 1 φορά μεγαλύτερες από την Παράκτια της Λαυρεωτικής και συγκρίσιμες με την Περιοχή της Λαυρεωτικής.

Σε σχέση με άλλες περιοχές στην Ελλάδα και στον κόσμο που επηρεάζονται από ανθρώπινες δραστηριότητες [Ελευθερίου Γ., 2014; Παππά Φ., 2014; IAEA, 2005] στον κόλπο της Σούδας παρατηρούνται χαμηλότερες συγκεντρώσεις ενεργότητας.

Από τη μελέτη σε όλη την Ελλάδα [UNSCEAR, 2000] παρατηρείται ότι στον κόλπο της Σούδας, η συγκέντρωση ενεργότητας των ραδιονουκλιδίων βρίσκεται μέσα στα όρια για τη χώρα και μάλιστα βρίσκονται στο χαμηλό εύρος των τιμών αυτών. Επίσης, συγκρίνοντας με τον παγκόσμιο μέσο [UNSCEAR, 2000] παρατηρείται ότι οι

συγκεντρώσεις ενεργότητας όλων των ραδιονουκλιδίων ανήκουν εντός του διαστήματος των τιμών.

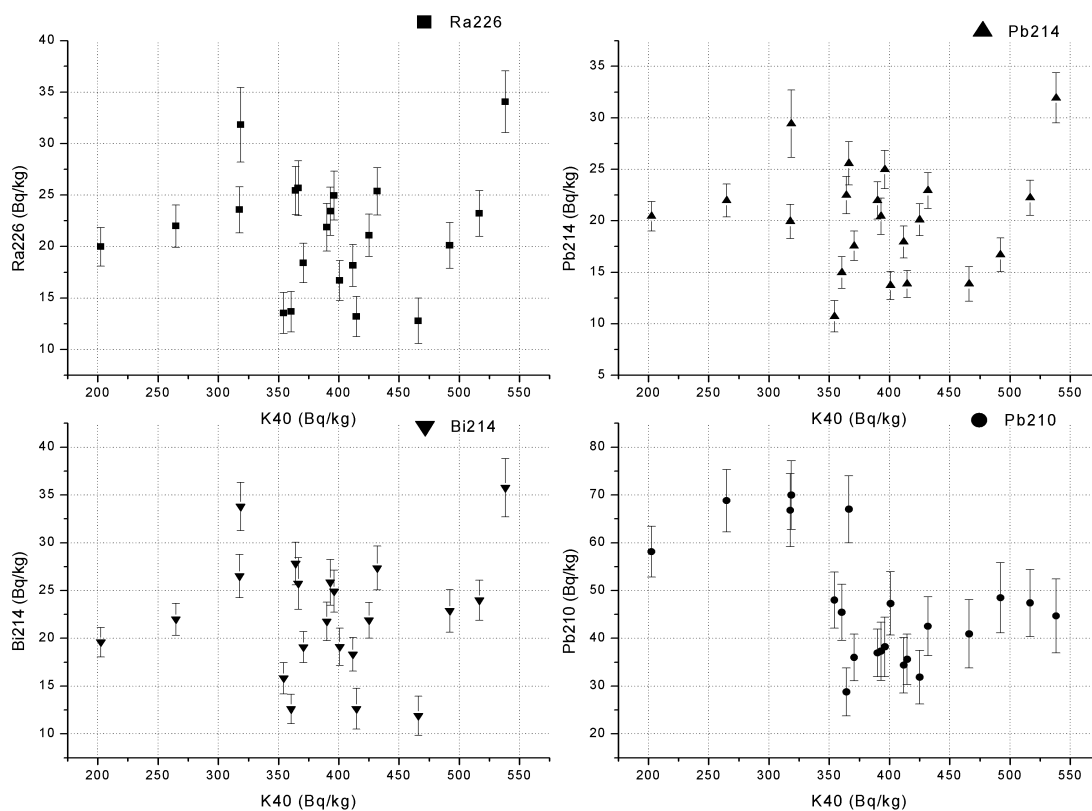
Ακολουθώντας, από τα γραφήματα των κατακόρυφων κατανομών της συγκέντρωσης ενεργότητας παρατηρείται ότι στα 20-25 cm όλα τα ραδιονουκλίδια εμφανίζουν τοπικό μέγιστο. Αυτό σημαίνει ότι σε αυτό το κομμάτι του πυρήνα, και σε συσχέτιση με την κοκκομετρία των δειγμάτων, τα δείγματα είναι πολύ λεπτόκοκκα και με μικρή πυκνότητα με συνέπεια να υπάρχει μεγαλύτερη προσκόλληση των ραδιονουκλιδίων.

