



ΕΘΝΙΚΟ ΜΕΤΣΟΒΙΟ ΠΟΛΥΤΕΧΝΕΙΟ  
ΤΜΗΜΑ ΜΗΧΑΝΟΛΟΓΩΝ ΜΗΧΑΝΙΚΩΝ

ΕΡΓΑΣΤΗΡΙΟ ΠΥΡΗΝΙΚΗΣ ΤΕΧΝΟΛΟΓΙΑΣ

Ανάπτυξη Μεθοδολογίας για την Ανίχνευση  
Ραδιενεργών Ισοτόπων σε Δείγματα Ξηρής  
Ατμοσφαιρικής Απόθεσης

ΔΙΠΛΩΜΑΤΙΚΗ ΕΡΓΑΣΙΑ

Καρύδης Κ. Ευάγγελος

Επίβλεψη: Καθηγητής Μ.Ι. Αναγνωστάκης

Συνεργασία: Ι.Κ. Μήτσιος

Αθήνα, Σεπτέμβριος, 2021

# Πρόλογος

Η παρούσα διπλωματική εργασία εκπονήθηκε στο Εργαστήριο Πυρηνικής Τεχνολογίας του Εθνικού Μετσόβιου Πολυτεχνείου (ΕΠΤ-ΕΜΠ), στα πλαίσια των μαθημάτων "Πυρηνικά Μετρητικά Συστήματα", "Αλληλεπιδράσεις Ακτινοβολιών και Ύλης" και "Ραδιενέργεια και Περιβάλλον" του 8ου, του 7ου και του 9ου εξαμήνου αντίστοιχα. Το θέμα της εργασίας επιλέχθηκε με βάση το ενδιαφέρον που υπήρξε από το ΕΠΤ-ΕΜΠ για τη συστηματική και μεθοδική εγκαθίδρυση μίας πειραματικής μεθόδου για τη συλλογή και επεξεργασία δειγμάτων ξηρής απόθεσης, ιδιαίτερα αφού στο ΕΠΤ-ΕΜΠ έχει ήδη καθιερωθεί μία αντίστοιχη πειραματική μέθοδος για τα δείγματα υγρής απόθεσης.

*Θα ήθελα να εκφράσω τις ειλικρινείς μου ευχαριστίες στον Καθηγητή κ. Μάριο Αναγνωστάκη για την έμπνευση και το ζήλο που μου μεταλαμπάδευσε με τη διδασκαλία του, για την εμπιστοσύνη που μου έδειξε με την ανάθεση του συγκεκριμένου θέματος, για τον προσωπικό χρόνο που διέθεσε κατά την εκπόνηση της Διπλωματικής Εργασίας και για τη στήριξη, που μου παρείχε για τη συνέχεια των ακαδημαϊκών μου σπουδών σε Μεταπτυχιακό Επίπεδο.*

*Επιπλέον, θα ήθελα να ευχαριστήσω ιδιαίτερω τον υποψήφιο διδάκτορα κ. Ιάσωνα Μήτσιο για τη συνεχή βοήθεια, υπομονή και στήριξη, που μου προσέφερε κατά τη διάρκεια εκπόνησης της Διπλωματικής Εργασίας. Η συνεργασία μας ήταν άψογη, ενώ οι παρατηρήσεις και η εμπειρία του ήταν καταλυτικές για την ολοκλήρωση της εργασίας.*

*Τέλος, θα ήταν παράλειψη να μην ευχαριστήσω το υπόλοιπο προσωπικό του ΕΠΤ-ΕΜΠ για το φιλικό περιβάλλον και το κλίμα συνεργασίας που έχει δημιουργήσει.*

*Ευάγγελος Κ. Καρύδης, Αθήνα, 2021*

# Περίληψη

Η ραδιενέργεια στην ατμόσφαιρα είναι ένα ζήτημα, το οποίο έχει απασχολήσει και απασχολεί γενικότερα τους ερευνητές και το Εργαστήριο Πυρηνικής Τεχνολογίας του Εθνικού Μετσόβιου Πολυτεχνείου (ΕΠΤ-ΕΜΠ). Ο όρος ραδιενέργεια στην ατμόσφαιρα αναφέρεται κυρίως στη ραδιενέργεια, η οποία εντοπίζεται στα ατμοσφαιρικό αεροζόλ.

Η σύνδεση ραδιενεργών ισοτόπων με το αεροζόλ είναι τόσο σημαντικό αντικείμενο μελέτης, επειδή μπορεί να χρησιμοποιηθεί ως μέσο για τη μελέτη της φυσικής της ατμόσφαιρας, αλλά και για λόγους ασφάλειας της δημόσιας υγείας σε περίπτωση πυρηνικού ατυχήματος, αφού ο ατμοσφαιρικός αέρας έρχεται σε άμεση επαφή με τον πληθυσμό. Για τους λόγους αυτούς, έχουν μελετηθεί όλες οι διεργασίες του αεροζόλ με ιδιαίτερο ενδιαφέρον να παρουσιάζουν οι διεργασίες απόθεσής του στο έδαφος, με τις οποίες αποτίθεται και η ραδιενέργεια, η οποία βρίσκεται συνδεδεμένη με αυτό.

Στην παρούσα, λοιπόν, διπλωματική εργασία, παρουσιάστηκαν τα βασικά στοιχεία για τη ραδιενέργεια στην ατμόσφαιρα και συγκεκριμένα, η προέλευσή της, τα βασικά ραδιενεργά ισοτόπα τα οποία εντοπίζονται σε αυτή, οι βασικές εφαρμογές τους ως ιχνηλάτες ατμοσφαιρικών διεργασιών και ο τρόπος με τον οποίο συνδέονται με το αεροζόλ. Στη συνέχεια, αναλύθηκαν οι διεργασίες της εναπόθεσης των σωματιδίων στην επιφάνεια της Γης και τέλος αναλύθηκε η μέθοδος της φασματοσκοπικής ανάλυσης, η οποία είναι ευρέως χρησιμοποιούμενη μέθοδος για την ανάλυση των δειγμάτων ατμοσφαιρικής ραδιενέργειας.

Τελικό αποτέλεσμα της εργασίας είναι ο σχεδιασμός μίας τυποποιημένης και μεθοδικής πειραματικής διαδικασίας για τη συλλογή και επεξεργασία δειγμάτων ξηρής απόθεσης στο ΕΠΤ-ΕΜΠ. Για να σχεδιαστεί η διαδικασία αυτή έγινε μία βιβλιογραφική ανασκόπηση παρόμοιων ερευνών, η οποία παρουσιάζεται και αυτή στην παρούσα διπλωματική εργασία. Τελικά, η μέθοδος, η οποία σχεδιάστηκε περιλαμβάνει την έκθεση συλλεκτών σε ανοικτό χώρο, τη συλλογή του δείγματος από αυτούς με απιονισμένο νερό και διάλυμα οξέος, και ανάδευση του τελικού διαλύματος με ρητίνη κατιόντων η οποία αποξηραίνεται και αναλύεται με γ-φασματοσκοπική ανάλυση.

# Abstract

Atmospheric radioactivity is an issue that has concerned and continues to concern researchers in general as well as the Nuclear Engineering Department of the National Technical University of Athens (NED-NTUA). The term radioactivity in the atmosphere refers mainly to radioactivity, which is found in atmospheric aerosols.

The binding of radioactive isotopes to the aerosol is such an important subject of study, not only because it can be used as a means of studying for atmospherical physical processes, but also for reasons of public health safety in the event of a nuclear accident, since atmospheric air comes in direct contact with the population. For these reasons, all aerosol processes have been studied with particular interest in presenting the processes of deposition on the ground, because with them radioactivity is deposited too.

In the present thesis, the basic elements for radioactivity in the atmosphere are presented, and in particular, its origin, the basic radioactive isotopes found in it, their basic applications as atmospheric process tracers and the way in which they are associated with aerosol. Then, the processes of deposition of particles on the Earth's surface are analyzed and finally the method of  $\gamma$ -spectroscopic analysis is analyzed, which is a widely used technique for the analysis of atmospheric radioactivity samples.

The final result of this work is the design of a standardized and methodical experimental procedure for the collection and processing of dry deposition samples in the NED-NTUA. In order to design this process, a bibliographic review of similar researches was done, which is also presented in the present thesis. Finally, the method designed involves exposing the collectors to the open space, collecting the sample from them with deionized water and acid solution, and stirring the final solution with a cation resin which is dried and analyzed by  $\gamma$ -spectroscopic analysis.

# Περιεχόμενα

<b>1</b>	<b>Εισαγωγή</b>	<b>11</b>
<b>2</b>	<b>Ραδιενέργεια στην ατμόσφαιρα</b>	<b>14</b>
2.1	Εισαγωγή . . . . .	14
2.2	Ραδιενεργά ισότοπα από φυσικές ραδιενεργές σειρές . . . . .	15
2.2.1	Γενικά για τις φυσικές ραδιενεργές σειρές . . . . .	15
2.2.2	Τα ισότοπα του Ραδονίου . . . . .	16
2.2.3	Τα θυγατρικά του Ραδονίου . . . . .	19
2.3	Ραδιενεργά ισότοπα κοσμικής προέλευσης . . . . .	21
2.3.1	Γενική περιγραφή της κοσμικής ακτινοβολίας . . . . .	21
2.3.2	Το Βηρύλλιο-7 . . . . .	28
2.3.3	Το Βηρύλλιο-10 . . . . .	30
2.3.4	Το Νάτριο-22 . . . . .	30
2.4	Ανθρωπογενή-τεχνητά ραδιενεργά ισότοπα . . . . .	34
2.4.1	Τρόποι απελευθέρωσης ραδιενεργών ισωτόπων από ανθρώπινες διεργασίες . . . . .	34
2.4.2	Το Ιώδιο-131 . . . . .	37
2.4.3	Το Καίσιιο-137 . . . . .	39
2.4.4	Το Στρόντιο-90 . . . . .	41
2.5	Άλλα φυσικά ραδιενεργά ισότοπα . . . . .	43
2.5.1	Το Κάλιο-40 . . . . .	43
<b>3</b>	<b>Ραδιενέργεια στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα και διεργασίες απόθεσης</b>	<b>45</b>
3.1	Γενικά στοιχεία για το αερόλυμα . . . . .	45
3.1.1	Κατανομή του ατμοσφαιρικού αερολύματος . . . . .	45
3.1.2	Σχηματισμός του ατμοσφαιρικού αερολύματος . . . . .	47

3.1.3	Δειγματοληψία αερολύματος . . . . .	49
3.2	Ραδιενέργεια και ατμοσφαιρικό αερόλυμα . . . . .	52
3.2.1	Ο ιονισμός του ατμοσφαιρικού αέρα . . . . .	52
3.2.2	Σύνδεση των ραδιενεργών ισotόπων με το αερόλυμα . . . . .	55
3.2.3	Φασματοσκοπική ανάλυση δειγμάτων αεροζόλ . . . . .	57
3.3	Απόθεση του ατμοσφαιρικού αερολύματος στο έδαφος . . . . .	59
3.3.1	Εισαγωγή . . . . .	59
3.3.2	Η Διεργασία της ξηρής απόθεσης . . . . .	59
3.3.3	Η Διεργασία της υγρής απόθεσης . . . . .	62
3.3.4	Η Διεργασία της επαναϊώρησης . . . . .	63
3.4	Δειγματοληψία και ανάλυση δειγμάτων ξηρής απόθεσης . . . . .	64
3.4.1	Εισαγωγή . . . . .	64
3.4.2	Γεωμετρία του συλλέκτη . . . . .	65
3.4.3	Τοποθεσία της δειγματοληψίας . . . . .	71
3.4.4	Συλλογή και επεξεργασία του δείγματος . . . . .	73
3.4.5	Αποτελέσματα και σχολιασμός . . . . .	75
<b>4</b>	<b>Η μέθοδος της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης</b>	<b>78</b>
4.1	Γενικά περί ανιχνευτικών διατάξεων . . . . .	78
4.1.1	Αρχή της ανίχνευσης . . . . .	78
4.1.2	Ο Ανιχνευτής . . . . .	79
4.1.3	Μετρητική Διάταξη . . . . .	81
4.2	Ανιχνευτές ημιαγωγού . . . . .	84
4.2.1	Εισαγωγή . . . . .	84
4.2.2	Αλληλεπίδραση Ακτινοβολίας-γ και Ημιαγωγού . . . . .	84
4.2.3	Δομή ανιχνευτών ημιαγωγού . . . . .	85
4.3	Παραγωγή και επεξεργασία του γ-Φάσματος . . . . .	90
4.3.1	Εισαγωγή . . . . .	90
4.3.2	Το γ-Φάσμα και η στατιστική της μέτρησης . . . . .	90
4.3.3	Απόδοση του ανιχνευτή . . . . .	93
4.3.4	Βαθμονόμηση του Ανιχνευτή . . . . .	95
4.4	Η γ-φασματοσκοπική ανάλυση στο ΕΠΤ-ΕΜΠ . . . . .	97
4.4.1	Ο Εξοπλισμός του Εργαστηρίου . . . . .	97
4.4.2	Ο ανιχνευτής XtRa . . . . .	98

4.4.3	Ανάλυση του φάσματος και υπολογισμός ραδιενέργειας . . . . .	102
<b>5</b>	<b>Σχεδιασμός πειραματικής διαδικασίας για τη συλλογή και γ-φασματοσκοπική ανάλυση δειγμάτων ξηρής απόθεσης</b>	<b>104</b>
5.1	Αρχικός σχεδιασμός της πειραματικής διαδικασίας . . . . .	104
5.1.1	Εισαγωγή . . . . .	104
5.1.2	Συλλογή δειγμάτων υγρής ή μεικτής απόθεσης στο ΕΠΤ-ΕΜΠ . . . . .	105
5.1.3	Αρχικός σχεδιασμός της δειγματοληψίας ξηρής Απόθεσης . . . . .	107
5.2	Πρώτη δειγματοληψία ξηρής απόθεσης . . . . .	110
5.2.1	Συλλογή και επεξεργασία του δείγματος . . . . .	110
5.2.2	Αποτελέσματα και παρατηρήσεις . . . . .	117
5.2.3	Δεύτερη ανάλυση του πρώτου δείγματος . . . . .	120
5.3	Επόμενες δειγματοληψίες ξηρής απόθεσης . . . . .	121
5.3.1	Παρατηρήσεις και τυποποίηση της πειραματικής διαδικασίας . . . . .	121
5.3.2	Αποτελέσματα ανάλυσης, σχολιασμός και προτάσεις . . . . .	126
<b>6</b>	<b>Συνοπτική παρουσίαση της διπλωματικής εργασίας</b>	<b>127</b>



# Κατάλογος Πινάκων

2.1	Συγκεντρώσεις ραδιενέργειας των θυγατρικών του ραδονίου στον τροποσφαιρικό αέρα (UNSCEAR, 2000). . . . .	21
2.2	Μέση τιμή συγκεντρώσεων ραδιενέργειας του $^7\text{Be}$ , η οποία υπολογίστηκε από μετρήσεις στο επίπεδο της στρατόσφαιρας και της τροπόσφαιρας σε τέσσερις τοποθεσίες (Dutkiewicz and Husain, 1985). . . . .	29
2.3	Μέσες τιμές ραδιενέργειας στην ατμόσφαιρα για τα ισότοπα $^{22}\text{Na}$ , $^7\text{Be}$ , $^{210}\text{Pb}$ σε δύο ζώνες γεωγραφικού πλάτους (Bhandari et al., 1970) . . . . .	33
3.1	Είδος και γεωμετρία των συλλεκτών δειγμάτων ξηρής απόθεσης, οι οποίοι έχουν χρησιμοποιηθεί για συλλογές δειγμάτων ξηρής απόθεσης. . . . .	70
3.2	Τοποθεσίες δειγματοληψίας των ερευνών ξηρής απόθεσης. . . . .	72
3.3	Τιμές για τη ραδιενέργεια $^7\text{Be}$ από τις βιβλιογραφικές αναφορές . . . . .	77
3.4	Τιμές για τη ραδιενέργεια $^{210}\text{Pb}$ από τις βιβλιογραφικές αναφορές . . . . .	77
4.1	Ατομικός Αριθμός(Z), Μέση απαιτούμενη ενέργεια για την παραγωγή ζεύγους ηλεκτρονίου-οπής ( $\epsilon$ ) και κινητικότητα για το γερμάνιο (Ge) και το πυρίτιο (Si) (“Scintillation Spectrometry” 2008). . . . .	86
5.1	Διαδικασία για την ανάλυση δειγμάτων ξηρής απόθεσης, όπως αυτή προέκυψε από την πρώτη δειγματοληψία και τις μετέπειτα διορθώσεις. Πρόκειται για τροποποίηση του αρχικού σχεδιασμού της πειραματικής διαδικασίας του Σχήματος 5.1.119	
5.2	Τιμές των διαφόρων παραμέτρων, οι οποίες χρησιμοποιήθηκαν στις τρεις πρώτες δειγματοληψίες ξηρής απόθεσης. . . . .	123
5.3	Τυποποιημένη διαδικασία συλλογής δειγμάτων ξηρής απόθεσης στο ΕΠΤ-ΕΜΠ. Οι ποσότητες αναφέρονται σε επιφάνεια συλλογής περίπου $0.55\text{ m}^2$ , η οποία αντιστοιχεί σε 3 ορθογώνιους συλλέκτες του ΕΠΤ-ΕΜΠ. Η ρητίνη είναι Dowex 50WX8 hydrogen form . . . . .	125

5.4 Αποτελέσματα ραδιενέργειας  ${}^7\text{Be}$  και  ${}^{210}\text{Pb}$  σε  $\text{Bqweek}^{-1}\text{m}^{-2}$  στα τρία δείγματα  
ξηρής απόθεσης. . . . . 126

# Κεφάλαιο 1

## Εισαγωγή

Αντικείμενο της Διπλωματικής Εργασίας (ΔΕ) αυτής είναι η ανάπτυξη μεθοδολογίας για τη συλλογή και επεξεργασία ξηρών ατμοσφαιρικών αποθέσεων, με τελικό στόχο την ανίχνευση σε αυτές φυσικών και τεχνητών ραδιενεργών ισοτόπων. Για να αναπτυχθεί η πειραματική μέθοδος προηγήθηκε βιβλιογραφική ανασκόπηση για τις μεθόδους με τις οποίες γίνονται αντίστοιχες δειγματοληψίες από άλλα εργαστήρια και φορείς παγκοσμίως, ώστε να διαπιστωθεί αν είναι εφικτός ο σχεδιασμός μίας αντίστοιχης πειραματικής διαδικασίας και στο ΕΠΤ-ΕΜΠ. Κατά τη βιβλιογραφική ανασκόπηση δημιουργήθηκαν ερωτήματα, τόσο πάνω στον τρόπο με τον οποίο σχεδιάστηκαν οι αυτές πειραματικές διαδικασίες, όσο και για τη σημασία της ανάλυσης δειγμάτων ξηρής απόθεσης. Η διπλωματική εργασία διαμορφώθηκε σε πέντε (5) Κεφάλαια, τα οποία παρουσιάζονται συνοπτικά παρακάτω.