4.4 Συσχέτιση των αποτελεσμάτων συγκεντρώσεων ενεργότητας

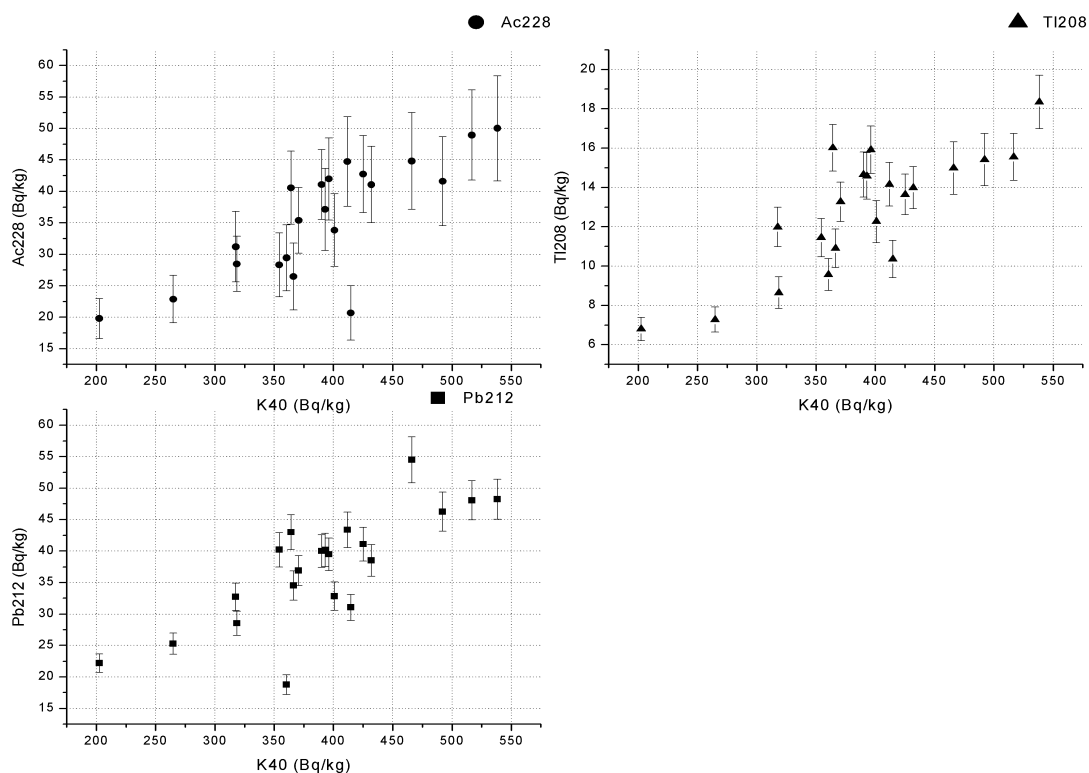
4.4.1 Συσχέτιση μεταξύ ραδιονουκλιδίων

Στο σημείο αυτό παρουσιάζονται τα αποτελέσματα των συγκεντρώσεων ενεργότητας των ραδιονουκλιδίων του πυρήνα με τρόπο τέτοιο ώστε να εκτιμηθεί πιθανή συσχέτιση μεταξύ τους. Η συσχέτιση αυτή γίνεται χρησιμοποιώντας ως βάση το ^{40}K αφού αποτελεί φυσικό ραδιοϊσότοπο και παρέχει ικανοποιητική στατιστική.

Οι αναπαραστάσεις της συσχέτισης συγκεντρώσεων ενεργότητας των ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{238}U , του ^{232}Th με το ^{40}K παρουσιάζονται στις Εικόνες 4.9 και 4.10.

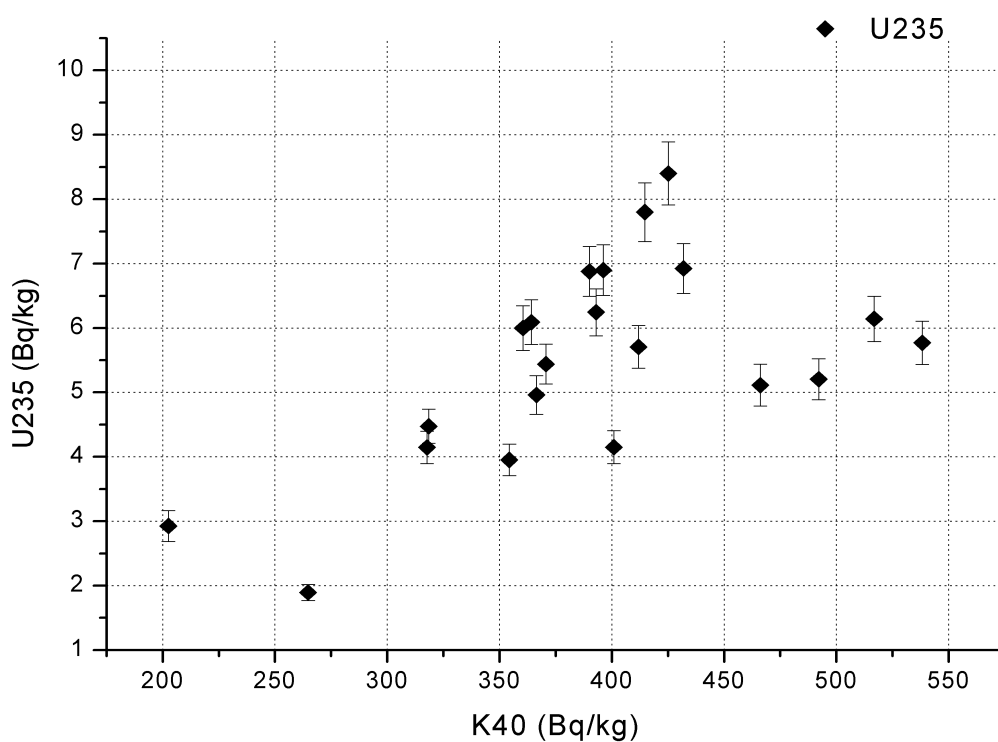


Εικόνα 4.9: Συσχέτιση συγκεντρώσεων ενεργότητας των ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{238}U με το ^{40}K .



Εικόνα 4.10: Συσχέτιση συγκεντρώσεων ενεργότητας των ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{232}Th με το ^{40}K .

Η αναπαράσταση της συσχέτισης μεταξύ του ^{235}U και του ^{40}K δίνεται στο γράφημα (Εικόνα 4.11):



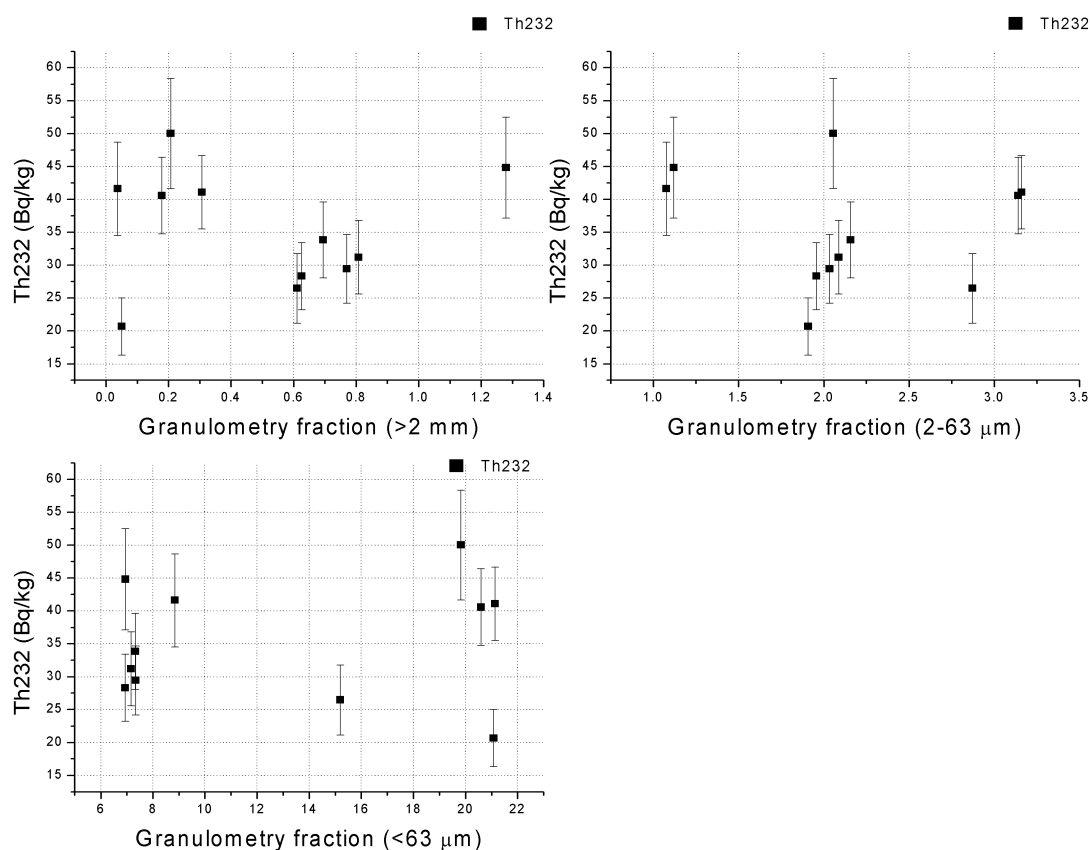
Εικόνα 4.11: Συσχέτιση συγκεντρώσεων ενεργότητας του ^{235}U με το ^{40}K .

Από τη συσχέτιση των αποτελεσμάτων των συγκεντρώσεων ενεργοτήτων παρατηρείται μια τάση γραμμικής συσχέτισης μεταξύ του ^{40}K και των ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{232}Th ($R=0.90$) όπως έχει παρατηρηθεί και σε παλαιότερη μελέτη σε ίζημα της λίμνης Butrint στην Αλβανία [Tsabaris et al., 2007].