Το 2<sup>ο</sup> Κεφάλαιο με τίτλο 'Ραδιενέργεια στην Ατμόσφαιρα' αποτελεί μία σύνοψη των βασικών πηγών φυσικής και τεχνητής ραδιενέργειας, οι οποίες εντοπίζονται στην ατμόσφαιρα. Δημιουργήθηκε, με σκοπό να γίνει μία εισαγωγή στα ραδιενεργά ισότοπα, τα οποία ανιχνεύονται στα δείγματα απόθεσης και αέρα, τα οποία υπάρχουν στη βιβλιογραφική ανασκόπηση. Το Κεφάλαιο αυτό ξεκινάει με την παρουσίαση των τριών φυσικών ραδιενεργών σειρών δίνοντας μεγαλύτερη έμφαση στο  $^{222}\text{Rn}$  (γνωστό και ως ραδόνιο), το οποίο είναι από τις σημαντικότερες συνιστώσες της φυσικής ραδιενέργειας στην ατμόσφαιρα. Στη συνέχεια, δίνεται έμφαση στο ραδιενεργό ισότοπο  $^{210}\text{Pb}$  - θυγατρικό του  $^{222}\text{Rn}$  -το οποίο, αφενός αναφέρεται σε πολλές εργασίες, αφετέρου ανιχνεύεται σε δείγματα αέρα που συλλέγεται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ και ως εκ τούτου υπάρχει ισχυρή πιθανότητα να ανιχνεύεται και στα δείγματα ξηρής απόθεσης με την πειραματική μέθοδο, η οποία θα αναπτύσσεται στην παρούσα Διπλωματική Εργασία. Στη συνέχεια του Κεφαλαίου αυτού εξετάζονται τα ραδιενεργά ισότοπα κοσμικής προέλευσης, δίνοντας αυτή τη φορά ιδιαίτερη βαρύτητα στο  $^7\text{Be}$ , επειδή εξ' αρχής θεωρήθηκε εξαιρετικά πιθανό από την υπάρχουσα εμπειρία

στο ΕΠΤ-ΕΜΠ, ότι μία σωστά μελετημένη μέθοδος συλλογής δείγματος ξηρής απόθεσης και ανάλυσης θα οδηγούσε στον προσδιορισμό του  $^7\text{Be}$  στο δείγμα. Επιπλέον, παρουσιάστηκε σε βάθος και το ισότοπο κοσμικής προέλευσης  $^{22}\text{Na}$ , με ιδιαίτερη βαρύτητα στη δυσκολία ανίχνευσής του. Αναφορικά με τα τεχνητά ραδιενεργά ισότοπα, με πρωταγωνιστή το  $^{137}\text{Cs}$ , το οποίο επίσης ανιχνεύεται σε δείγματα ξηρής απόθεσης. Τέλος, το Κεφάλαιο ολοκληρώνεται με την παρουσίαση του φυσικού ραδιενεργού ισότοπου  $^{40}\text{K}$ , το οποίο ανιχνεύεται στα περιβαλλοντικά δείγματα, όπως το χώμα και για το λόγο αυτό μπορεί υπο ορισμένες προϋποθέσεις να ανιχνεύεται και στις ατμοσφαιρικές αποθέσεις.

Στο 3<sup>ο</sup> Κεφάλαιο αρχικά δίδονται μερικά βασικά στοιχεία για το ατμοσφαιρικό αερόλυμα (αεροζόλ). Στη συνέχεια, Στη συνέχεια, γίνεται σύνδεση των ραδιενεργών ισωτόπων που παρουσιάστηκαν στο Κεφάλαιο 2 με το ατμοσφαιρικό αερόλυμα. Επιπλέον, γίνεται μία συνοπτική παρουσίαση της μεθόδου, με την οποία γίνεται η δειγματοληψία του αερολύματος και ο διαχωρισμός του σε κοκκομετρικά κλάσματα. Εν συνεχεία, παρουσιάζεται η θεωρία των διεργασιών της ξηρής και της υγρής απόθεσης με μία περιληπτική αναφορά και στο φαινόμενο της επαναϊώρησης, το οποίο αποτελεί μία σημαντική πηγή ραδιενεργών ισωτόπων στην ατμόσφαιρα. Τέλος, γίνεται βιβλιογραφική ανασκόπηση για τις πειραματικές μεθόδους συλλογής δειγμάτων ξηρής απόθεσης, όπου παρουσιάζονται και συγκρίνονται οι διάφορες παράμετροι και τα αποτελέσματα των δειγματοληψιών, με σκοπό να αντληθούν οι πληροφορίες εκείνες που θα βοηθήσουν στο σχεδιασμό της πειραματικής διαδικασίας της παρούσας ΔΕ.

Στο 4<sup>ο</sup> Κεφάλαιο αναλύεται η μέθοδος της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης, η οποία είναι και η μέθοδος ανάλυσης, η οποία χρησιμοποιήθηκε για την ανάλυση των δειγμάτων ξηρής απόθεσης. Το Κεφάλαιο ξεκινά με μία γενική παρουσίαση των βασικών ανιχνευτικών διατάξεων πυρηνικής ακτινοβολίας οι οποίες χρησιμοποιούνται σήμερα και συνεχίζει με παρουσίαση της αρχής λειτουργίας και των χαρακτηριστικών των ανιχνευτών ημιαγωγού. Επιπροσθέτως, δίνονται λεπτομέρειες για τη μεθοδολογία, με την οποία γίνεται η ανάλυση ενός γ-φάσματος. Το Κεφάλαιο ολοκληρώνεται με την παρουσίαση του σχετικού εξοπλισμού που είναι διαθέσιμος στο ΕΠΤ-ΕΜΠ και χρησιμοποιήθηκε στην ΔΕ, ενώ παρουσιάζεται και η μεθοδολογία, η οποία εφαρμόζεται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ για την ανάλυση και επεξεργασία γ-φασμάτων στο ΕΠΤ-ΕΜΠ.

Το 5<sup>ο</sup> Κεφάλαιο αποτελεί την ανάλυση της πειραματικής διαδικασίας, η οποία αναπτύχθηκε στη ΔΕ, με σκοπό τη δειγματοληψία και ανάλυση δειγμάτων ξηρής απόθεσης. Το Κεφάλαιο αυτό είναι δομημένο, με τρόπο ώστε να γίνει μία λεπτομερής καταγραφή του τρόπου σκέψης, ο οποίος ακολουθήθηκε έως την τελική διατύπωση της πειραματικής μεθόδου, τα βήματα της οποίας φαίνονται στον Πίνακα 5.3. Συγκεκριμένα, στην Παράγραφο 5.1, παρουσιάζεται ο τρόπος σκέψης για το σχεδιασμό αφού είχαν αξιολογηθεί τα αποτελέσματα της βιβλιογραφικής ανα-

σκόπησης του Κεφαλαίου 3.4. Αποτέλεσμα του παραπάνω τρόπου σκέψης ήταν ένας πολύ πρώιμος σχεδιασμός της πειραματικής μεθόδου (Σχήμα 5.1) με χρήση του ήδη διαθέσιμου εξοπλισμού του ΕΠΤ-ΕΜΠ, με σκοπό την αξιολόγηση και επανασχεδιασμό της διαδικασίας με βάση τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση του πρώτου δείγματος. Από τη δειγματοληψία και ανάλυση του πρώτου δείγματος, όπου ανιχνεύτηκαν τα ισότοπα  $^7\text{Be}$  και  $^{210}\text{Pb}$  διαπιστώθηκαν ορισμένα στάδια της μεθόδου, τα οποία καθυστέρουσαν τη διαδικασία και ενδεχομένως ήταν και πηγή αβεβαιότητας για το τελικό αποτέλεσμα. Ως αποτέλεσμα των διαπιστώσεων αυτών ο πρώιμος σχεδιασμός βελτιώθηκε. Με την ανάλυση και αξιολόγηση και του τρίτου δείγματος, προέκυψε, πλέον, η τυποποίηση της πειραματικής μεθόδου για τη δειγματοληψία ξηρής απόθεσης.

Στο 6<sup>ο</sup> Κεφάλαιο γίνεται σύνοψη της ΔΕ και των συμπερασμάτων που προέκυψαν από αυτή και παρουσιάζονται ιδέες για μελλοντική επέκτασή της και βελτίωση της μεθοδολογίας που αναπτύχθηκε.

# Κεφάλαιο 2

## Ραδιενέργεια στην ατμόσφαιρα

### 2.1 Εισαγωγή

Σκοπός αυτού του κεφαλαίου είναι η συνοπτική παρουσίαση των ραδιενεργών ισοτόπων, που υπάρχουν στην ατμόσφαιρα. Είναι προφανές, ότι τα ισότοπα αυτά είναι πάρα πολλά για να καταγραφούν σε μία ΔΕ, πόσο μάλλον να αναλυθούν. Γίνεται, λοιπόν, μία επιλογή των ισοτόπων που θα αναλυθούν στο παρόν κεφάλαιο με βάση τα παρακάτω κριτήρια:

- **Συσχέτιση με το ατμοσφαιρικό αερόλυμα:** Επιλέγονται ισότοπα, τα οποία βρίσκονται στη στερεά φάση και προσκολλώνται στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα.
- **Συγκέντρωση:** Θα αναλυθούν ισότοπα, τα οποία έχουν αρκετά υψηλή συγκέντρωση στην ατμόσφαιρα, ώστε να θεωρούνται - κατ' αρχήν - ανιχνεύσιμα με τις διατάξεις που θα χρησιμοποιηθούν στα πλαίσια της Διπλωματικής Εργασίας.
- **Ύπαρξη δεδομένων:** Δίνεται προτεραιότητα στα ισότοπα, για τα οποία υπάρχουν αρκετά διαθέσιμα και επιστημονικά έγκυρα δεδομένα στη βιβλιογραφία.
- **Απαραίτητα για την κατανόηση της προέλευσης άλλων ισοτόπων, τα οποία εντοπίζονται στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα.** Σε αυτή την κατηγορία ανήκει το ραδόνιο, το οποίο αν και δεν συνδέεται άμεσα στο αερόλυμα, η κατανόηση της διαδικασίας απελευθέρωσής του στην ατμόσφαιρα και παραγωγής των θυγατρικών του κρίνεται απαραίτητη για την κατανόηση της ύπαρξης των θυγατρικών του στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα.

Στην προσπάθεια να καταγραφούν τα βασικότερα ισότοπα, στα οποία οφείλεται η ραδιενέργεια της ατμόσφαιρας, γίνεται μία κατηγοριοποίηση των ισωτόπων, που θα αναλυθούν, σε τέσσερις κατηγορίες:

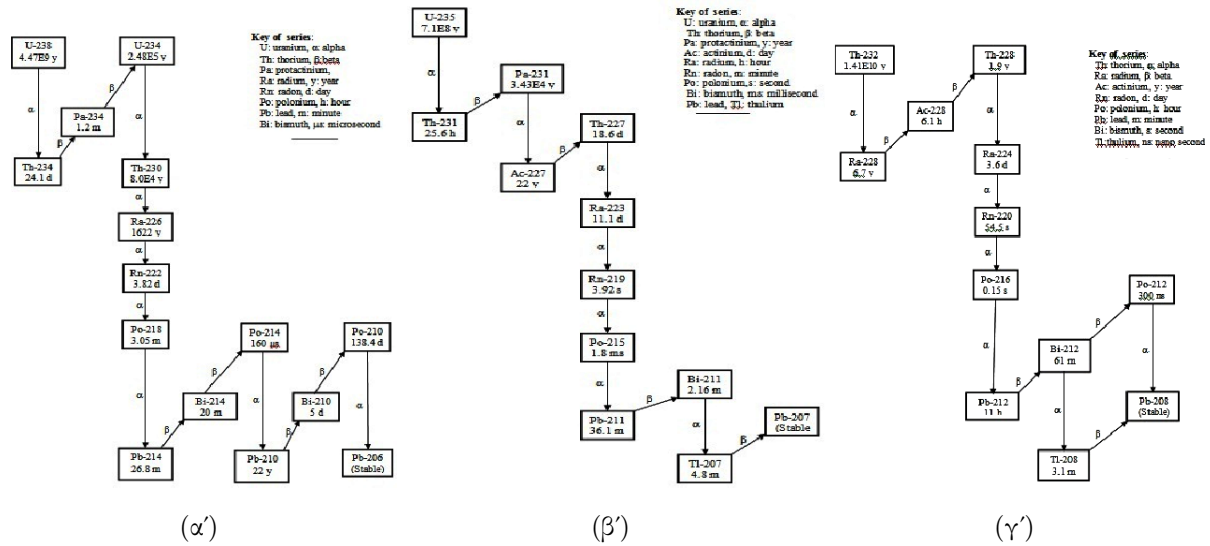
1. Ισώτοπα, μέλη των φυσικών ραδιενεργών σειρών τα οποία καταλήγουν στην ατμόσφαιρα.
2. Ισώτοπα, τα οποία παράγονται στην ατμόσφαιρα από την κοσμική ακτινοβολία.
3. Ισώτοπα, τα οποία απελευθερώθηκαν στην ατμόσφαιρα από τεχνητές διεργασίες, δηλαδή με ανθρώπινη παρέμβαση.
4. Φυσικά ισώτοπα, τα οποία καταλήγουν στην ατμόσφαιρα, μέσω του φαινομένου της επαναιώρησης.

Καθεμία από τις παραπάνω κατηγορίες αποτελεί ξεχωριστή ενότητα του παρόντος κεφαλαίου. Σε κάθε ενότητα γίνεται προσπάθεια να δοθούν βασικά στοιχεία για την παραγωγή των ισωτόπων, η εξάρτηση της παραγωγής τους από διάφορους παράγοντες και οι διαδικασίες μέσω των οποίων αυτά καταλήγουν στην ατμόσφαιρα. Επίσης, σε κάθε ενότητα, αναλύονται ορισμένα από τα σημαντικότερα ισώτοπα της κατηγορίας και δίδονται τυπικές τιμές συγκέντρωσής τους από τη βιβλιογραφία, ώστε να δοθεί μία ιδέα για την τάξη μεγέθους της ραδιενέργειας τους. Τέλος, θα δοθούν ορισμένα παραδείγματα χρήσης των ισωτόπων που μελετώνται σε εφαρμογές, αφού πολλά από τα ισώτοπα της ατμόσφαιρας χρησιμοποιούνται ευρέως ως ιχνηλάτες (tracers) ατμοσφαιρικών και μετεωρολογικών διεργασιών.

## 2.2 Ραδιενεργά ισώτοπα από φυσικές ραδιενεργές σειρές

### 2.2.1 Γενικά για τις φυσικές ραδιενεργές σειρές

Τα φυσικά υλικά αποτελούνται από μία μεγάλη ποικιλία χημικών στοιχείων, άρα και από μία μεγάλη ποικιλία πυρήνων. Ένα ποσοστό από αυτούς τους πυρήνες είναι ραδιενεργοί και προέρχονται από ισώτοπα, τα οποία υπάρχουν στη Γη από τη στιγμή της δημιουργίας της.



Σχήμα 2.1: Σχηματική αναπαράσταση των τριών φυσικών ραδιενεργών σειρών  $^{235}\text{U}$  (Attallah and Awwad, 2012).

Συγκεκριμένα, σε όλα τα φυσικά υλικά υπάρχει ουράνιο και θόριο, τα οποία δε διασπώνται απ' ευθείας σε σταθερούς πυρήνες, αλλά μεσολαβούν διασπάσεις σε πυρήνες άλλων ραδιενεργών ισοτόπων. Με λίγα λόγια, δημιουργείται μία σειρά διασπάσεων σε ραδιενεργά ισότοπα. Οι σειρές από αυτές τις διασπάσεις ονομάζονται ραδιενεργές σειρές/αλυσίδες. Οι ραδιενεργές σειρές που υπάρχουν στα φυσικά υλικά είναι η σειρά του  $^{238}\text{U}$ , του  $^{235}\text{U}$  και του  $^{232}\text{Th}$ , οι οποίες φαίνονται και στο Σχήμα 2.1.

## 2.2.2 Τα ισότοπα του Ραδονίου

Το ραδόνιο έχει πάνω από 35 γνωστά ισότοπα, τα οποία είναι ραδιενεργά. Στη φύση μπορούν να ανιχνευτούν μόνο τα τέσσερα από αυτά, επειδή συμμετέχουν στις φυσικές ραδιενεργές σειρές. Το σημαντικότερο ισότοπο του ραδονίου είναι το  $^{222}\text{Rn}$  και ανήκει στη φυσική ραδιενεργό σειρά του  $^{238}\text{U}$ . Είναι θυγατρικό του  $^{226}\text{Ra}$ , και παράγεται από διάσπαση α αυτού του πυρήνα με ποσοστό εκπομπής σχεδόν 100%. Ο χρόνος ημιζωής του  $^{222}\text{Rn}$  είναι  $T_{1/2} = 3.8 \text{ d}$ . Πρόκειται για το μεγαλύτερο χρόνο ημιζωής όλων των ισοτόπων του ραδονίου, γι αυτό το λόγο το ισότοπο αυτό χαρακτηρίζεται συχνά στη βιβλιογραφία ως το σταθερότερο ισότοπο του ραδονίου, με αποτέλεσμα ο όρος ραδόνιο να είναι συνδεδεμένος με το  $^{222}\text{Rn}$  (Brown et al., 2018).

Σε δευτερεύοντα κλάδο της ραδιενεργού σειράς του  $^{238}\text{U}$  εμφανίζεται και το ισότοπο  $^{218}\text{Rn}$ .