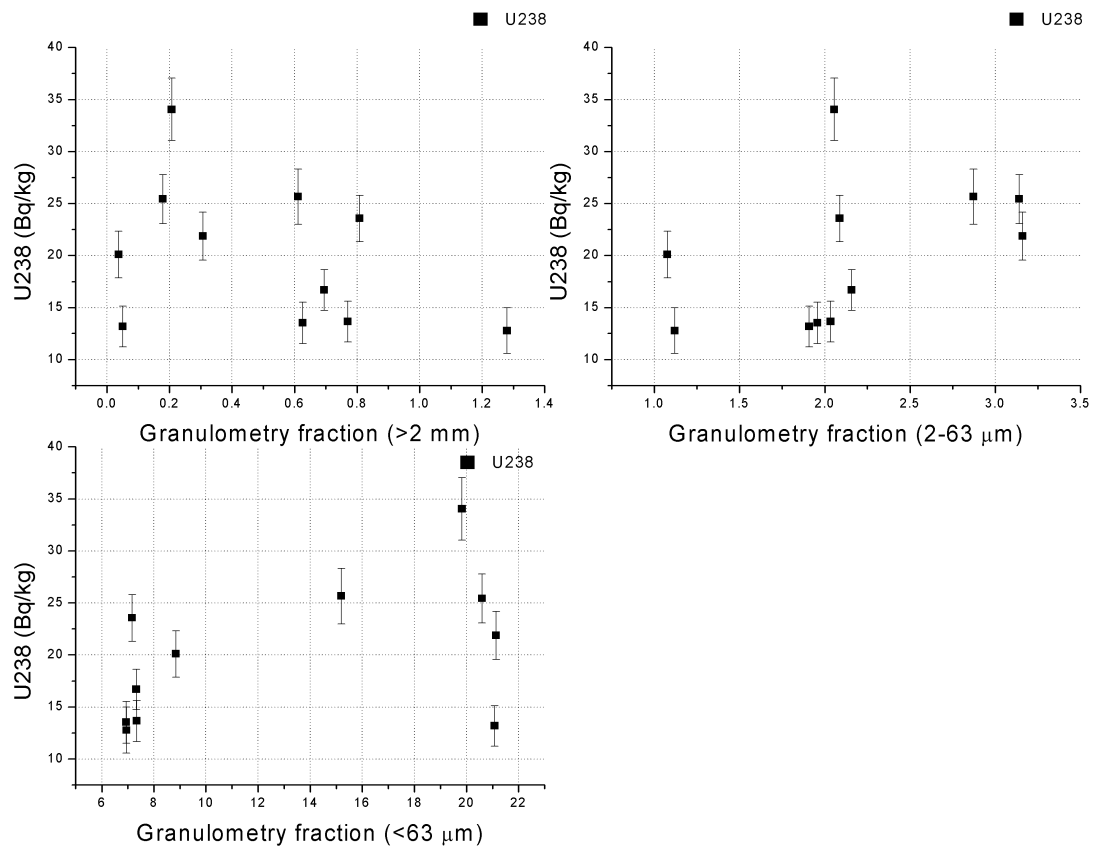
Δεν υπάρχει όμως καμία συσχέτιση μεταξύ των ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{238}U και του ραδιονουκλιδίου ^{235}U σε σχέση με το ^{40}K καθώς υπάρχουν μεγάλες διακυμάνσεις και ακανόνιστη κατανομή στα γραφήματα (Εικόνα 4.9 και 4.11).

4.4.2 Συσχέτιση των ραδιονουκλιδίων με την κοκκομετρία του ιζήματος

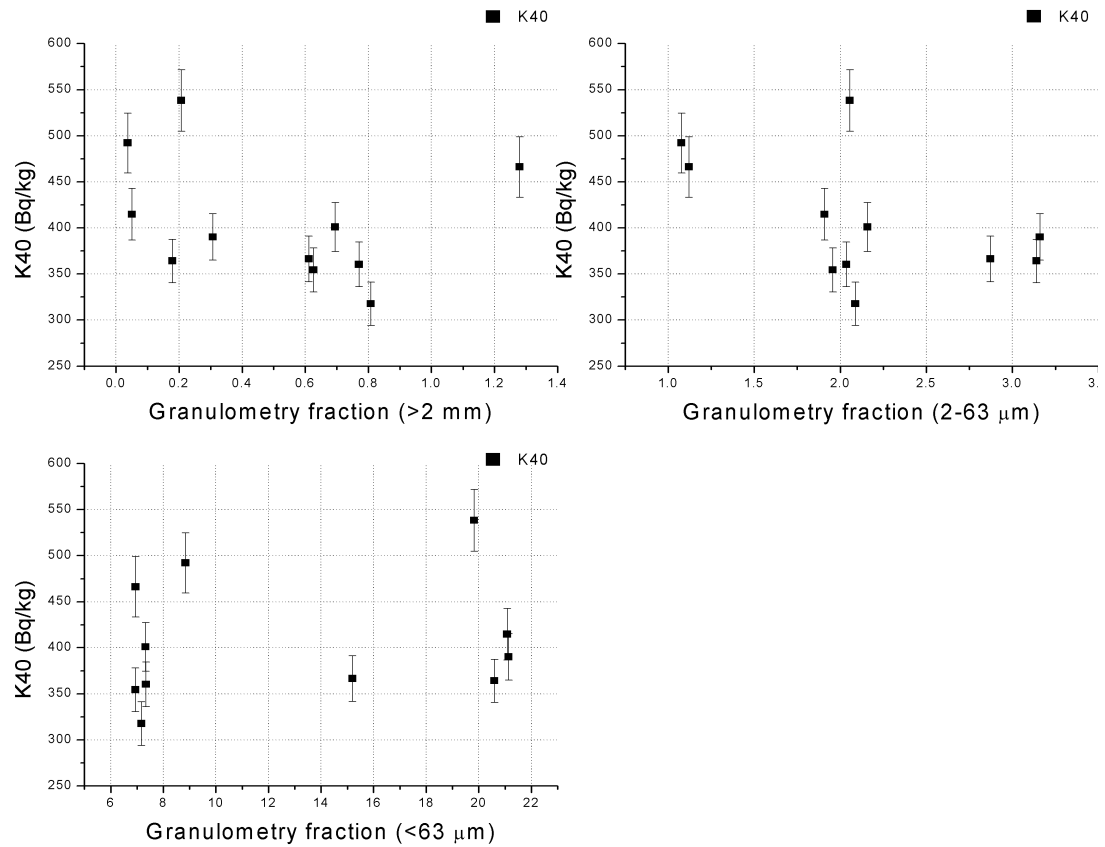
Έχοντας την παράμετρο της κοκκομετρίας για το ίζημα και τις συγκεντρώσεις ενεργότητας των ραδιονουκλιδίων, γίνεται μια συσχέτιση μεταξύ των δύο και τα αποτελέσματα παρουσιάζονται στο γραφήματα που ακολουθούν.



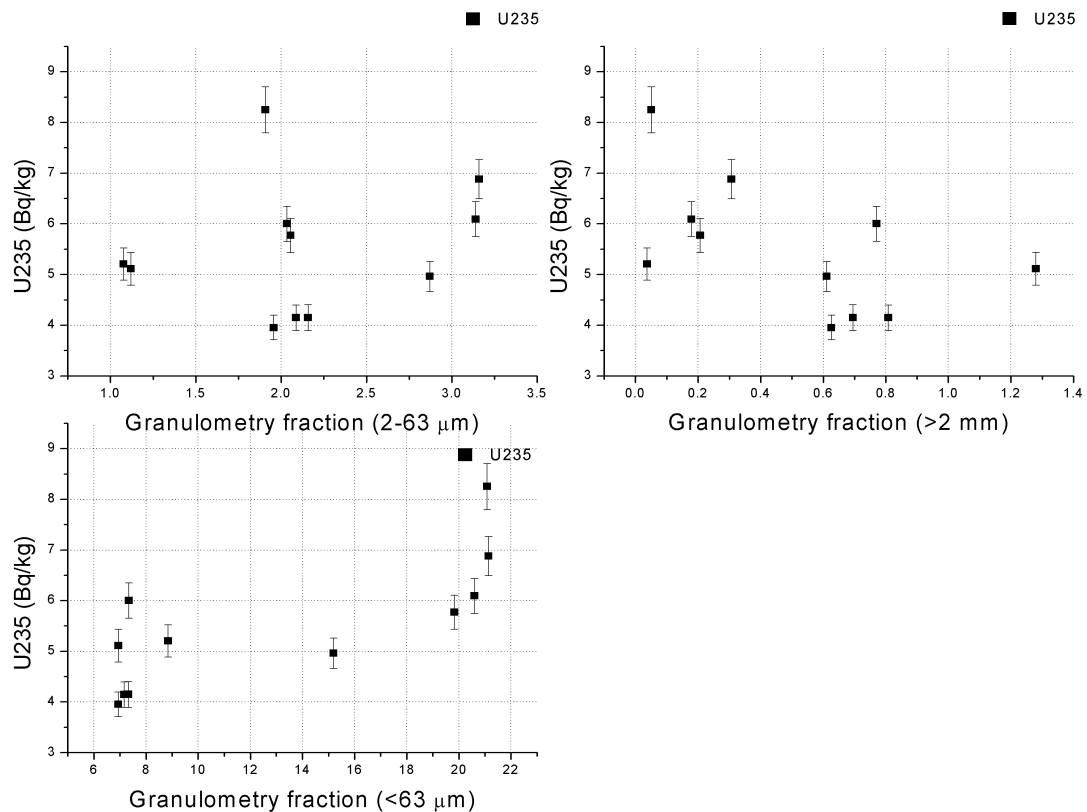
Εικόνα 4.12: Συσχέτιση κοκκομετρίας και των ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{232}Th .