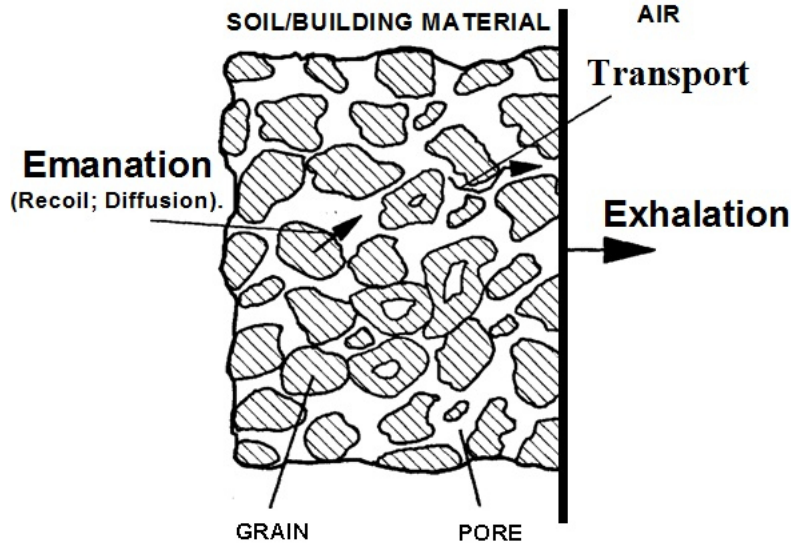
Ο χρόνος ημιζωής του ισότοπου αυτού είναι  $T_{1/2} = 35 \text{ ms}$  και είναι προϊόν διάσπασης- $\beta^-$  του πυρήνα  $^{218}\text{At}$ , με ποσοστό εκπομπής 0.1%. Το  $^{218}\text{Rn}$  λόγω του πολύ μικρού χρόνου ημιζωής, αλλά, και του πολύ μικρού ποσοστού εκπομπής από τη ραδιενεργό σειρά του  $^{238}\text{U}$  δε μπορεί να ανιχνευτεί σε φυσικά δείγματα με μεθόδους φασματοσκοπικής ανάλυσης. Στο άρθρο των Cocks et al. (1999) παρουσιάζεται μία μέθοδος πειραματικής ανίχνευσης του ισότοπου αυτού.

Ένα ακόμα αξιόλογο ισότοπο του ραδονίου εμφανίζεται στη φυσική ραδιενεργό σειρά του  $^{232}\text{Th}$ . Το ισότοπο αυτό είναι το  $^{220}\text{Rn}$  και αναφέρεται στη βιβλιογραφία ως συχνά ως "θορόνιο". Προέρχεται από διάσπαση- $\alpha$  του πυρήνα ραδίου  $^{224}\text{Ra}$ , με ποσοστό εκπομπής σχεδόν 100%. Ο χρόνος ημιζωής του είναι  $T_{1/2} = 55 \text{ s}$  (Brown et al., 2018). Αν και ο χρόνος αυτός φαίνεται σχετικά μικρός η μέτρηση της ραδιενέργειας του  $^{220}\text{Rn}$  αποτελεί αντικείμενο μελέτης, όπως θα αναλυθεί και στη συνέχεια.

Το τελευταίο αξιόλογο ισότοπο του ραδονίου, το οποίο ανήκει στις φυσικές ραδιενεργές σειρές είναι το  $^{219}\text{Rn}$ . Εμφανίζεται στη σειρά του  $^{235}\text{U}$  ως προϊόν διάσπασης- $\alpha$  πυρήνων  $^{223}\text{Ra}$ . Ο χρόνος ημιζωής του  $^{219}\text{Rn}$  είναι  $T_{1/2} = 3.96 \text{ s}$ . Παρόλο τον πολύ χαμηλό χρόνο ημιζωής σε σχέση με τα προηγούμενα ισότοπα, αλλά και τη μικρή ραδιενέργεια του ισότοπου αυτού στην ατμόσφαιρα υπάρχουν ανιχνευτικές διατάξεις, οι οποίες μπορούν να μετρήσουν τη ραδιενέργεια και αυτού του ισότοπου (Krien et al., 1970; Singh et al., 1998).

Το ραδόνιο είναι ένα αδρανές αέριο, αφού έχει ατομικό αριθμό  $Z = 86$  και κατατάσσεται στην ομάδα των ευγενών αερίων και στις συνθήκες της τροπόσφαιρας βρίσκεται στην αέρια φάση. Επιπλέον, το ραδόνιο συναντάται σε όλα τα φυσικά υλικά, καθώς προέρχεται από τις τρεις φυσικές ραδιενεργές σειρές, τα ισότοπα των οποίων συναντώνται πρακτικά σε όλα τα φυσικά υλικά. Δεδομένης της αέριας φάσης του, αλλά και της χημικής του αδράνειας, ένα ποσοστό από αυτό που παράγεται μέσα στα υλικά διαφεύγει στον ατμοσφαιρικό αέρα. Σε αυτό το σημείο πρέπει να αναφερθεί ότι οι χρόνοι ημιζωής των ισότοπων  $^{218}\text{Rn}$ ,  $^{219}\text{Rn}$  είναι πάρα πολύ μικροί, με αποτέλεσμα να διασπώνται στους θυγατρικούς τους πυρήνες είτε πριν είτε σε πολύ μικρό χρονικό διάστημα μετά την απελευθέρωσή τους στην ατμόσφαιρα. Συνεπώς, η ραδιενέργεια των δύο αυτών ισότοπων στην ατμόσφαιρα μπορεί να θεωρηθεί αμελητέα.

Η ροή του ραδονίου στα φυσικά υλικά εξαρτάται από τρεις παράγοντες. Μέσα στα υλικά, ανάλογα με το πορώδες και την πυκνότητά τους, υπάρχει αέρια φάση (soil gas). Μεταξύ αυτού του αερίου και του ραδονίου, το οποίο παράγεται από τις ραδιενεργές διασπάσεις μέσα στα φυσικά υλικά, λαμβάνει χώρα η διεργασία της μοριακής διάχυσης. Επιπλέον, η ροή του ραδονίου επηρεάζεται έντονα από την ενέργεια ανάκρουσης κατά τη διάσπαση (recoil). Μάλιστα, ο δεύτερος παράγοντας επηρεάζει περισσότερο την κίνηση του ραδονίου μέσα στο υλικό σε σχέση με τον πρώτο. Τέλος, η ροή του ραδονίου επηρεάζεται από τη μεταβολή της πίεσης στη διεπι-

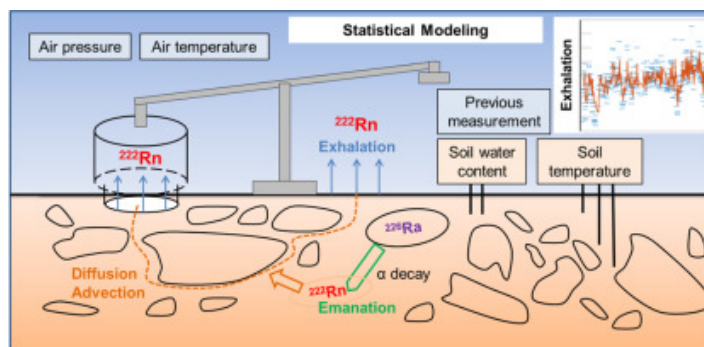


Σχήμα 2.2: Εκροή του ραδονίου από ένα φυσικό υλικό.

φάνεια μεταξύ υλικού και αέρα (Tanner, 1964). Στο Σχήμα 2.2, που ακολουθεί, φαίνεται μία αναπαράσταση του μηχανισμού εκροής του ραδονίου από τα φυσικά υλικά μετά την παραγωγή του. Στην έρευνα των Yang et al. (2019) γίνεται μία προσπάθεια συσχέτισης της εκροής  $^{222}\text{Rn}$  από τα ορυκτά με διάφορους περιβαλλοντικούς παράγοντες, η οποία συνοψίζεται έυστοχα στο Σχήμα 2.3. Αντίστοιχες έρευνες έχουν γίνει και παλαιότερα από τους Malmqvist et al. (1989), Almayahi et al. (2013), στις οποίες συμπεριλαμβάνεται και η εκροή του  $^{220}\text{Rn}$ .

Το ραδόνιο μετά την εκροή του από ένα υλικό καταλήγει τελικά στον ατμοσφαιρικό αέρα. Η εν συνεχεία διασπορά του εξαρτάται από ρευστομηχανικούς παράγοντες, με κυριότερο μηχανισμό αυτόν της τυρβώδους διάχυσης, ο οποίος αναφέρεται ως eddy diffusion και εξαρτάται κυρίως από τις μικροκλιματικές συνθήκες (Gäggeler, 2015). Συγκεντρώσεις  $^{222}\text{Rn}$  έχουν ανιχνευτεί έως και στα κατώτερα επίπεδα της στρατόσφαιρας. Στο άρθρο των Jacobi and André (2012) γίνεται μία προσπάθεια αριθμητικής επίλυσης της εξίσωσης της διάχυσης, με στόχο τη σύγκριση με διαθέσιμα πειραματικά δεδομένα. Τόσο η αριθμητική επίλυση όσο και τα πειραματικά δεδομένα συμφώνησαν στην ύπαρξη συγκεντρώσεων  $^{222}\text{Rn}$  στη στρατόσφαιρα και στην εκθετική μείωση της συγκέντρωσης του ισότοπου συναρτήσει του ύψους από την επιφάνεια της Γης.

Το ισότοπο  $^{220}\text{Rn}$ , λόγω του μικρού χρόνου ημιζωής του, δεν ανιχνεύεται σε υψηλά επίπεδα της ατμόσφαιρας. Οι συγκεντρώσεις του περιορίζονται σε μερικές εκατοντάδες μέτρα από το έδαφος (Israël and W. Israël, 2010). Βέβαια, ο ρυθμός εκροής του από τα φυσικά υλικά είναι μεγαλύτερος, με αποτέλεσμα κοντά στο έδαφος να αναμένονται συγκρίσιμες συγκεντρώσεις



Σχήμα 2.3: Σχηματική αναπαράσταση της εκροής του ραδονίου από τα ορυκτά υλικά και συχέτισή της με διάφορους περιβαλλοντικούς παράγοντες (Yang et al., 2019).

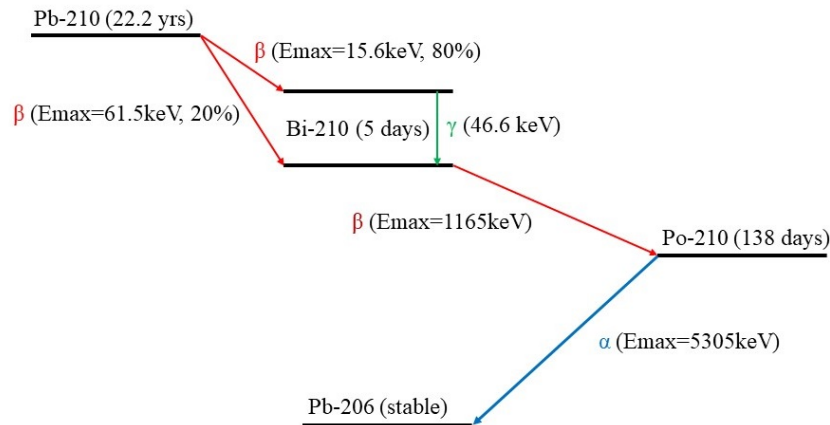
για τα δύο ισότοπα. Συγκεκριμένα, η ραδιενέργεια του  $^{222}\text{Rn}$  στον τροποσφαιρικό αέρα κυμαίνεται από 10 έως 40  $\text{Bq}/\text{m}^3$ , ενώ η ραδιενέργεια του  $^{222}\text{Rn}$  είναι της τάξης των 10  $\text{Bq}/\text{m}^3$  (UNSCEAR, 2000).

Κλείνοντας, πρέπει να αναφερθεί ότι το ισότοπο  $^{222}\text{Rn}$  χρησιμοποιείται και ως ιχνηλάτης αέριων μαζών. Συγκεκριμένα, έχει παρατηρηθεί ότι η εκροή  $^{222}\text{Rn}$  από τη θάλασσα είναι, κατα μέσο όρο, δύο τάξεις μεγέθους μικρότερη από την εκροή του από τη στεριά (Schery and Huang, 2004). Συνεπώς, η εκμετάλλευση αυτής της παρατήρησης μπορεί να οδηγήσει στην ταυτοποίηση της προέλευσης μίας αέριας μάζας.

### 2.2.3 Τα θυγατρικά του Ραδονίου

Σύμφωνα με τα παραπάνω, ένα ποσοστό των ισωτόπων  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{220}\text{Rn}$  καταλήγει στον ατμοσφαιρικό αέρα με τη μορφή αερίου. Εκεί, τα ισότοπα αυτά συνεχίζουν τις ραδιενεργές τους διασπάσεις, με αποτέλεσμα τα θυγατρικά τους, τα οποία είναι στερεά, να ανιχνεύονται στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα. Τα θυγατρικά αυτά είναι κυρίως ισότοπα του βισμούθιου ( $\text{Bi}$ ), του πολωνίου ( $\text{Po}$ ) και του μολύβδου ( $\text{Pb}$ ) (Papastefanou, 2011).

Το μακροβιότερο ισότοπο, το οποίο ανιχνεύεται στην ατμόσφαιρα, εξ' αιτίας της εκπομπής του ραδονίου είναι το ισότοπο του μολύβδου,  $^{210}\text{Pb}$ , με χρόνο ημιζωής  $T_{1/2} = 22.2 \text{ y}$ . Το ισότοπο αυτό ανήκει στη ραδιενεργό σειρά του  $^{238}\text{U}$  και διασπάται με διάσπαση- $\beta^-$  με ποσοστό εκπομπής σχεδόν 100%. Μέσω της διάσπασης αυτής ο μολύβδος μεταστοιχειώνεται με διάσπαση  $\beta^-$  σε  $^{210}\text{Bi}$ , το οποίο έχει χρόνο ημιζωής  $T_{1/2} = 5 \text{ d}$  και το οποίο διασπάται με τη σειρά του σε  $^{210}\text{Po}$ , με χρόνο ημιζωής  $T_{1/2} = 138 \text{ d}$  (Brown et al., 2018). Στο Σχήμα 2.4 παρουσιάζονται αναλυτικά



Σχήμα 2.4: Σχηματική αναπαράσταση των διασπάσεων των θυγατρικών του  $^{210}\text{Pb}$ .

οι διαδοχικές αυτές διασπάσεις. Τα τρία αυτά ισότοπα θεωρούνται τα μακροβιότερα ισότοπα, τα οποία ανιχνεύονται στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα και προέρχονται από τα θυγατρικά ισότοπων του ραδονίου.

Καθώς τα ισότοπα  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Po}$  έχουν αρκετά μεγάλο χρόνο ημιζωής χρησιμοποιούνται σε πολλές έρευνες ως ιχνηλάτες ατμοσφαιρικών διεργασιών. Τα ισότοπα αυτά, καταλήγουν στην ανώτερη ατμόσφαιρα, εξ' αιτίας της εκροής ραδονίου από τα φυσικά υλικά με τη συγκέντρωσή τους να μειώνεται με το ύψος από την επιφάνεια της Γης. Γι' αυτό το λόγο, μπορούν να χρησιμοποιηθούν ως ιχνηλάτες για την κατακόρυφη κίνηση των αέριων μαζών (Baskaran, 2011). Επιπλέον, όπως προαναφέρθηκε στην Παράγραφο 2.2.2, η συγκέντρωση του ραδονίου πάνω από τις θαλάσσιες περιοχές είναι μικρότερη από τη συγκέντρωσή του πάνω από τις ηπειρωτικές. Επομένως, θα ισχύει και η ίδια παρατήρηση για τις συγκεντρώσεις των θυγατρικών του. Στην παρατήρηση αυτή βασίζονται έρευνες, οι οποίες χρησιμοποιούν τα θυγατρικά του ραδονίου (κυρίως τα ισότοπα  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Po}$ ), ως ιχνηλάτες για τις διεργασίες μεταφοράς αέριων μαζών μεταξύ ηπειρωτικών και θαλάσσιων ζωνών (Persson and Holm, 2014).

Όπως προκύπτει εύκολα από τα παραπάνω η ανίχνευση των θυγατρικών του ραδονίου παρουσιάζει ιδιαίτερο ενδιαφέρον. Για την ανίχνευση του  $^{210}\text{Po}$  χρησιμοποιείται τις περισσότερες φορές φασματοσκοπία-α, ενώ για το  $^{210}\text{Pb}$  μπορούν να χρησιμοποιηθούν και οι τρεις μέθοδοι φασματοσκοπίας (Baskaran, 2011). Όσον αφορά τη φασματοσκοπία-γ, η ακτινοβολία-γ, η οποία μπορεί να χρησιμοποιηθεί για την ανίχνευση του  $^{210}\text{Pb}$ , εκπέμπεται από τον πυρήνα  $^{210}\text{Bi}$ , ο οποίος μετά τη διάσπαση- $\beta^-$  του  $^{210}\text{Pb}$  βρίσκεται σε διεγερμένη κατάσταση. Τέλος, για την

Πίνακας 2.1: Συγκεντρώσεις ραδιενέργειας των θυγατρικών του ραδονίου στον τροποσφαιρικό αέρα (UNSCEAR, 2000).

Θυγατρικά του $^{222}\text{Rn}$	Συγκέντρωση Ραδιενέργειας ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ )
$^{218}\text{Po}$	19.05
$^{214}\text{Pb}$	3.88
$^{214}\text{Bi}$	5.26
$^{210}\text{Pb}$	$0.50 \cdot 10^{-3}$
$^{210}\text{Po}$	$0.05 \cdot 10^{-3}$

Θυγατρικά του $^{220}\text{Rn}$	Συγκέντρωση Ραδιενέργειας ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ )
$^{212}\text{Pb}$	0.0550
$^{212}\text{Bi}$	0.0575

ανίχνευση του  $^{210}\text{Bi}$  χρησιμοποιείται φασματοσκοπία-β. Το τελευταίο ισότοπο έχει χρησιμοποιηθεί και σε έρευνες για τον προσδιορισμό της ραδιενέργειας του  $^{210}\text{Pb}$  (Nachab and Hubert, 2012; Štok et al., 2016). Στον Πίνακα 2.1 παρουσιάζονται τυπικές τιμές της συγκέντρωσης της ραδιενέργειας στον τροποσφαιρικό αέρα μερικών σημαντικών θυγατρικών των  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{220}\text{Rn}$ .