Εικόνα 4.13: Συσχέτιση κοκκομετρίας και των ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{238}U .



Εικόνα 4.14: Συσχέτιση κοκκομετρίας και του ^{40}K .

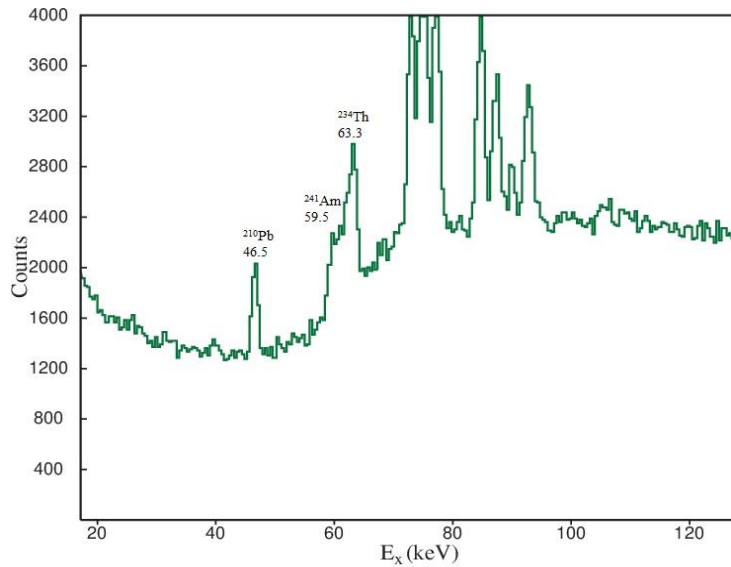


Εικόνα 4.15: Συσχέτιση κοκκομετρίας και του ^{235}U .

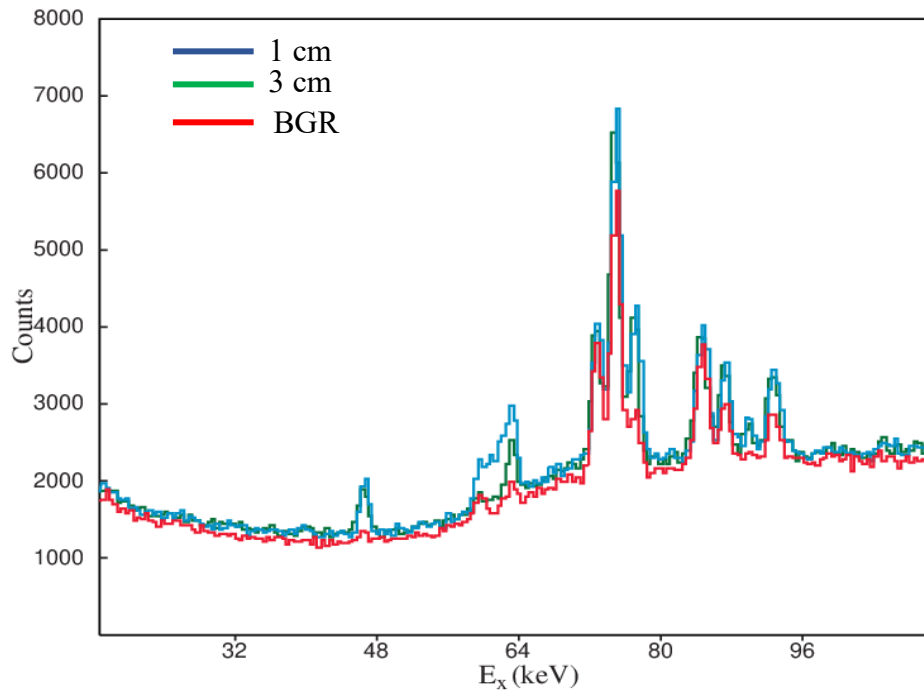
Από τις συσχετίσεις της κοκκομετρίας με τις συγκεντρώσεις ενεργότητας παρατηρείται ότι στην κλάση της ιλύος (mud, <63 μm) υπάρχει μια θετική συσχέτιση κυρίως για το ^{235}U , και λιγότερο για τα υπόλοιπα ραδιονουκλίδια. Στις άλλες δύο κλάσεις δεν παρατηρείται κάποια σχέση μεταξύ της κοκκομετρίας και της συγκέντρωσης ενεργότητας.

4.5 Ενδείξεις τεχνητής ραδιενέργειας

Στο σημείο αυτό παρουσιάζεται ένα εύρημα της ανάλυσης των μετρήσεων το οποίο έχει μεγάλο ενδιαφέρον. Γίνεται εστίαση στο επιφανειακό δείγμα αφού μόνο εκεί παρατηρήθηκε και υποδεικνύει την ύπαρξη του ανθρωπογενούς ραδιοϊσοτόπου ^{241}Am . Το ^{241}Am εκπέμπει ακτινοβολία – γ στα 59.5 keV η οποία εμφανίζεται στις δύο επόμενες εικόνες:



Εικόνα 4.16: Φάσμα του επιφανειακού δείγματος όπου φαίνονται οι κορυφές του ²¹⁰Pb, του ²⁴¹Am και του ²³⁴Th.



Εικόνα 4.17: Φάσματα των τεσσάρων πρώτων εκατοστών καθώς και του υποβάθρου μετρημένα για 24 h.

Παρατηρώντας την Εικόνα 4.17 φαίνεται πως στο αμέσως επόμενο εκατοστό του ιζήματος το ²⁴¹Am εξαφανίζεται. Από τις μετρήσεις, υπολογίστηκε η συγκέντρωση της ενεργότητάς του στα $7.3 \pm 0.7 \text{ Bq kg}^{-1}$. Αυτό σημαίνει ότι υπάρχει μια επιβάρυνση του υδάτινου περιβάλλοντος σε εκείνο το σημείο.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 5

ΣΥΜΠΕΡΑΣΜΑΤΑ

Από την προτεινόμενη μεθοδολογία που χρησιμοποιήθηκε για την εκπόνηση της παρούσας εργασίας και συνοψίζοντας τα ερευνητικά αποτελέσματα προκύπτουν τα παρακάτω κύρια συμπεράσματα:

- Από τις μετρήσεις κοκκομετρίας, τα δείγματα στο μεγαλύτερο μέρος τους (70%) είναι λεπτόκοκκα και συγκεκριμένα ανήκουν στην κλάση της ιλύος (mud).
- Τα επίπεδα συγκεντρώσεων ενεργότητας των ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{238}U , της σειράς του ^{232}Th , του ^{235}U αλλά και του ^{40}K είναι εν γένει εντός των πλαισίων αναφοράς όπως προκύπτουν από την UNSCEAR και άλλες δειγματοληψίες.
- Εξετάζοντας την κατακόρυφη διασπορά του ^{210}Pb παρατηρήθηκαν διακυμάνσεις, με απόκλιση από την αναμενόμενη κατανομή, στις τιμές του. Αυτό μπορεί να αποδοθεί σε έντονη ανάδευση και επαναιώρηση του ιζήματος το οποίο είναι λογικό διότι η περιοχή είναι λιμάνι με έντονη κινητικότητα.
- Τα επίπεδα συγκεντρώσεων ενεργότητας του ^{137}Cs βρέθηκαν να είναι χαμηλά (1 έως 4 Bq kg⁻¹) σε σχέση με άλλες περιοχές της Ελλάδας. Οι μέγιστες τιμές που παρουσιάζονται στα 7 cm (4.9 Bq kg⁻¹) και στα 19 cm (6.1 Bq kg⁻¹) αντιστοιχούν στο ατύχημα του Chernobyl το 1986 και στις πυρηνικές δοκιμές του 1963.
- Παρατηρήθηκε αρκετά καλή συμφωνία μεταξύ της μεθόδου ραδιοχρονολόγησης με ^{137}Cs και της μεθόδου ραδιοχρονολόγησης με ^{210}Pb όπως αποδεικνύεται από τις τιμές τους 0.30 cm y⁻¹ και 0.35 cm y⁻¹ αντίστοιχα.
- Ο εκτιμώμενος ρυθμός ιζηματογένεσης (0.32 cm y⁻¹) είναι αναμενόμενος για την περιοχή καθώς σε λιμάνια και παράκτιες ζώνες η εναπόθεση ιζήματος είναι μεγαλύτερη.
- Από τη συσχέτιση των αποτελεσμάτων των συγκεντρώσεων ενεργοτήτων φαίνεται να υπάρχει μια τάση γραμμικής συσχέτισης μεταξύ του ^{40}K και των ραδιονουκλιδίων της σειράς του ^{232}Th . Δε συμβαίνει το ίδιο όμως με τα υπόλοιπα ραδιονουκλίδια.
- Από τη συσχέτιση των αποτελεσμάτων των συγκεντρώσεων ενεργοτήτων με την κοκκομετρία του ιζήματος, στην κλάση της ιλύος (mud, <63 μm) υπήρξε μια θετική συσχέτιση κυρίως για το ^{235}U και λιγότερο για τα υπόλοιπα ραδιονουκλίδια ενώ στις υπόλοιπες δύο δε φάνηκε να υπάρχει κάποια σχέση μεταξύ τους.