## 2.3 Ραδιενεργά ισότοπα κοσμικής προέλευσης

### 2.3.1 Γενική περιγραφή της κοσμικής ακτινοβολίας

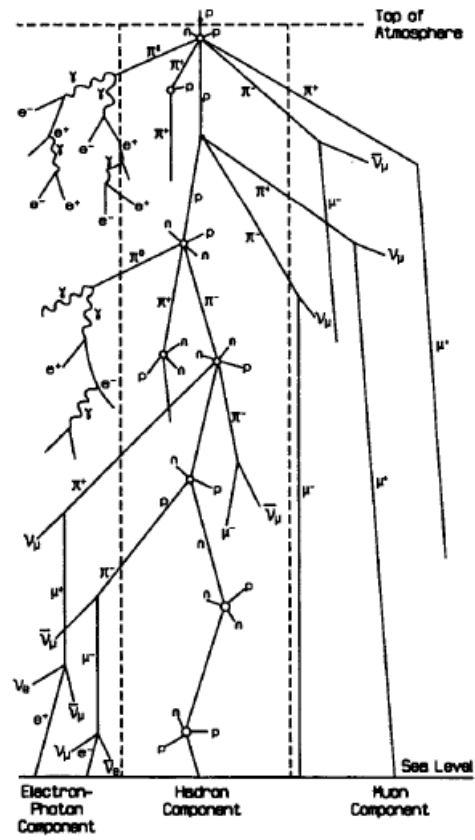
Ο όρος κοσμική ακτινοβολία αναφέρεται στην ιονίζουσα ακτινοβολία, η οποία προέρχεται από το διάστημα. Η κοσμική ακτινοβολία προσβάλλει συνεχώς την ατμόσφαιρα της Γης και μπορεί σε πρώτη φάση να διακριθεί σε δύο συνιστώσες: τη γαλαξιακή και την ηλιακή. Το ενεργειακό φάσμα της γαλαξιακής κοσμικής ακτινοβολίας είναι πιο ευρύ από αυτό της ηλιακής. Το σύνολο των κοσμικών ακτίνων (γαλαξιακές και ηλιακές) αποτελείται από πρωτόνια, νετρόνια, σωματίδια-α και πυρήνες βαρύτερων σωματιδίων, με κυριότερη συνιστώσα τα πρωτόνια. Όλα αυτά τα σωματίδια καταφθάνουν στη Γη και συγκρούονται με την ατμόσφαιρα. Στη βιβλιογραφία αναφέρονται ως πρωτογενής κοσμική ακτινοβολία και η ενέργειά τους κυμαίνεται από 1 GeV

έως και  $10^8$  TeV. Οι υψηλότερες ενέργειες του φάσματος θεωρείται ότι έχουν εξωγαλαξιακή προέλευση (Grieder, 2001).

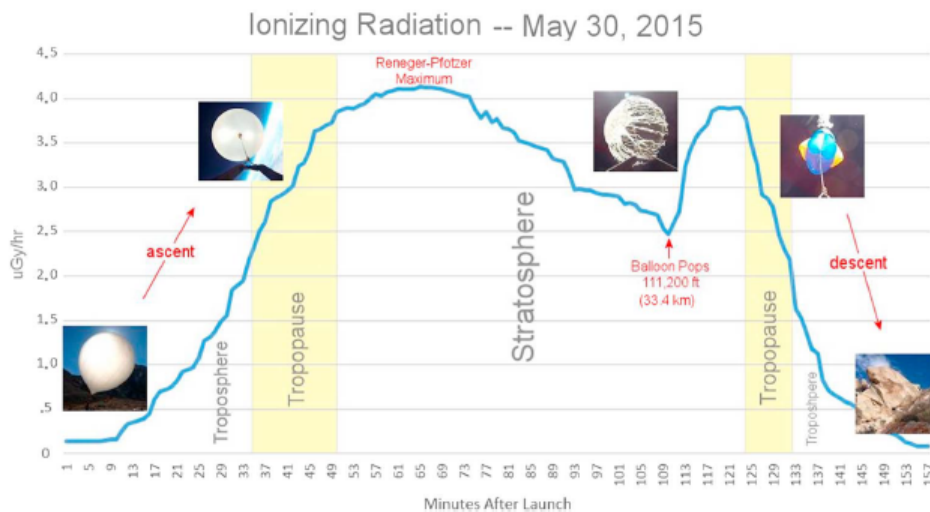
Όταν η πρωτογενής κοσμική ακτινοβολία εισέρχεται στην ατμόσφαιρα της Γης, αλληλεπιδρά με τους πυρήνες των μορίων του ατμοσφαιρικού αέρα με ισχυρές πυρηνικές αντιδράσεις. Από τις αντιδράσεις αυτές παράγονται νέοι πυρήνες και νέα στοιχειώδη σωματίδια, τα οποία αλληλεπιδρούν εκ νέου με πυρήνες της ατμόσφαιρας. Η διαδικασία αυτή να επαναλαμβάνεται μέχρι όλα τα (πρωτογενή και δευτερογενή) σωματίδια να αποθέσουν όλη την ενέργειά τους στην ατμόσφαιρα. Συνεπώς, φαίνεται ότι για κάθε ένα πρωτογενές σωματίδιο κοσμικής ακτινοβολίας, το οποίο αντιδρά με κάποιον πυρήνα της ατμόσφαιρας, παράγονται πολλά δευτερογενή σωματίδια. Η φύση των δευτερογενών σωματιδίων ποικίλλει ανάλογα με την αντίδραση που λαμβάνει χώρα. Έτσι, τα σωματίδια αυτά μπορεί να είναι φωτόνια, ηλεκτρόνια, πρωτόνια, καόνια, μιόνια, πιόνια, καθώς και τα αντίστοιχα αντισωματίδια. Εξαιτίας, της μεγάλης ροής και ποικιλίας των δευτερογενών σωματιδίων, τα σωματίδια αυτά χαρακτηρίζονται από τη διεθνή βιβλιογραφία ως showers ή cascades σωματιδίων. Στο Σχήμα 2.5 παρουσιάζεται ένα τέτοιο shower σωματιδίων, στο οποίο φαίνεται η τυχαιότητα που χαρακτηρίζει τις αλληλεπιδράσεις της ακτινοβολίας με την ύλη, η ποικιλία της φύσης των δευτερογενών σωματιδίων και η ποσότητα των δευτερογενών σωματιδίων, τα οποία μπορεί να παραχθούν από μία μόνο αλληλεπίδραση ενός πρωτογενούς σωματιδίου (Bazilevskaya et al., 2008).

Από τα παραπάνω φαίνεται πως τα πρωτογενή σωματίδια αποθέτουν όλο και περισσότερη ενέργεια όσο διεισδύουν στην ατμόσφαιρα. Με την έκφραση αποθέτουν την ενέργειά τους εννοείται ότι λαμβάνουν χώρα πυρηνικές αντιδράσεις, από τις οποίες εκπέμπονται τα δευτερογενή σωματίδια. Άρα, με τη μείωση του ύψους από την επιφάνεια της θάλασσας, η ροή των πρωτογενών σωματιδίων μειώνεται, ενώ η ροή των δευτερογενών σωματιδίων αυξάνεται. Από τα δύο αυτά ανταγωνιστικά φαινόμενα, προκύπτει ένα μέγιστο ροής σωματιδίων σε υψόμετρο 18-20 km από την επιφάνεια της θάλασσας. Το μέγιστο αυτό ονομάζεται μέγιστο Pfozter προς τιμήν του φυσικού, από τον οποίο ανακαλύφθηκε. Η πειραματική επιβεβαίωση, γίνεται με τη χρήση μετεωρολογικών μπαλονιών, τα οποία αφήνονται ελεύθερα και μετρούν τη δόση από την ιονίζουσα ακτινοβολία κατά την άνοδό τους στην ατμόσφαιρα. Τέτοιες διατάξεις χρησιμοποιούνται ακόμα και σήμερα και επιβεβαιώνουν το μέγιστο Pfozter. Μία τέτοια μελέτη είναι αυτή των Phillips et al. (2016), από την οποία προέκυψε το Σχήμα 2.6, στο οποίο φαίνεται το μέγιστο Pfozter, ενώ περιγράφεται και η πορεία του μπαλονιού.

Στην παρούσα ΔΕ το ενδιαφέρον εστιάζεται στην παραγωγή ραδιενεργών ισοτόπων από τις αντιδράσεις της κοσμικής ακτινοβολίας με τους πυρήνες των μορίων της ατμόσφαιρας. Όπως προαναφέρθηκε, η κυριότερη συνιστώσα της κοσμικής ακτινοβολίας είναι η σωματιδιακή. Τα



Σχήμα 2.5: Δημιουργία showers σωματιδίων κατά την αλληλεπίδραση πρωτογενών κοσμικών σωματιδίων με τον ατμοσφαιρικό αέρα (Grieder, 2001).



Σχήμα 2.6: Δόση συναρτήσει του ύψους από την επιφάνεια της θάλασσας. Στο διάγραμμα φαίνεται το μέγιστο Pfofzer και η πορεία του μπαλονιού στην ατμόσφαιρα (Phillips et al., 2016).

σωματίδια αντιδρούν με τους πυρήνες των αερίων της ατμόσφαιρας με πυρηνικές αντιδράσεις, οι οποίες αναφέρονται στη βιβλιογραφία ως αντιδράσεις κατακερματισμού (spallation reactions) και παράγουν ραδιενεργούς πυρήνες. Οι αντιδράσεις αυτές μπορούν να πραγματοποιηθούν τόσο με υψηλές όσο και με χαμηλές ενέργειες νουκλεονίων. Στα επίπεδα της στρατόσφαιρας και της τροπόσφαιρας οι αντιδράσεις κατακερματισμού πραγματοποιούνται κυρίως με χαμηλής ενέργειας σωματίδια (100 – 200 MeV) για δύο λόγους (Lal et al., 1958; Young et al., 2008):

1. Στα επίπεδα της στρατόσφαιρας και της τροπόσφαιρας, η ένταση ακτινοβολίας για σωματίδια χαμηλής ενέργειας είναι τουλάχιστον μία τάξη μεγέθους μεγαλύτερη από την ένταση ακτινοβολίας των νουκλεονίων υψηλής ενέργειας.
2. Κατά τις αντιδράσεις κατακερματισμού εκπέμπεται σχετικά μικρός αριθμός σωματιδίων, ενώ απαιτείται οι παραγόμενοι πυρήνες να παραμείνουν ακίνητοι. Η προϋπόθεση αυτή επιτυγχάνεται στην περίπτωση σύγκρουσης νουκλεονίων υψηλής ενέργειας με πυρήνες της ατμόσφαιρας μόνο κατ' εξαίρεση (glancing collisions).

Εκτός από τις αντιδράσεις κατακερματισμού υπάρχουν και άλλες πυρηνικές αντιδράσεις, οι οποίες διαδραματίζονται στην ατμόσφαιρα και οδηγούν στην παραγωγή ραδιενεργών ισοτόπων.



Ο πυρήνας  $^{14}\text{C}$ , αποτελεί αντιπροσωπευτικό παράδειγμα ραδιενεργού πυρήνα, ο οποίος παράγεται στην ατμόσφαιρα με νετρονική ενεργοποίηση από τα νετρόνια της δευτερογενούς κοσμικής ακτινοβολίας. Επιπλέον, κατά την αντίδραση της κοσμικής ακτινοβολίας με την ατμόσφαιρα παράγεται ακτινοβολία- $\gamma$ . Η ακτινοβολία αυτής της φύσης είναι υπεύθυνη μόνο για ένα μικρό ποσοστό των παραγόμενων κοσμικών ισοτόπων και οι κυριότερες αντιδράσεις, από τις οποίες παράγονται κοσμικά ισότοπα είναι αντιδράσεις τύπου  $(\gamma, n)$  και  $(\gamma, p)$  (Lal et al., 1958).

Σύμφωνα με τα παραπάνω, το μεγαλύτερο ποσοστό των κοσμικών ισοτόπων παράγονται στην τροπόσφαιρα και στη στρατόσφαιρα από σωματίδια χαμηλών ενεργειών. Σε όλα τα επίπεδα ενέργειας ο ρυθμός παραγωγής πρωτονίων μπορεί να θεωρηθεί ίσος με το ρυθμό παραγωγής νετρονίων, δηλαδή σε κάθε επίπεδο ενέργειας θεωρείται ότι υπάρχει ίδιος αριθμός πρωτονίων και νετρονίων. Σε επίπεδα ενέργειας μεγαλύτερα των  $500 \text{ MeV}$  τα νετρόνια και τα πρωτόνια συμμετέχουν με τον ίδιο βαθμό σε πυρηνικές αντιδράσεις. Αντίθετα, σε χαμηλότερες ενέργειες τα πρωτόνια χάνουν με γρήγορο ρυθμό την ενέργειά τους σε ιονισμούς των ατμοσφαιρικών αερίων, με αποτέλεσμα να μην εμπλέκονται σε πυρηνικές αντιδράσεις. Άρα, στις χαμηλές ενέργειες της τάξης των  $100 \text{ MeV}$  οι πυρηνικές αντιδράσεις γίνονται κυρίως λόγω ύπαρξης νετρονίων (Lal et al., 1958). Σε αυτό το σημείο πρέπει να διευκρινιστεί ότι το συμπέρασμα αυτό ισχύει μόνο στα υψόμετρα της στρατόσφαιρας και της τροπόσφαιρας, όπου είναι και η περιοχή ενδιαφέροντος της παρούσας  $\Delta\text{E}$ .

Η κοσμική ακτινοβολία προσβάλλει τα επίπεδα της γήινης ατμόσφαιρας συνεχώς, όμως με διαφορετική ένταση, η οποία εξαρτάται από τρεις παράγοντες: την ηλιακή δραστηριότητα, το γεωγραφικό πλάτος και το υψόμετρο. Ο παράγοντας του υψομέτρου αναλύθηκε παραπάνω καταλήγοντας στο συμπέρασμα ότι αύξηση του υψομέτρου από την επιφάνεια της θάλασσας συνεπάγεται αύξηση της έντασης της πρωτογενούς κοσμικής ακτινοβολίας και μείωση της έντασης της δευτερογενούς, όπως επιβεβαιώνεται και από το Σχήμα 2.6.

Η εξάρτηση της έντασης της κοσμικής ακτινοβολίας από το γεωγραφικό πλάτος είναι προέκταση της εξάρτησής της από το γεωμαγνητικό πεδίο. Το μαγνητικό πεδίο της Γης δρα ως διαχωριστής φορτισμένων σωματιδίων εκτρέποντας τα φορτισμένα σωματίδια προς τους πόλους. Σχηματικά, η επίδραση του γεωμαγνητικού πεδίου στις κοσμικές ακτίνες φαίνεται στο Σχήμα 2.7. Συγκεκριμένα, η κίνηση ενός φορτισμένου σωματιδίου στο γεωμαγνητικό πεδίο εξαρτάται από τη δυσκαμψία (rigidity) του σωματιδίου, η οποία ορίζεται μέσω της παρακάτω σχέσης:

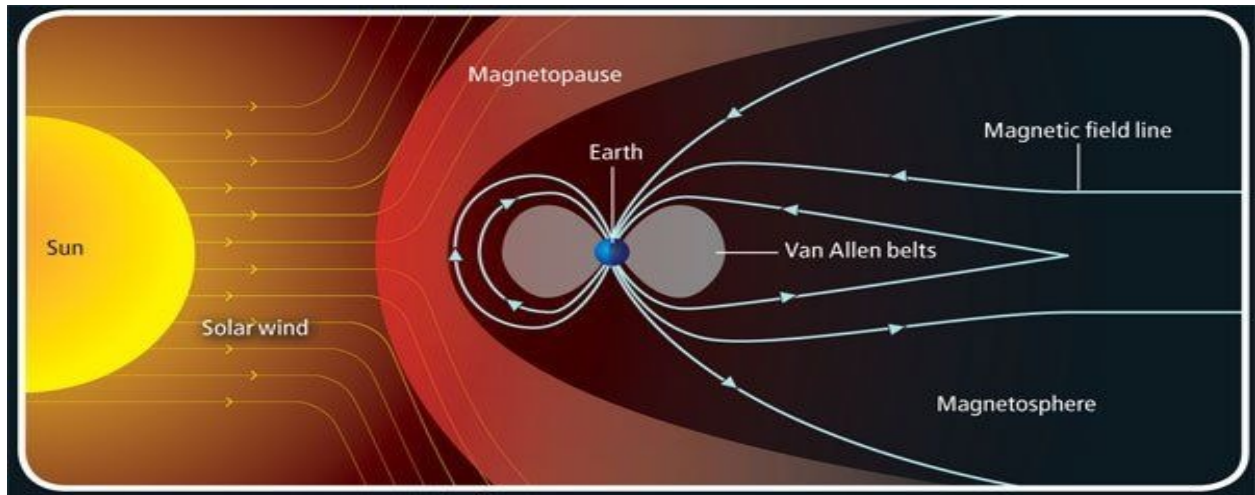
$$R = \frac{cP}{ze} \quad (2.1)$$

όπου  $c$  η ταχύτητα του φωτός,  $e$  το στοιχειώδες ηλεκτρικό φορτίο,  $z$  ο αριθμός φορτίου και

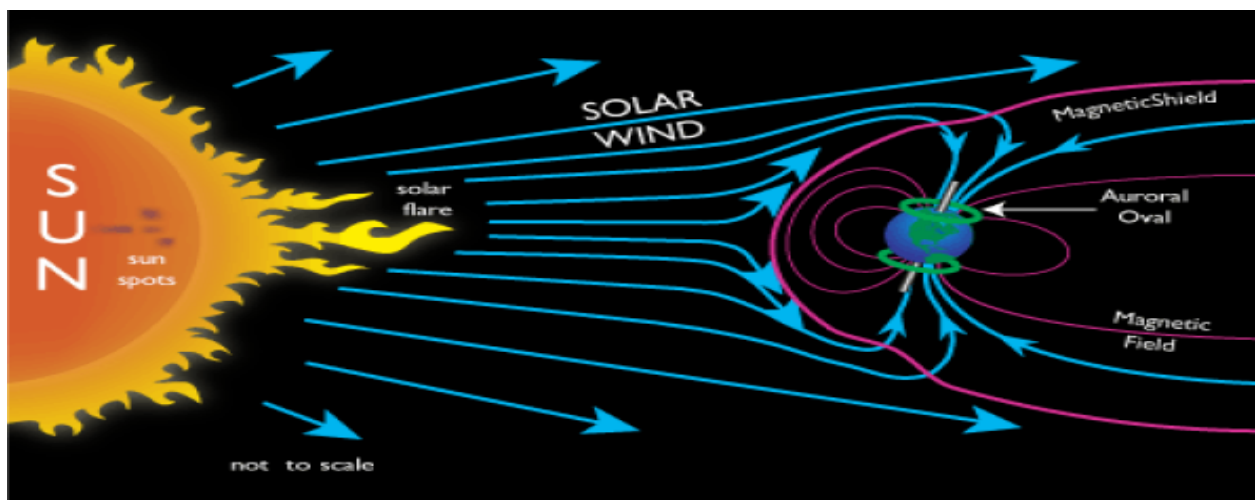
$P$  η ορμή του σωματιδίου. Κάθε γεωγραφικό πλάτος χαρακτηρίζεται από μία κρίσιμη τιμή του μεγέθους  $R$ , η οποία συμβολίζεται με  $R_c$ . Σωματίδια με τιμή του μεγέθους  $R$  μικρότερη από αυτή της  $R_c$  σε κάποιο γεωγραφικό πλάτος δε μπορούν να φτάσουν σε αυτό το γεωγραφικό πλάτος με την ενέργεια που διαθέτουν. Για παράδειγμα σωματίδια με  $R < 15$  GV, το οποίο αντιστοιχεί σε σωματίδια με ενέργεια  $E < 14$  GeV, δε μπορούν να φτάσουν στον ισημερινό (Cooke et al., 1991).

Τέλος, η ηλιακή δραστηριότητα επηρεάζει και αυτή την ένταση της κοσμικής ακτινοβολίας, η οποία προσπίπτει στη γήινη ατμόσφαιρα. Η επιρροή αυτή οφείλεται κυρίως στον εντεκαετή κύκλο του ήλιου. Συγκεκριμένα, η αύξηση της ηλιακής δραστηριότητας δρα ως θωράκιση από τις κοσμικές ακτίνες, μειώνοντας την ένταση της γαλαξιακής κοσμικής ακτινοβολίας, η οποία προσπίπτει στην ατμόσφαιρα. Βέβαια, η αύξηση της ηλιακής δραστηριότητας αυξάνει το ποσοστό της ηλιακής κοσμικής ακτινοβολίας, που προσβάλλει τη Γη, όμως, το ποσοστό αυτό είναι μικρότερο, όπως αναλύθηκε και παραπάνω, από τη γαλαξιακή κοσμική ακτινοβολία, με αποτέλεσμα η συνολική ένταση της κοσμικής ακτινοβολίας να μειώνεται με αύξηση της ηλιακής δραστηριότητας, δηλαδή του ηλιακού ανέμου (Lal et al., 1958; Grieder, 2001; Young et al., 2008). Μία σχηματική αναπαράσταση της εξάρτησης της κοσμικής ακτινοβολίας, η οποία προσπίπτει στη Γη, από την ηλιακή δραστηριότητα φαίνεται στο Σχήμα 2.8.

Η εξάρτηση της έντασης της κοσμικής ακτινοβολίας από αυτούς τους παράγοντες μεταφέρεται και στο ρυθμό παραγωγής ραδιενεργών ισοτόπων από την κοσμική ακτινοβολία. Με λίγα λόγια, αν για έναν από τους παραπάνω λόγους, η ατμόσφαιρα της Γης προσβάλλεται από μικρότερο ποσοστό της κοσμικής ακτινοβολίας, τότε παράγονται και λιγότερα ραδιενεργά ισότοπα κοσμικής προέλευσης. Στις παραγράφους που ακολουθούν δίνονται στοιχεία για ορισμένα σημαντικά ισότοπα κοσμικής προέλευσης.



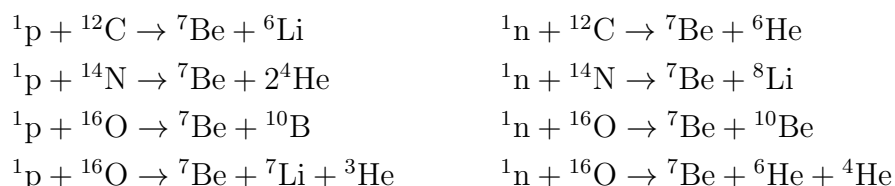
Σχήμα 2.7: Επίδραση του γεωμαγνητικού πεδίου στον τρόπο με τον οποίο προσβάλλουν οι κοσμικές ακτίνες τη γήινη ατμόσφαιρα.



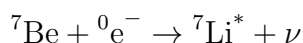
Σχήμα 2.8: Επίδραση της ηλιακής δραστηριότητας στην ένταση της κοσμικής ακτινοβολίας που προσβάλλει τη Γη.

### 2.3.2 Το Βηρύλλιο-7

Το ισότοπο  ${}^7\text{Be}$  είναι προϊόν αντιδράσεων κατακερματισμού των πυρήνων  ${}^{12}\text{C}$ ,  ${}^{14}\text{N}$ ,  ${}^{16}\text{O}$  με τα σωματίδια της κοσμικής ακτινοβολίας. Βέβαια, σύμφωνα με όσα ειπώθηκαν παραπάνω, το μεγαλύτερο ποσοστό των κοσμικών ισωτόπων παράγεται με τα νετρόνια χαμηλής ενέργειας ( $100 - 200 \text{ MeV}$ ). Οι αντιδράσεις κατακερματισμού, από τις οποίες παράγεται το  ${}^7\text{Be}$  στην ατμόσφαιρα, παρουσιάζονται παρακάτω (Papastefanou, 2011).

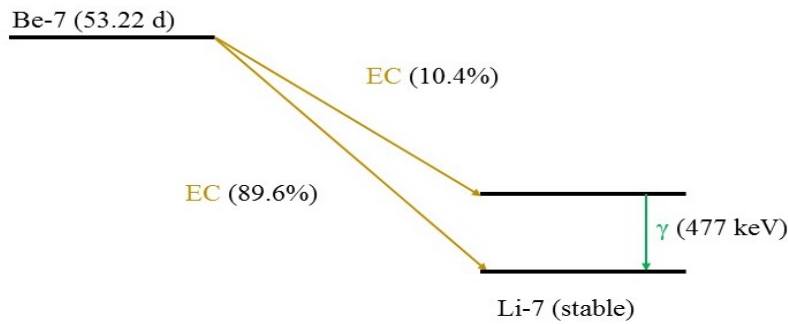


Το  ${}^7\text{Be}$  είναι ραδιενεργός πυρήνας, ο οποίος μεταστοιχείωνεται σε  ${}^7\text{Li}$  με την αντίδραση σύλληψης ηλεκτρονίου (Electron Capture), η οποία παρουσιάζεται παρακάτω.



Ο χρόνος ημιζωής του ισωτόπου είναι  $T_{1/2} = 53.3 \text{ d}$ . Κατά τις αντιδράσεις σύλληψης ηλεκτρονίου δεν εκπέμπονται φωτόνια, όμως υπάρχει μεγάλη πιθανότητα ο θυγατρικός πυρήνας να προκύψει σε διεγερμένη κατάσταση, οπότε να εκπέμψει ακτινοβολία-γ μεταπίπτωντας στη σταθερή του κατάσταση. Σε αυτήν ακριβώς την περίπτωση ανήκει και το  ${}^7\text{Be}$ . Με την αντίδραση σύλληψης ηλεκτρονίου το  ${}^7\text{Be}$  διασπάται σε σταθερό πυρήνα  ${}^7\text{Li}$  με ποσοστό εκπομπής 89.6% ή σε διεγερμένο πυρήνα  ${}^7\text{Li}$  με ποσοστό εκπομπής 10.4%. Ο πυρήνας αυτός διασπάται μετά από 0.7 fs εκπέμποντας φωτόνιο ενέργειας 477 keV (Brown et al., 2018). Συνεπώς, από το 10.4% των διασπάσεων του  ${}^7\text{Be}$  εκπέμεπται σχεδόν ακαριαία και ένα φωτόνιο-γ, το οποίο μπορεί να χρησιμοποιηθεί για την ανίχνευση του ισωτόπου με γ-φασματοσκοπία. Το σχήμα της ραδιενεργούς διάσπασης του  ${}^7\text{Be}$  φαίνεται στο Σχήμα 2.9.

Σε αυτό το σημείο πρέπει να τονισθεί ότι ο μοναδικός μηχανισμός παραγωγής του  ${}^7\text{Be}$  είναι αυτός που περιγράφηκε παραπάνω. Δεν υπάρχει, δηλαδή, καμία άλλη φυσική ή τεχνητή πηγή, από την οποία παράγεται το ισότοπο αυτό και να απελευθερώνεται στην ατμόσφαιρα. Το γεγονός αυτό αποτελεί αφορμή για επιστημονικές μελέτες, οι οποίες χρησιμοποιούν το  ${}^7\text{Be}$  ως ιχνηλάτη των ατμοσφαιρικών διεργασιών μεταφοράς αέριων μαζών μεταξύ των περιοχών της ατμόσφαιρας. Συγκεκριμένα, το  ${}^7\text{Be}$ , όπως και τα περισσότερα στερεά ισότοπα της ατμόσφαιρας,



Σχήμα 2.9: Σχηματική αναπαράσταση της διάσπασης του  ${}^7\text{Be}$

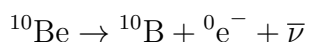
προσκολλώνται στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα, με αποτέλεσμα να συμμετέχουν στην κίνηση του ατμοσφαιρικού αέρα. Η μέγιστη παραγωγή  ${}^7\text{Be}$  λαμβάνει χώρα περίπου στα 20 *km* από την επιφάνεια της Γης, δηλαδή στην περιοχή της στρατόσφαιρας. Όμως, όπως φαίνεται και στον Πίνακα 2.2, οι μεγαλύτερες συγκεντρώσεις ανιχνεύονται στην τροπόσφαιρα, γεγονός το οποίο οδηγεί στο συμπέρασμα ότι στην τροπόσφαιρα υπάρχει αέρας στρατοσφαιρικής προέλευσης (Dutkiewicz and Husain, 1985; Kritz et al., 2008). Η κύρια διεργασία, μέσω της οποίας το στρατοσφαιρικό  ${}^7\text{Be}$  καταλήγει στην τροπόσφαιρα είναι η αναδίπλωση της τροπόπαισης.

Πίνακας 2.2: Μέση τιμή συγκεντρώσεων ραδιενέργειας του  ${}^7\text{Be}$ , η οποία υπολογίστηκε από μετρήσεις στο επίπεδο της στρατόσφαιρας και της τροπόσφαιρας σε τέσσερις τοποθεσίες (Dutkiewicz and Husain, 1985).

Sites	Be-7 Concentration			Stratospheric (%)
	(mBq/m <sup>3</sup> )			
	Stratospheric	Tropospheric	Total	
Moosonee	0.78	2.04	2.81	27%
New York	0.89	2.81	3.70	24%
Rocky Flants	1.18	4.00	5.18	23%
Livermore	1.59	4.33	5.92	27%

### 2.3.3 Το Βηρύλλιο-10

Το  $^{10}\text{Be}$  είναι ένα ακόμα ραδιενεργό ισότοπο του Βηρυλλίου. Ο χρόνος ημιζωής του ισοτόπου αυτού είναι  $T_{1/2} = 1.5 \cdot 10^6 \text{ y}$  και η ραδιενέργειά του οφείλεται εξ' ολοκλήρου (yield=100%) σε διάσπαση- $\beta^-$ . Η μέγιστη ενέργεια του φάσματος της ακτινοβολίας- $\beta^-$  είναι  $E_{\beta, \max} = 556.2 \text{ keV}$  (Brown et al., 2018).



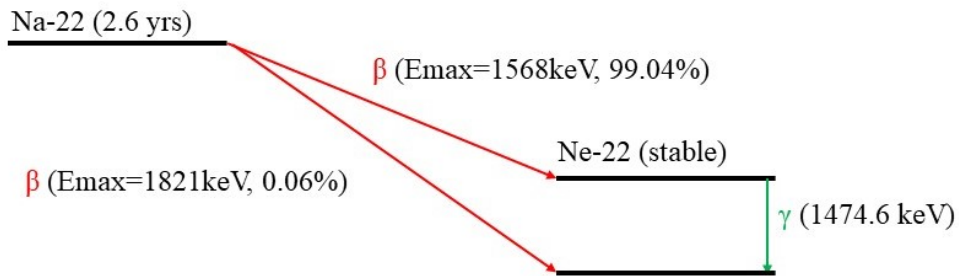
Όπως το  $^7\text{Be}$ , έτσι και το  $^{10}\text{Be}$  είναι ισότοπο κοσμικής προέλευσης. Η προέλευση του είναι ίδια με αυτή του  $^7\text{Be}$ , δηλαδή παράγεται από αντιδράσεις κατακερματισμού των πυρήνων  $^{14}\text{N}$ ,  $^{16}\text{O}$  της ατμόσφαιρας. Το συγκεκριμένο ισότοπο έχει πολύ μεγάλο χρόνο ημιζωής ( $T_{1/2} = 1.5 \cdot 10^6 \text{ y}$ ), γεγονός που το καθιστά ενδιαφέρον για πολλές εφαρμογές στους τομείς της γεωλογίας, παγετολογίας, ωκεανογραφίας και της αρχαιολογίας. Δύο πολύ ενδιαφέρουσες εφαρμογές του είναι η χρήση του για τον προσδιορισμό της ηλιακής δραστηριότητας και για τη χρονολόγηση των πάγων. Η ανίχνευσή του, βέβαια, γίνεται μόνο με φασματοσκοπία μάζας με χρήση επιταχυντή (Accelerator Mass Spectrometry, AMS), εξ' αιτίας του πολύ μεγάλου χρόνου ημιζωής (McHargue and Damon, 1991). Η συγκεκριμένη μέθοδος παρόλο που έχει μεγάλο κόστος, όμως τα τελευταία χρόνια έχει αναπτυχθεί ιδιαίτερα, με αποτέλεσμα να προσφέρει μετρήσεις υψηλής αξιοπιστίας. Η διαδικασία ανίχνευσης του  $^{10}\text{Be}$ , με τη μέθοδο AMS είναι αντίστοιχη με αυτή για τη ανίχνευση του  $^{14}\text{C}$ .

Στα πρώτα στάδια παραγωγής των δύο ισοτόπων του *Be* στην ατμόσφαιρα, ο λόγος της συγκέντρωσης του  $^{10}\text{Be}$  προς τη συγκέντρωση του  $^7\text{Be}$  είναι περίπου ίσος με 0.5. Στη συνέχεια, όμως, επειδή το  $^7\text{Be}$  διασπάται πολύ πιο γρήγορα ο λόγος να αυξάνεται (Raisbeck et al., 1981).

### 2.3.4 Το Νάτριο-22

Το  $^{22}\text{Na}$  είναι και αυτό ένα ισότοπο κοσμικής προέλευσης, το οποίο παράγεται από αντιδράσεις κατακερματισμού των πυρήνων Αργού (*Ar*) που υπάρχουν στην ατμόσφαιρα. Οι σχετικές πυρηνικές αντιδράσεις είναι της μορφής  $^{40}\text{Ar}(p, X)^{22}\text{Na}$  και  $^{40}\text{Ar}(n, X)^{22}\text{Na}$ .

Γενικά, το Νάτριο έχει 21 γνωστά ισότοπα, εκ των οποίων μόνο το  $^{23}\text{Na}$  είναι σταθερό. Το  $^{22}\text{Na}$  μεταστοιχειώνεται σε  $^{22}\text{Ne}$  με διάσπαση- $\beta^+$  με ποσοστό εκπομπής σχεδόν 100%. Ο χρόνος ημιζωής του ισοτόπου είναι  $T_{1/2} = 2.6 \text{ y}$  (Brown et al., 2018).



Σχήμα 2.10: Σχηματική αναπαράσταση της διάσπασης του  $^{22}\text{Na}$



Ο πυρήνας  $^{22}\text{Ne}$ , ο οποίος προκύπτει από την παραπάνω αντίδραση, βρίσκεται σε διεγερμένη κατάσταση, στην οποία παραμένει για  $3\text{ps}$ . Στη συνέχεια, αποδιεγείρεται στη στοιχειώδη κατάσταση εκπέμποντας ακτινοβολία- $\gamma$ , ενέργειας  $1274.6\text{ keV}$ . Βέβαια, πρέπει να αναφερθεί ότι ένα ποσοστό, περίπου  $0.06\%$ , του  $^{22}\text{Na}$  μεταστοιχειώνεται απ' ευθείας στη στοιχειώδη κατάσταση του  $^{22}\text{Ne}$ . Σχηματικά η διάσπαση του  $^{22}\text{Na}$  παρουσιάζεται στο Σχήμα 2.10.