Από τις πρώτες εκτιμήσεις της ραδιολογικής κατάστασης του κόλπου, η εύρεση του ανθρωπογενούς ραδιοϊσοτόπου ^{241}Am καθώς και η έντονη ανθρώπινη δραστηριότητα του λιμένα από τις βιομηχανικές εγκαταστάσεις στην εγγύς περιοχή και από τη στρατιωτική βάση αναδεικνύουν την αναγκαιότητα μιας ενδελεχούς χαρτογράφησης της συγκέντρωσης των ραδιονουκλιδίων σε ιζήματα από όλο τον κόλπο. Επιπλέον, ενδιαφέρον θα αποτελούσε η μελέτη μετάλλων σε μεγαλύτερους πυρήνες σε συνάρτηση με τα ραδιοϊσότοπα καθώς και η επιβεβαίωση των μετρήσεων του ^{241}Am

με διαφορετικές μεθόδους όπως η φασματοσκοπία ακτίνων – X (XRF) και η φασματοσκοπία-α.

ΒΙΒΛΙΟΓΡΑΦΙΑ

Anagnostakis M.J., Hinis E.P., Simopoulos S.E., 2002. Uranium-238 and its daughter products in Greek surface soils. NRE VII, Proceedings of International Symposium May 20-24, Rhodes, Greece.

Anagnostakis, M.J., Hinis, E.P., Simopoulos, S.E., Angelopoulos, M.G., 1996. Natural radioactivity mapping of Greece surface soils. *Environment International* 22 Supl. 1, S3-S8.

Brenner, M., Peplow, A.J., Schelske, C.L., 1994. Disequilibrium between ^{226}Ra and supported ^{210}Pb in a sediment core from a shallow Florida lake. *Limnology and Oceanography* 39, 1222-1227.

Cundy, A.B. and Croudace, I.W., 1995. Physical and chemical associations of radionuclides and trace metals in estuarine sediments: an example from Poole harbor, Southern England. *Journal of Environmental Radioactivity* 29, 191-211.

Cundy, A.B. and Stewart, I.S., 2004. Dating recent colluvial sequences with ^{210}Pb and ^{137}Cs along an active fault scarp, the Eliki Fault, Gulf of Corinth, Greece. *Tectonophysics* 386, 147-156.

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.

Ehmann, W.D., and Vance, D.E., 1991. *Radiochemistry and Nuclear Methods of Analysis*. John Wiley and Sons Inc., New York.

Ελευθερίου, Γ., 2014. Χωροχρονική διασπορά ραδιονουκλιδίων στο υδάτινο περιβάλλον. Διδακτορική διατριβή. Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο, Αθήνα.

Garcia-Agudo, E., 1998. Global distribution of ^{137}Cs inputs for soil erosion and sedimentation surveys. In: *Use of ^{137}Cs in the Study of Soil Erosion and Sedimentation*. IAEA TECDOC-1028, IAEA, Vienna, 117-121.

HCMR, 2014. Hellenic Centre for Marine Research.

International Atomic Energy Agency (IAEA). Collection and preparation of bottom sediment samples for analysis of radionuclides and trace elements. IAEA-TECDOC-1360. Vienna: 2003.

International Atomic Energy Agency (IAEA). Naturally occurring radioactive materials (NORM IV). IAEA-TECDOC-1472. Proceeding of an international conference. Szczyrk, Poland: 2005.

International Atomic Energy Agency (IAEA). The International Chernobyl Project: An overview, assessment of radiological consequences and evaluation of protective measures. Vienna: 1991.

Kalfas, C.A., 2013. A modern nuclear spectroscopy software package. *Adv. Nucl. Phys. Proceedings of 20th Hellenic Conference on Nuclear Physics, Athens, Greece, vol. 159*.

- 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.
- Koide M., Soutar, A., Goldberg, E.D., 1972. Marine geochronology with Pb-210. *Earth and Planetary Science Letters* 14, 442.
- 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.
- Robbins 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.
- 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.
- 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.
- 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., Masque, P., Ani-Rigolta, 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., Masque, P., Ani-Rigolta, I., Merino, J., Frigani, 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.
- 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.
- Tsabarlis 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 4, 445-453.
- 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.

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, UNSCEAR, New York.

Vidmar, T., 2005. EFFTRAN—a Monte Carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods A* 550, 605-608.

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.

Walling, D.E., and He., Q., 2000. The global distribution of bomb-derived ¹³⁷Cs reference inventories. Final Report on IAEA Technical Contacts No. 10361/R0-R1. University of Exeter, Exeter.

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.

Wentworth, C.K., 1922. A scale of grade and class terms for clastic sediments, *Journal of Geology* 30, 377-392.

Ασημακόπουλος, Π.Α., 2005. Εισαγωγή στην Πυρηνική Φυσική, 2η Έκδοση. Εκδόσεις Πανεπιστημίου Ιωαννίνων, Ιωάννινα.

Παππά, Φ., 2014. Μελέτη και διασπορά ραδιο-τοξικών μετάλλων από ανθρωπογενείς δραστηριότητες σε παράκτια ζώνη της Χαλκιδικής. Μεταπτυχιακή διπλωματική εργασία. Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο, Αθήνα.