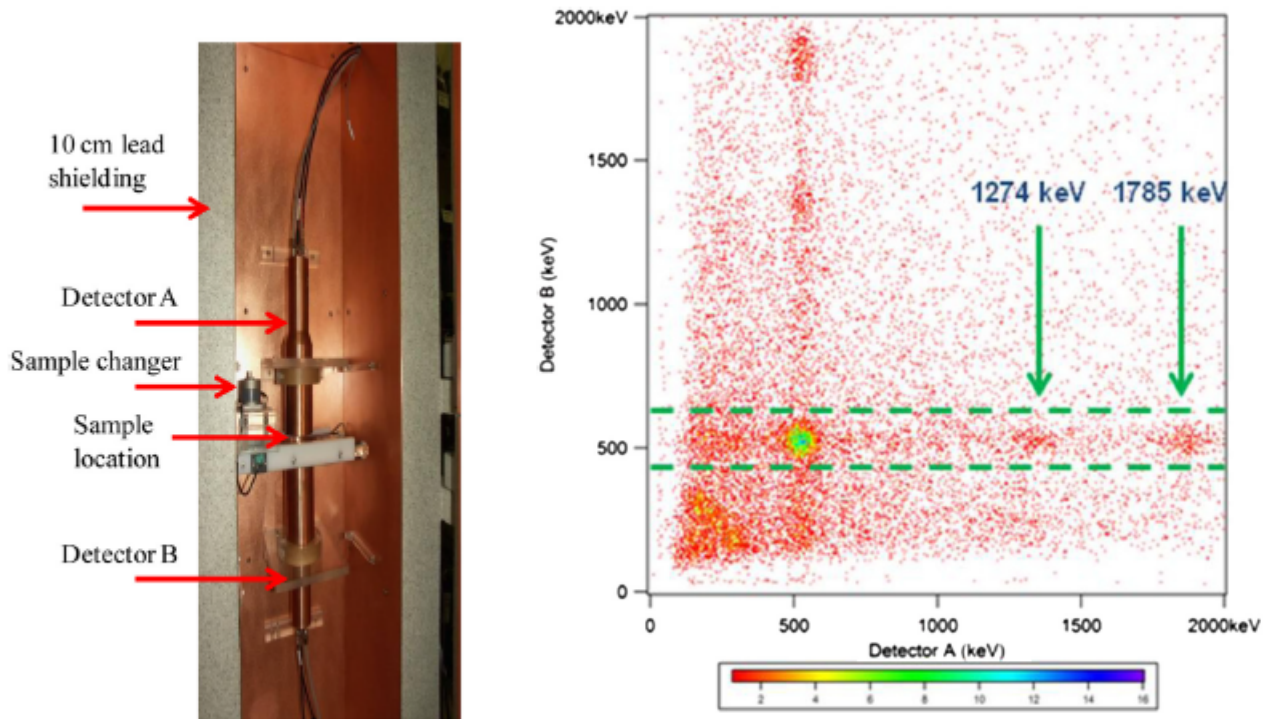
Παρ' όλη την ομοιότητα που παρουσιάζουν τα ισότοπα  $^{22}\text{Na}$ ,  $^7\text{Be}$ , όσον αφορά την προέλευσή τους στην ατμόσφαιρα, η ανίχνευση του  $^{22}\text{Na}$  είναι πολύ πιο δύσκολη. Συγκεκριμένα, το  $^{22}\text{Na}$  παράγεται στην ατμόσφαιρα μόνο από πυρήνες  $^{40}\text{Ar}$ , των οποίων η συγκέντρωση στην ατμόσφαιρα είναι πολύ μικρή (Beer, 2009). Επιπλέον, το  $^7\text{Be}$  παράγεται από πυρηνικές αντιδράσεις με περισσότερους πυρήνες. Τελικά, η συγκέντρωση  $^{22}\text{Na}$  στην ατμόσφαιρα προκύπτει έως και τέσσερις τάξεις μεγέθους μικρότερη από τη συγκέντρωση του  $^7\text{Be}$ . Η δυσκολία, όμως, στην ανίχνευση δεν περιορίζεται μόνο στον παράγοντα της συγκέντρωσης. Για την ανίχνευση του  $^{22}\text{Na}$  χρησιμοποιείται η μέθοδος της φασματοσκοπίας- $\gamma$ , δηλαδή σκοπός είναι η ανίχνευση φωτοκορυφής στα  $1274.5\text{ keV}$ . Η ενέργεια αυτή είναι πολύ κοντά στην αιχμή Compton της φωτοκορυφής των  $1460.8\text{ keV}$ , η οποία είναι η κύρια φωτοκορυφή του  $^{40}\text{K}$  (Savva et al., 2018).

Όπως προαναφέρθηκε, το  $^{22}\text{Na}$  μεταστοιχειώνεται με διάσπαση- $\beta^+$ . Το ποζιτρόνιο, το οποίο

εκπέμπεται από τη διάσπαση αυτή εξαϋλώνεται όταν συναντά ένα ηλεκτρόνιο κατά την πορεία του μέσα στην ύλη. Κατά την εξαϋλωση εκπέμπονται δύο φωτόνια ενέργειας 511 keV. Λαμβάνοντας υπόψη την παραπάνω παρατήρηση, καθώς και ότι η αποδιέγερση του πυρήνα  $^{22}\text{Ne}$  γίνεται σχεδόν ταυτόχρονα με τη διάσπαση- $\beta^+$  του πυρήνα  $^{22}\text{Na}$  προκύπτει ότι κατά τη μεταστοιχείωση του  $^{22}\text{Na}$  εκπέμπονται πρακτικά ταυτόχρονα ένα φωτόνιο ενέργειας 1274.6 και δύο φωτόνια 511 keV. Πρόσφατες έρευνες εκμεταλλεύονται αυτό το γεγονός με σκοπό να ξεπεράσουν τις δυσκολίες, που αναφέρθηκαν παραπάνω για την ανίχνευση του ισοτόπου. Οι διατάξεις, οι οποίες εκμεταλλεύονται αυτή την ιδιότητα ονομάζονται φασματόμετρα  $\gamma$ - $\gamma$  σύμπτωσης/αντισύμπτωσης (gamma-gamma coincidence/anticoincidence spectrometer). Η εφαρμογή αυτών των διατάξεων βελτιώνει τα κατώτερα επίπεδα ανίχνευσης του  $^{22}\text{Na}$  και ως εκ τούτου δίνουν αποτελέσματα υψηλότερης ακρίβειας (Zhang et al., 2018). Στο Σχήμα 2.11 παρουσιάζεται τόσο η διάταξη του φασματόμετρου, το οποίο περιγράφηκε, όσο και μία τυπική απεικόνιση των αποτελεσμάτων της φασματοσκοπικής ανάλυσης από τους δύο ανιχνευτές σε αρχική φάση. Αξίζει, σε αυτό το σημείο να σημειωθεί, ότι κατά την καταμέτρηση του  $^{22}\text{Na}$  ανιχνεύονται τρεις φωτοκορυφές. Η πρώτη βρίσκεται στα 511 keV και οφείλεται στα φωτόνια εξαϋλωσης του ποζιτρονίου, η δεύτερη βρίσκεται στα 1274.6 keV και οφείλεται στην αποδιέγερση του πυρήνα  $^{22}\text{Ne}$  και, τέλος, ανιχνεύεται και φωτοκορυφή στα  $1274.6+511=1785.6$  keV, η οποία οφείλεται σε ταυτόχρονη ανίχνευση φωτονίων ενέργειας 1274.6 και 511 keV (Zhang et al., 2014).

Η ανίχνευση του  $^{22}\text{Na}$  παρουσιάζει ενδιαφέρον, καθώς ο λόγος των συγκεντρώσεων  $^{22}\text{Na}/^7\text{Be}$  μπορεί να χρησιμοποιηθεί ως ιχνηλάτης των ατμοσφαιρικών διεργασιών, οι οποίες λαμβάνουν χώρα μεταξύ τροπόσφαιρας και στρατόσφαιρας. Σημαντικό πλεονέκτημα για αυτή την εφαρμογή είναι το γεγονός ότι το  $^{22}\text{Na}$  ανιχνεύεται με τεχνικές  $\gamma$ -φασματοσκοπίας, σε αντίθεση με το  $^{10}\text{Be}$ , το οποίο ανιχνεύεται μόνο με τη μέθοδο AMS. Με αυτή την παρατήρηση ως βασικό άξονα έχουν γίνει μελέτες ώστε να εξετασθεί η εξάρτηση του λόγου  $^{22}\text{Na}/^7\text{Be}$  από διάφορους περιβαλλοντικούς παράγοντες και από το χρόνο (Leppänen et al., 2008). Στον Πίνακα 2.3 παρουσιάζεται μία σύγκριση των ραδιενεργειών των κοσμικών ισοτόπων  $^{22}\text{Na}$  και  $^7\text{Be}$  με το ισότοπο  $^{210}\text{Pb}$ . Είναι φανερό πως το  $^7\text{Be}$  υπερέχει των άλλων δύο και μάλιστα με μέγιστη διαφορά τριών τάξεων μεγέθους.





Σχήμα 2.11: Εγκατάσταση και φάσμα του φασματόμετρου γ-γ σύμπτωσης/αντισύμπτωσης(Zhang et al., 2014).

Πίνακας 2.3: Μέσες τιμές ραδιενέργειας στην ατμόσφαιρα για τα ισότοπα  $^{22}\text{Na}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  σε δύο ζώνες γεωγραφικού πλάτους (Bhandari et al., 1970)

Latitude Belt ( $^{\circ}\text{N}$ )	Concentration ( $\text{mBq}/\text{std.m}^3$ )		
	$^7\text{Be}$	$^{22}\text{Na}$	$^{210}\text{Pb}$
0-15	1.20E+07	4.80E+03	2.04E+04
30-70	3.24E+07	5.40E+03	9.24E+04

## 2.4 Ανθρωπογενή-τεχνητά ραδιενεργά ισότοπα

### 2.4.1 Τρόποι απελευθέρωσης ραδιενεργών ισοτόπων από ανθρώπινες διεργασίες

Ως ανθρωπογενή-τεχνητά ραδιενεργά ισότοπα χαρακτηρίζονται τα ισότοπα, τα οποία παράγονται από ανθρώπινες διαδικασίες. Οι κυριότερες από αυτές τις διαδικασίες είναι η παραγωγή ηλεκτρικής ενέργειας μέσω πυρηνικών αντιδραστήρων και οι δοκιμές πυρηνικών όπλων (πυρηνικές δοκιμές). Τόσο στις πυρηνικές δοκιμές όσο και στους πυρηνικούς αντιδραστήρες αξιοποιείται η ενέργεια, η οποία απελευθερώνεται από τις αντιδράσεις πυρηνικής σχάσης.

Η πυρηνική αντίδραση της σχάσης πρόκειται για μία εξώθερμη αντίδραση κατά την οποία βαρείς πυρήνες διασπώνται σε ελαφρύτερους. Οι πυρήνες, οι οποίοι παράγονται κατά τη σχάση είναι περισσότερο πιθανό να είναι ανόμοιου μεγέθους. Επιπλέον, το μεγαλύτερο ποσοστό των ισοτόπων που παράγονται κατά τις αντιδράσεις σχάσης είναι ραδιενεργό (Walton, 1961). Μάλιστα, αρκετά από αυτά τα ισότοπα έχουν αρκετά μεγάλο χρόνο ημιζωής, με αποτέλεσμα να είναι ανιχνεύσιμα στον ατμοσφαιρικό αέρα, εάν απελευθερωθούν στην ατμόσφαιρα. Οι τρόποι απελευθέρωσης των ανθρωπογενών ισοτόπων στην ατμόσφαιρα είναι τέσσερις. Οι δύο σημαντικότεροι, οι οποίοι απελευθερώνουν και τις μεγαλύτερες συγκεντρώσεις, είναι οι υπέργειες πυρηνικές δοκιμές, οι οποίες έλαβαν χώρα για σχεδόν τρεις δεκαετίες και τα πυρηνικά ατυχήματα, με αντιπροσωπευτικότερα αυτά του Chernobyl και της Fukushima. Οι ελεγχόμενες απώλειες των πυρηνικών αντιδραστήρων και των εργοστασίων επεξεργασίας πυρηνικού καυσίμου αποτελούν τους δύο λιγότερους σημαντικούς λόγους, από άποψη συγκέντρωσης, απελευθέρωσης τεχνητών ραδιενεργών ισοτόπων στην ατμόσφαιρα.

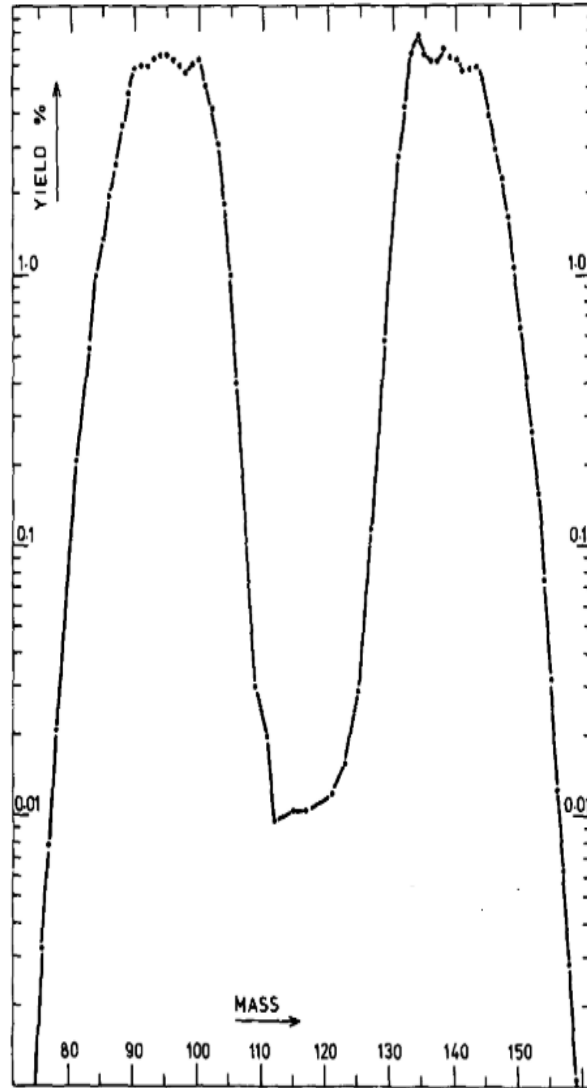
Ένα τεχνητό ραδιενεργό ισότοπο έχει δύο πιθανούς τρόπους παραγωγής σε μία εγκατάσταση. Ο πρώτος τρόπος είναι ο άμεσος, κατά τον οποίο το ισότοπο εμφανίζεται ως προϊόν της πυρηνικής σχάσης. Ο δεύτερος αποτελεί τον έμμεσο τρόπο παραγωγής, κατά τον οποίο το ισότοπο δεν εμφανίζεται στα προϊόντα της πυρηνικής σχάσης, αλλά είναι προϊόν μεταστοιχείωσης κάποιου πυρήνα, ο οποίος είναι είτε ο ίδιος, είτε κάποιος πατρικός του πυρήνας προϊόν πυρηνικής σχάσης.

Οι κυριότεροι πυρήνες, που χρησιμοποιούνται ως αντιδρώντα για τις πυρηνικές αντιδράσεις

σχάσης είναι το  $^{235}\text{U}$  και το  $^{239}\text{Pu}$ . Στο άρθρο του Crouch (1977) δίδονται τα ποσοστά εκπομπής ραδιενεργών ισοτόπων από σχάσεις διαφόρων πυρήνων με νετρόνια, τα οποία κατηγοριοποιεί σε τρία εύρη ενέργειας. Στο Σχήμα 2.12 αποτυπώνεται η πιθανότητα να εκπεμφθεί ως προϊόν σχάσης ένα στοιχείο μαζικού αριθμού  $A$  κατά τη σχάση  $^{235}\text{U}$  από θερμικά νετρόνια. Τα αντίστοιχα διαγράμματα για σχάσεις άλλων στοιχείων ή/και για διαφορετικές ενέργειες νετρονίων έχουν την ίδια μορφή με αυτή της καμπύλης στο Σχήμα 2.12. Η μορφή αυτή επιβεβαιώνει ότι τα προϊόντα σχάσης είναι περισσότερο πιθανό να είναι ανόμοιου μεγέθους.

Τα πιθανά ραδιενεργά ισότοπα, τα οποία είναι δυνατόν να παραχθούν κατά τις αντιδράσεις σχάσεως είναι περίπου 200. Σε περίπτωση πυρηνικού ατυχήματος τα ισότοπα  $^{131}\text{I}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  είναι αυτά με τη μεγαλύτερη ραδιενέργεια (Nations, 2011; Chino et al., 2011). Σε μία πυρηνική δοκιμή τα ισότοπα αυτά μπορεί να φτάσουν έως το επίπεδο της στρατόσφαιρας ανάλογα την ένταση της πυρηνικής έκρηξης. Ο κίνδυνος από τα ισότοπα αυτά έγινε κατανοητός από τις πυρηνικές δοκιμές των ΗΠΑ και της πρώην Σοβιετικής Ένωσης κατά τις δεκαετίες 1950 και 1960. Οι πυρηνικές δοκιμές του 1962 έλαβαν μεγάλη έκταση, με αποτέλεσμα να υπογραφεί συμφωνία για την απογόρευση των επίγειων πυρηνικών δοκιμών στις 5 Αυγούστου 1962, στη Γενεύη. Υπολογίζεται ότι η συνολική ραδιενέργεια που απελευθερώθηκε στην ατμόσφαιρα την περίοδο των πυρηνικών δοκιμών (1952-1981) είναι  $8.6 \cdot 10^4 \text{ PBq}$ . Παρόλ' αυτά, υπόγειες πυρηνικές δοκιμές εξακολουθούν να γίνονται ακόμα και σήμερα (Gaber et al., 2017). Κατά τις πυρηνικές αυτές εκρήξεις δεν απελευθερώνονται στην ατμόσφαιρα στερεά ραδιενεργά ισότοπα, όμως διαφεύγουν στην ατμόσφαιρα τα ραδιενεργά ευγενή αέρια  $^{85}\text{Kr}$  και  $^{37}\text{Ar}$ . Μάλιστα, το  $^{85}\text{Kr}$  αποτελεί και ελεγχόμενη απώλεια των πυρηνικών αντιδραστήρων, αλλά και των μονάδων επεξεργασίας του πυρηνικού καυσίμου (Gäggeler, 2015).

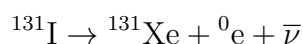
Στις παραγράφους που ακολουθούν δίνονται περισσότερες λεπτομέρειες για τα πιο ενδιαφέροντα από ραδιοβιολογική άποψη ισότοπα σχάσεως τα οποία ανιχνεύονται στην ατμόσφαιρα.



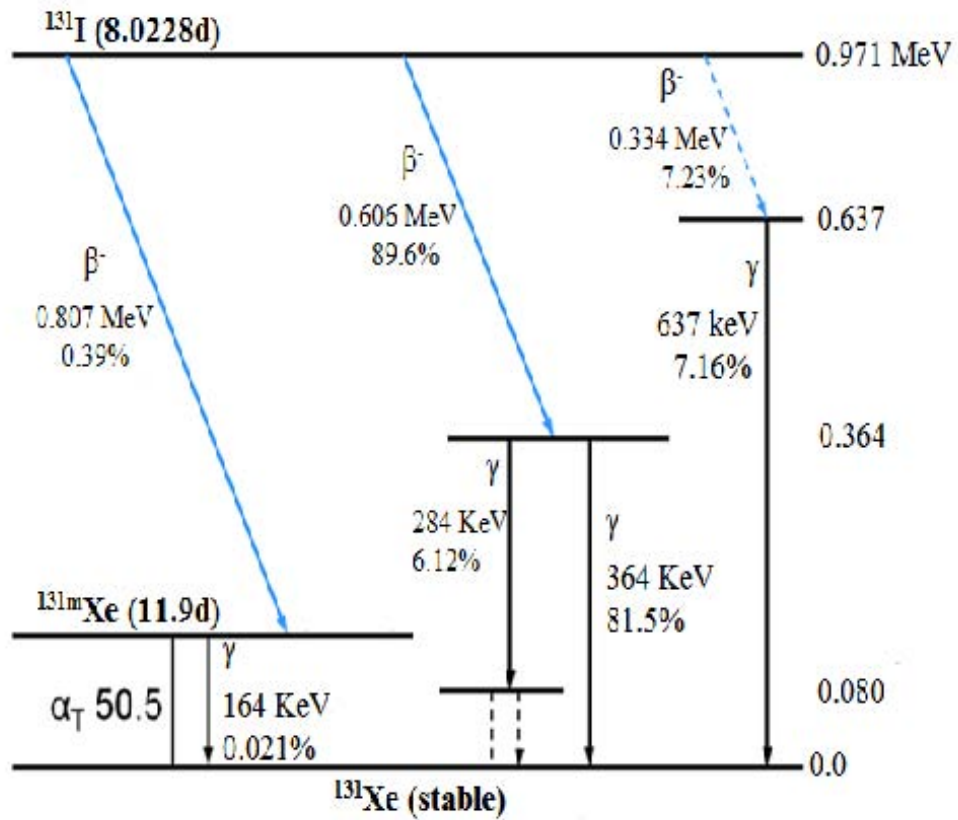
Σχήμα 2.12: Καμπύλη ποσοστού εκπομπής προϊόντων σχάσης συναρτήσει του μαζικού αριθμού για σχάση  $^{235}\text{U}$  από θερμικά νετρόνια (Crouch, 1977).

## 2.4.2 Το Ιώδιο-131

Το ιώδιο έχει 24 ραδιενεργά ισότοπα, τα οποία αναγράφονται συνοπτικά στη βιβλιογραφία ως ραδιοιώδιο και παράγονται άμεσα ή έμμεσα από τις αντιδράσεις σχάσεως. Η έμμεση παραγωγή γίνεται από διάσπαση ισοτόπων τελουρίου (*Te*) (Chamberlain, 1991, p. 115). Το  $^{131}\text{I}$  παράγεται άμεσα από σχάσεις  $^{235}\text{U}$  με θερμικά νετρόνια με ποσοστό εκπομπής 2.8% (Crouch, 1977). Το συγκεκριμένο ισότοπο μεταστοιχειώνεται με διάσπαση- $\beta^-$  σε  $^{131}\text{Xe}$ . Ο παραγόμενος πυρήνας στο 81.7% των περιπτώσεων προκύπτει σε διεγερμένη κατάσταση και αποδιεγείρεται με εκπομπή ακτινοβολίας- $\gamma$  ενέργειας 364 keV. Η ενέργεια αυτή χρησιμοποιείται για την ανίχνευση του ισότοπου με τεχνικές  $\gamma$ -φασματοσκοπίας. Ο χρόνος ημιζωής του  $^{131}\text{I}$  είναι  $T_{1/2} = 8d$ , ο οποίος το κατατάσσει στα βραχύβια τεχνητά ισότοπα, τα οποία απελευθερώνονται στο περιβάλλον μετά από ένα πυρηνικό ατύχημα (Brown et al., 2018). Το σχήμα διάσπασης του  $^{131}\text{I}$  παρουσιάζεται στο Σχήμα 2.13, ενώ η αντίδραση διάσπασης περιγράφεται από τη σχέση:



Η ραδιενέργεια από το  $^{131}\text{I}$  μπορεί να φτάσει πολύ υψηλά επίπεδα, γι αυτό το λόγο είναι ένα από τα πρώτα ισότοπα, τα οποία ανιχνεύονται και μελετώνται σε περίπτωση ατυχήματος. Πρέπει να αναφερθεί ότι έχουν γίνει εξειδικευμένες μελέτες για την επίδραση του ισότοπου στον ανθρώπινο οργανισμό, οι οποίες το συσχετίζουν με τον καρκίνο του θυρεοειδούς (Ammann et al., 2007), ενώ όσον αφορά τις ραδιοβιολογικές του επιπτώσεις έχουν γίνει μελέτες για την εισχώρηση του ισότοπου στη χλωρίδα και στα τρόφιμα (Dreicer, 1988). Ενδεικτικά αναφέρεται ότι κατά το πυρηνικό ατύχημα του Chernobyl απελευθερώθηκαν συνολικά στην ατμόσφαιρα 1760 PBq  $^{131}\text{I}$  (Nations, 2011), ενώ στην περίπτωση της Fukushima η συνολική ραδιενέργεια  $^{131}\text{I}$ , που απελευθερώθηκε ήταν 150 PBq (Chino et al., 2011).



Σχήμα 2.13: Σχηματική αναπαράσταση της διάσπασης του  $^{131}\text{I}$  (Al-jubeh et al., 2012).

### 2.4.3 Το Καίσιο-137

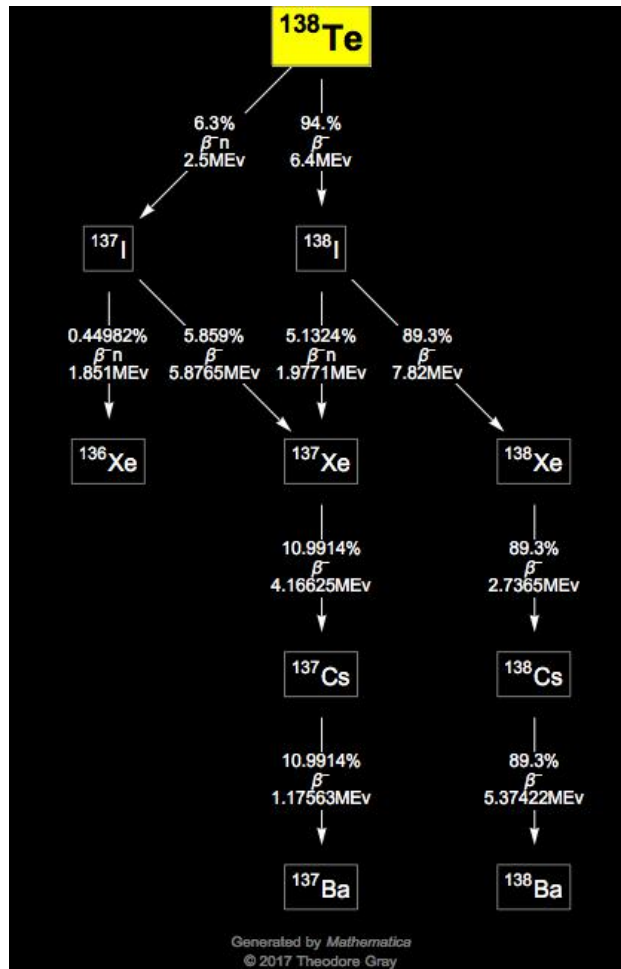
Το μοναδικό ισότοπο του καϊσίου, το οποίο είναι σταθερό είναι το  $^{133}\text{Cs}$ . Σε περίπτωση πυρηνικού ατυχήματος απελευθερώνονται στην ατμόσφαιρα όλα τα ισότοπα του καϊσίου, όμως το  $^{137}\text{Cs}$  είναι υψίστης σημασίας, διότι παρουσιάζει τη μεγαλύτερη συγκέντρωση σε σχέση με τα υπόλοιπα. Μάλιστα, το  $^{137}\text{Cs}$  είναι, όπως προαναφέρθηκε, στα τρία στοιχεία, τα οποία έχουν τη μεγαλύτερη ραδιενέργεια στην ατμόσφαιρα λίγες ώρες μετά το πυρηνικό ατύχημα (ή την πυρηνική δοκιμή). Συγκεκριμένα, στο ατύχημα του Chernobyl απελευθερώθηκαν στην ατμόσφαιρα 85 PBq  $^{137}\text{Cs}$  (Nations, 2011; Cambray et al., 1987), ενώ στο ατύχημα της Fukushima απελευθερώθηκαν συνολικά 12 PBq (Chino et al., 2011).

Ένας άλλος παράγοντας, ο οποίος καθιστά το  $^{137}\text{Cs}$  ισότοπο ιδιαίτερου ενδιαφέροντος είναι ο πολύ μεγάλος χρόνος ημιζωής του, ο οποίος είναι  $T_{1/2} = 30.1y$ . Συνεπώς, το  $^{137}\text{Cs}$  είναι ένα τεχνητό ισότοπο, το οποίο, ενώ δεν υπήρχε στην ατμόσφαιρα, πλέον θα ανιχνεύεται για εκατοντάδες χρόνια ακόμα και αν δεν επανεκπεμφεί.

Το  $^{137}\text{Cs}$  παράγεται και αυτό είτε άμεσα είτε έμμεσα από τις αντιδράσεις σχάσης. Κατά την έμμεση παραγωγή του πατρικός πυρήνας είναι ο πυρήνας  $^{137}\text{Xe}$ , ο οποίος προέρχεται από το  $^{137}\text{I}$ , σχηματίζοντας, έτσι, μία μικρή ραδιενεργό αλυσίδα. Η αλυσίδα αυτή, όπως παρουσιάζεται στο Σχήμα 2.14, φαίνεται να ξεκινάει από το ισότοπο  $^{138}\text{Te}$ , το οποίο μπορεί να είναι άμεσο προϊόν σχάσης. Το ποσοστό άμεσης εκπομπής του  $^{137}\text{Cs}$  από σχάσεις  $^{235}\text{U}$  με θερμικά νετρόνια είναι περίπου 6% (Crouch, 1977), το οποίο θεωρείται υψηλό.

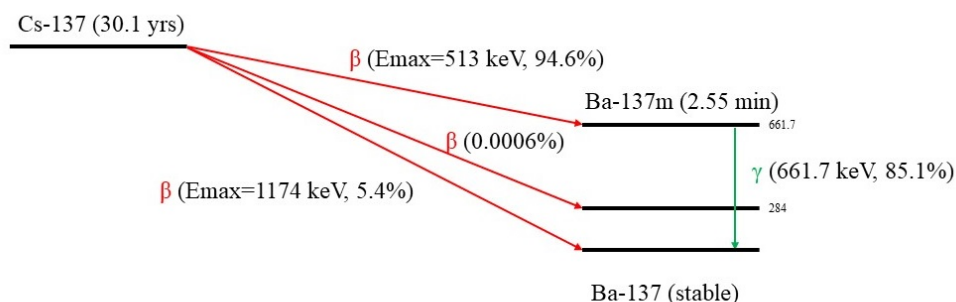
Η ραδιενέργεια του  $^{137}\text{Cs}$  οφείλεται στη μεταστοιχείωση αυτού του πυρήνα με διάσπαση- $\beta^-$  σε πυρήνα  $^{137}\text{Ba}$ , ο οποίος μπορεί να προκύψει είτε στη στοιχειώδη κατάσταση με πιθανότητα 5.4%, είτε σε διεγερμένη με πιθανότητα 94.6%. Στη δεύτερη περίπτωση, ο πυρήνας που προκύπτει θεωρείται μετασταθής, επειδή παραμένει στη διεγερμένη κατάσταση για χρονικό διάστημα 2.55ms και συμβολίζεται  $^{137m}\text{Ba}$ . Η πιθανότερη αποδιέγερση του  $^{137m}\text{Ba}$ , με ποσοστό εκπομπής 85.1%, είναι απ' ευθείας στη στοιχειώδη κατάσταση με εκπομπή φωτονίου ενέργειας 661.7 keV (Brown et al., 2018). Η ενέργεια αυτή χρησιμοποιείται για την ανίχνευση του  $^{137}\text{Cs}$  με γ-φασματοσκοπία. Η διάσπαση του  $^{137}\text{Cs}$  σε  $^{137}\text{Ba}$ , καθώς και οι αποδιεγέρσεις του  $^{137}\text{Ba}$  παρουσιάζονται στο Σχήμα 2.15, όπου φαίνονται και οι μέγιστες ενέργειες του φάσματος των σωματιδίων- $\beta^-$ .

Το  $^{137}\text{Cs}$  έχει και ιδιαίτερο ραδιοβιολογικό ενδιαφέρον, διότι παρουσιάζει χημική ομοιότητα με το κάλιο, το οποίο αποτελεί βασικό στοιχείο για τη χλωρίδα και τους έμβιους οργανισμούς. Συνεπώς, το  $^{137}\text{Cs}$  μπορεί να εισέλθει στην τροφική αλυσίδα ενός οικοσυστήματος και να λειτουργήσει ανταγωνιστικά με το κάλιο (Butler, 1980). Είναι λογικό, λοιπόν, οι συγκεντρώσεις



Σχήμα 2.14: Ραδιενεργός αλυσίδα τεχνητών ισωτόπων, στην οποία εντοπίζεται το  $^{137}\text{Cs}$ .



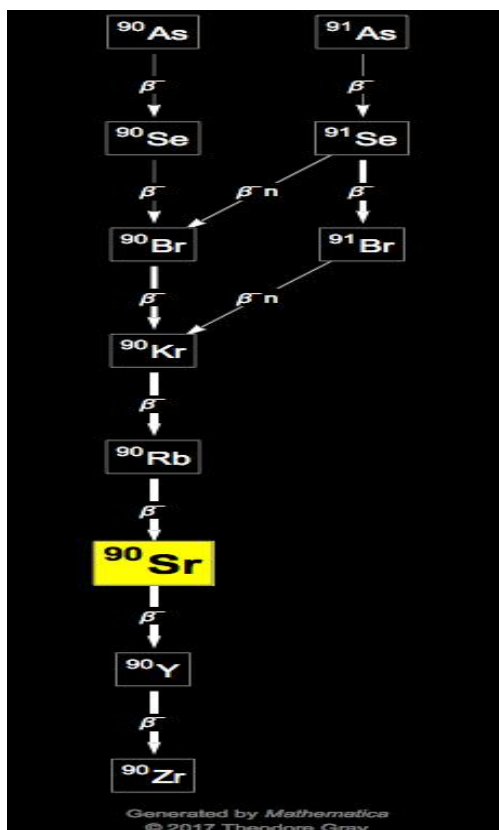


Σχήμα 2.15: Σχηματική αναπαράσταση της μεταστοιχείωσης του  $^{137}\text{Cs}$  σε  $^{137}\text{Ba}$

του  $^{137}\text{Cs}$  να έχουν προκαλέσει επιστημονικό ενδιαφέρον. Πλέον, η ποσότητα του  $^{137}\text{Cs}$ , το οποίο αιωρείται με το ατμοσφαιρικό αερόλυμα είναι πολύ μικρότερη από την αρχική και θεωρείται αμελητέα. Όμως, υπάρχει πιθανότητα επανεκπομπής του ήδη υπάρχοντος  $^{137}\text{Cs}$ , το οποίο έχει αποτεθεί στο έδαφος είτε με το μηχανισμό της επαναιώρησης είτε από τις πυρκαγιές και τις καύσεις βιομάζας (Bourcier et al., 2010). Όσον αφορά τις πυρκαγιές και τις καύσεις έχει αποδειχθεί ότι το  $^{137}\text{Cs}$  επανεκπέμπεται στην ατμόσφαιρα εξ' αιτίας της πτητικότητας, που αποκτά. Το ίδιο αποτέλεσμα ισχύει για άλλα ισότοπα όπως το  $^{131}\text{I}$  ή το  $^{40}\text{K}$ , το οποίο θα αναλυθεί παρακάτω (Paliouris et al., 1995; Amiro et al., 1996).

#### 2.4.4 Το Στρόντιο-90

Το στρόντιο ( $\text{Sr}$ ) ανήκει στην ίδια ομάδα του περιοδικού πίνακα με το ασβέστιο. Το τελευταίο έχει ιδιαίτερη σημασία στους έμβιους οργανισμούς, γεγονός που έρχεται σε αντίθεση με το στρόντιο, το οποίο δεν έχει κανέναν ρόλο στους οργανισμούς αυτούς. Εξ' αιτίας, όμως, της χημικής ομοιότητας των δύο αυτών στοιχείων το στρόντιο αντιμετωπίζεται από τον ανθρώπινο οργανισμό με τον ίδιο τρόπο που αντιμετωπίζεται και το ασβέστιο γι' αυτό έχει βρεθεί στρόντιο στα ανθρώπινα οστά. Πρέπει να αναφερθεί ότι το στρόντιο είναι ένα στοιχείο, το οποίο συναντάται στη φύση. Δεν είναι, δηλαδή, ένα αποκλειστικά τεχνητό στοιχείο. Σύμφωνα με τους Turekian and Kulp (1956) η αναλογία στρόντιου προς ασβέστιο είναι  $7 \pm 1$  προς 1000. Τα περισσότερα από τα ισότοπα του στρόντιου είναι ραδιενεργά, όμως δεν καταλαμβάνουν σημαντικό ποσοστό επί της σύστασης του φυσικού στρόντιου. Σχεδόν όλο το ποσοστό των ραδιενεργών ισωτόπων του στρόντιου, το οποίο ανιχνεύεται στην ατμόσφαιρα προέρχεται από τεχνητές



Σχήμα 2.16: Τεχνητές ραδιενεργές αλυσίδες, στις οποίες εμφανίζεται το  $^{90}\text{Sr}$  ως ενδιάμεσο προϊόν.

πηγές, δηλαδή πυρηνικά ατυχήματα και πυρηνικές δοκιμές.

Όπως προαναφέρθηκε, από άποψη μεγαλύτερης συγκέντρωσης στην ατμόσφαιρα, το σημαντικότερο ισότοπο του στρόντιου είναι το  $^{90}\text{Sr}$ . Όπως και οι προηγούμενοι τεχνητοί πυρήνες, έτσι και το  $^{90}\text{Sr}$  μπορεί να παραχθεί είτε άμεσα είτε έμμεσα από τις αντιδράσεις σχάσεως. Στο Σχήμα 2.16 φαίνονται δύο τεχνητές ραδιενεργές αλυσίδες, οι οποίες έχουν ως ενδιάμεσο προϊόν το  $^{90}\text{Sr}$  και καταλήγουν στο σταθερό πυρήνα  $^{90}\text{Zr}$ .

Η ραδιενέργεια του  $^{90}\text{Sr}$  οφείλεται στη διάσπαση- $\beta^-$  στον πυρήνα  $^{90}\text{Y}$  με ποσοστό εκπομπής σχεδόν 100%, σύμφωνα με την αντίδραση που ακολουθεί. Ο πυρήνας  $^{90}\text{Y}$  παράγεται στη θεμελιώδη κατάσταση, άρα δεν υπάρχουν εκπομπές φωτονίων- $\gamma$ . Η μέγιστη ενέργεια του φάσματος των σωματιδίων- $\beta^-$ , που εκπέμπονται είναι  $E_{max} = 546 \text{ keV}$ . Η απουσία εκπομπής ακτινοβολίας- $\gamma$  κατά τη ραδιενεργό διάσπαση αυτού του ισότοπου καθιστά την ανίχνευσή του δύσκολο και ταυτόχρονα σημαντικό ζήτημα. Ο μοναδικός τρόπος ανίχνευσής του είναι από το

φάσμα των σωματιδίων- $\beta^-$  με μεθόδους  $\beta$ -φασματοσκοπίας. Βέβαια, η απουσία των ακτίνων- $\gamma$  έχει και ένα θετικό αντίκτυπο. Τα σωματίδια- $\beta$  δεν είναι τόσο διεισδυτικά όσο τα σωματίδια- $\gamma$ . Αποθέτουν, δηλαδή, την ενέργειά τους σε μικρότερο βάθος, εισχωρώντας λιγότερο στα υλικά. Συνεπώς, ο πληθυσμός δεν κινδυνεύει από την εξωτερική ακτινοβολή λόγω του  $^{90}\text{Sr}$ , αλλά μόνο σε περίπτωση εισβολής του ισοτόπου στον οργανισμό μέσω της τροφικής αλυσίδας ή της εισπνοής. Για το  $^{90}\text{Sr}$  ο ευκολότερος δρόμος είναι μέσω την τροφικής αλυσίδας, εξ' αιτίας της 'συγγένειας' με το ασβέστιο. Τέλος, ένας ακόμα παράγοντας που καθιστά το  $^{90}\text{Sr}$  επικίνδυνο ισότοπο είναι ο χρόνος ημιζωής του  $T_{1/2} = 28.8 \text{ y}$ , ο οποίος το κατατάσσει στα μακρόβια ισότοπα ενός πυρηνικού ατυχήματος. Κατά το ατύχημα του Chernobyl απελευθερώθηκαν στην ατμόσφαιρα  $10 \text{ PBq } ^{90}\text{Sr}$  (Nations, 2011), τα οποία, λόγω του υψηλού χρόνου ημιζωής, υπάρχουν στο περιβάλλον ακόμα και σήμερα.

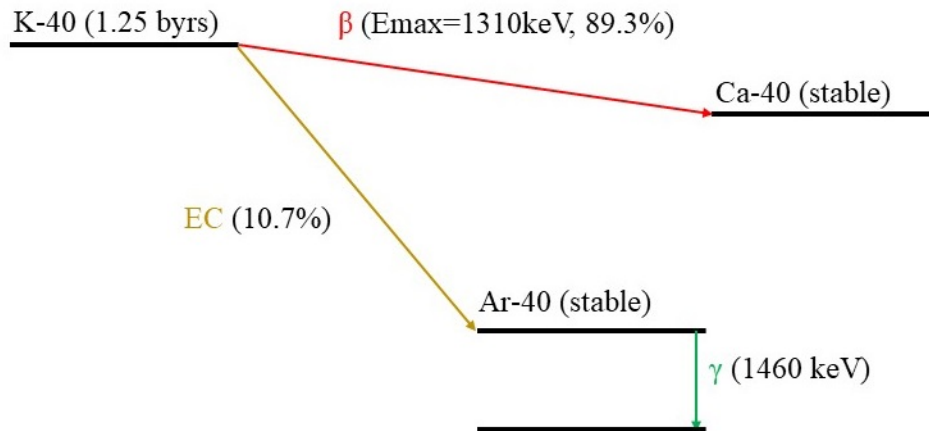
## 2.5 Άλλα φυσικά ραδιενεργά ισότοπα

### 2.5.1 Το Κάλιο-40

Το κάλιο είναι ένα χημικό στοιχείο, το οποίο υπάρχει στα φυσικά υλικά από τη δημιουργία της Γης. Μάλιστα, έχει και σημαντικό ρόλο στους φυσικούς οργανισμούς. Το φυσικό κάλιο αποτελείται από τρία ισότοπα, εκ των οποίων το  $^{40}\text{K}$  έχει το μικρότερο ποσοστό στην ισοτοπική σύσταση, περίπου 0.012%, και είναι το μοναδικό ραδιενεργό με χρόνο ημιζωής  $T_{1/2} = 1.25 \cdot 10^9 \text{ y}$ .

Το  $^{40}\text{K}$  διασπάται με δύο τρόπους. Η πρώτη πιθανή διάσπαση είναι μία μεταστοιχείωση- $\beta^-$  στο σταθερό πυρήνα  $^{40}\text{Ca}$  με ποσοστό εκπομπής 89.3% και μέγιστη ενέργεια του φάσματος των σωματιδίων  $\beta^-$  ίση με  $E_{\beta^-,max} = 1310 \text{ keV}$ . Η δεύτερη πιθανή διάσπαση είναι μία αντίδραση σύλληψης ηλεκτρονίου, μέσω της οποίας το  $^{40}\text{K}$  μεταστοιχείωνεται σε πυρήνα  $^{40}\text{Ar}$ , με ποσοστό εκπομπής 10.3%. Ο πυρήνας  $^{40}\text{Ar}$ , ο οποίος παράγεται με την τελευταία αντίδραση προκύπτει σε διεγερμένη κατάσταση. Κατά την αποδιέγερσή του, εκπέμπεται ακτινοβολία- $\gamma$  ενέργειας  $1460 \text{ keV}$ . Η ενέργεια αυτή χρησιμοποιείται για την ανίχνευση του ισοτόπου με  $\gamma$ -φασματοσκοπία. Στο Σχήμα 2.17 παρουσιάζεται σχηματικά η διάσπαση του πυρήνα  $^{40}\text{K}$ .

Όπως προαναφέρθηκε το  $^{40}\text{K}$  περιέχεται σε όλα τα φυσικά υλικά. Στα ελληνικά χώματα η μέση ειδική τιμή της ραδιενέργειας είναι  $355 \pm 220 \text{ Bq/kg}$  (Anagnostakis et al., 1996). Το



Σχήμα 2.17: Σχηματική αναπαράσταση των διασπάσεων του  $^{40}\text{K}$ .

ισότοπο όμως δεν ανιχνεύεται μόνο στα χώματα και στα φυσικά υλικά. Συγκεντρώσεις  $^{40}\text{K}$  ανιχνεύονται και στην ατμόσφαιρα. Ο μοναδικός μηχανισμός, ο οποίος είναι υπεύθυνος για την ύπαρξη  $^{40}\text{K}$  στην ατμόσφαιρα είναι ο μηχανισμός της επαναιώρησης, ο οποίος θα αναλυθεί σε επόμενο κεφάλαιο. Συνοπτικά, αναφέρεται ότι ο μηχανισμός αυτός είναι υπεύθυνος για την αιώρηση χώματος στην ατμόσφαιρα, κυρίως εξ' αιτίας της δραστηριότητας του ανέμου. Συνεπώς, αφού αιωρείται χώμα λόγω του φαινομένου της επαναιώρησης, θα ανιχνεύεται και το  $^{40}\text{K}$  στην ατμόσφαιρα, το οποίο υπάρχει στο χώμα. Λόγω αυτής της ιδιότητας του  $^{40}\text{K}$  έχουν γίνει προσπάθειες να συσχετιστεί με τα φαινόμενα μεταφοράς σκόνης από τη Σαχάρα, ώστε να χρησιμοποιηθεί ως ιχνηλάτης για τα φαινόμενα αυτά (Hernández et al., 2005; Karlsson et al., 2008). Τέλος, όπως αναφέρθηκε και στην Παράγραφο 2.4.3, μία ακόμη πηγή καλίου στην ατμόσφαιρα είναι οι πυρκαγιές (Smith and Bowes, 1974).

## Κεφάλαιο 3

# Ραδιενέργεια στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα και διεργασίες απόθεσης

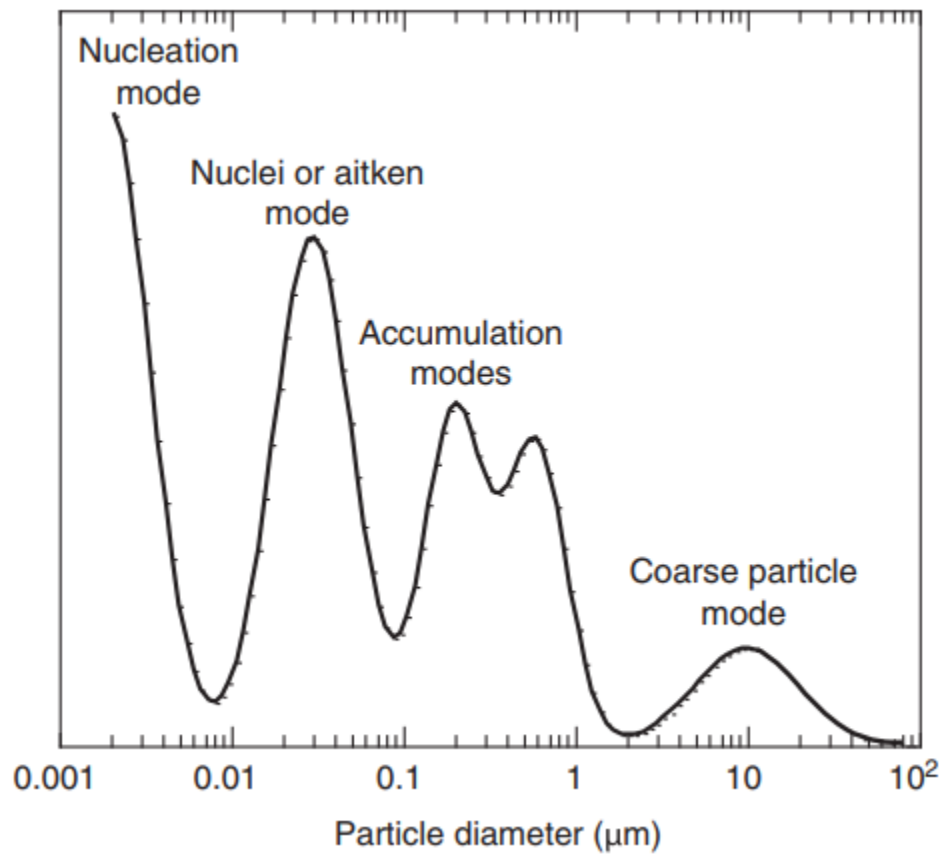
### 3.1 Γενικά στοιχεία για το αερόλυμα

#### 3.1.1 Κατανομή του ατμοσφαιρικού αερολύματος

Ο όρος ατμοσφαιρικό αερόλυμα (αεροζόλ) αναφέρεται στα στερεά και στα υγρά σωματίδια, τα οποία αιωρούνται στον ατμοσφαιρικό αέρα. Τα σωματίδια αυτά προέρχονται είτε από φυσικές ή χημικές διεργασίες είτε από ανθρωπογενείς δραστηριότητες. Συνεπώς, το αερόλυμα αποτελείται από πολλά διαφορετικά χημικά στοιχεία και από διαφορετικά μεγέθη σωματιδίων. Ανάλογα με τη διάμετρό τους τα σωματίδια του αερολύματος μπορούν να κατηγοριοποιηθούν σε τέσσερις κατηγορίες, οι οποίες φαίνονται στο Σχήμα 3.1 (Zafeiris and Vicsek, 2003).

Μία απλούστερη κατηγοριοποίηση του αερολύματος σε περιοχές διαμέτρων γίνεται από τον Papastefanou (2011), όπου τα σωματίδια με διάμετρο μικρότερη των  $0.1\mu\text{m}$  θεωρείται ότι ανήκουν στην περιοχή Aitken mode, τα σωματίδια με διάμετρο στο διάστημα  $[0.1\mu\text{m}, 2\mu\text{m}]$  εντάσσονται στην περιοχή Accumulation Mode και τέλος τα σωματίδια με διάμετρο μεγαλύτερη από  $2\mu\text{m}$  ανήκουν στην περιοχή Coarse Mode. Η διαφορά των δύο κατηγοριοποιήσεων είναι ότι στη δεύτερη η περιοχή Nucleation Mode έχει ενσωματωθεί στην Aitken Mode.

Ο όρος σωματίδιο, όπως χρησιμοποιήθηκε παραπάνω, αναφέρεται σε μία μικρή ποσότητα στερεού ή υγρού. Συνεπώς, η ερώτηση αν τα σωματίδια της ατμόσφαιρας, δηλαδή το αερόλυμα,



Σχήμα 3.1: Διάγραμμα πλήθους σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αεροζόλ συναρτήσει της διαμέτρου. Στο διάγραμμα φαίνεται και η κατηγοριοποίηση του αεροζόλ ανάλογα με τη διάμετρο των σωματιδίων (Zafeiris and Vicsek, 2003).

είναι αιωρούμενα άτομα, μόρια ή ένα συνονθύλευμα των προηγούμενων είναι αναμενόμενη. Για να απαντηθεί γίνεται μία αναφορά σε κάποια βασικά μεγέθη. Η ακτίνα Bohr είναι  $0.529 \cdot 10^{-10} m = 0.529 \text{ \AA}$  και η ακτίνα ενός ατόμου είναι της τάξης του  $1 \text{ \AA} = 10^{-4} \mu m$ . Αντίστοιχα, η ακτίνα ενός πυρήνα είναι της τάξης των  $10^{-4} \text{ \AA} = 10^{-8} \mu m$ . Τα δύο αυτά μεγέθη είναι πολύ μικρότερα από  $10^{-2} \mu m$ , δηλαδή την τάξη μεγέθους του αερολύματος στην Aitken Mode, οπότε αμέσως προκύπτει ότι κάθε σωματίδιο του αερολύματος είναι ένα συνονθύλευμα πυρήνων και ατόμων.

Το σχήμα των σωματιδίων του αεροζόλ δε μπορεί να είναι σφαιρικό, αφού αποτελούνται από πολλά άτομα, τα οποία θεωρούνται σφαιρικά. Για το λόγο αυτό, πρέπει να οριστεί η διάμετρος του σωματιδίου, η οποία έχει αναφερθεί παραπάνω. Η δυσκολία του ορισμού της διαμέτρου έγκειται στη τυχαιότητα του σχήματος κάθε σωματιδίου. Κάθε σωματίδιο έχει διαφορετικό σχήμα από τα υπόλοιπα, αφού αποτελείται από διαφορετικό αριθμό και είδος ατόμων. Συνεπώς, ο ορισμός μίας διαμέτρου με κριτήριο το σχήμα ενός ή κάποιων σωματιδίων δε θα ήταν αντιπροσωπευτικός. Ορίζεται, λοιπόν, για κάθε σωματίδιο η Αεροδυναμική Διάμετρος, η οποία ισούται με τη διάμετρο σφαιρικού σωματιδίου πυκνότητας  $\rho = 1000 \text{ kg/m}^3$ , το οποίο στο ίδιο ρευστομηχανικό πεδίο έχει την ίδια ταχύτητα καθίζησης (settling velocity) με το ακανόνιστο (πραγματικό) σωματίδιο (Cooper, 2007) του αερολύματος. Έτσι, με τον όρο διάμετρος ενός σωματιδίου θα εννοείται πλέον ο όρος Αεροδυναμική Διάμετρος.

Κάθε δείγμα αερολύματος περιέχει σωματίδια πολλών διαφορετικών διαμέτρων. Μπορεί, δηλαδή, να περιγραφεί από μία κατανομή του αριθμού των σωματιδίων συναρτήσει της διαμέτρου. Όπως, φαίνεται και στο Σχήμα 3.1 οι κατανομές των σωματιδίων είναι αρκετά σύνθετες και δεν μπορούν να προσεγγισθούν εύκολα από γνωστές κατανομές. Με σκοπό την απλοποίηση αυτής της περιγραφής ορίζεται η Μέση Αεροδυναμική Διάμετρος (ΜΑΔ) μίας κατανομής σωματιδίων, δηλαδή ενός δείγματος αερολύματος. Η ΜΑΔ είναι η τιμή, η οποία διαχωρίζει το δείγμα σε δύο ίσα μέρη. Έτσι, το 50% των σωματιδίων έχουν διάμετρο μεγαλύτερη από την ΜΑΔ, ενώ το υπόλοιπο 50% έχει διάμετρο μικρότερη της ΜΑΔ.

### 3.1.2 Σχηματισμός του ατμοσφαιρικού αερολύματος

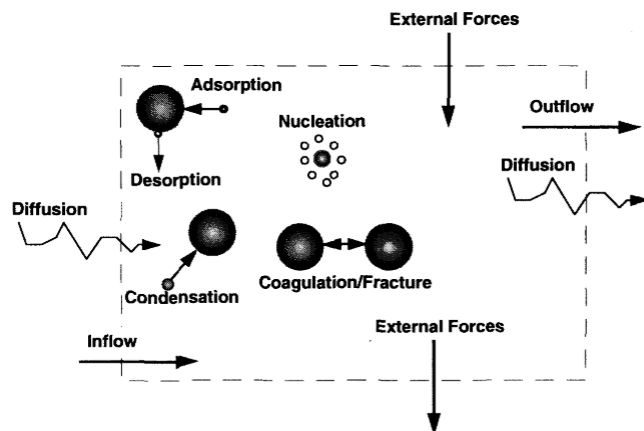
Όπως προαναφέρθηκε τα σωματίδια, τα οποία αποτελούν το ατμοσφαιρικό αερόλυμα προέρχονται είτε από ανθρώπινες δραστηριότητες είτε από φυσικές διεργασίες, οι οποίες λαμβάνουν χώρα στην ατμόσφαιρα. Στην περίπτωση των ανθρώπινων δραστηριοτήτων ο μηχανισμός παραγωγής των σωματιδίων είναι καθαρά μηχανικός και οδηγεί στη δημιουργία σωματιδίων, τα οποία κατατάσσονται στην Coarse Mode.

Η φυσική διεργασία, η οποία οδηγεί σε παραγωγή σωματιδίων στην ατμόσφαιρα αναφέρεται στη βιβλιογραφία ως μετατροπή από αέριο σε υγρό (gas-to-particle conversion) και είναι αποτέλεσμα ρευστομηχανικής, μεταφοράς θερμότητας και θερμοδυναμικής (Whitby and McMurry, 1997). Συγκεκριμένα, η διαδικασία παραγωγής των σωματιδίων προκύπτει ως επαλληλία τριών σταδίων-διεργασιών. Η πρώτη διεργασία είναι η πυρηνοποίηση (nucleation), η οποία περιγράφει την απ' ευθείας μετατροπή ενός αερίου σε υγρό ή στερεό. Η διαδικασία αυτή παράγει σωματίδια, τα οποία κατατάσσονται στην Nucleation Mode, απ' όπου προκύπτει και το όνομά της. Η διαδικασία της πυρηνοποίησης είναι μία σύνθετη διαδικασία και ταυτόχρονα πολύ σημαντική για το σχηματισμό του αερολύματος, αφού από αυτή ξεκινάει ο σχηματισμός του. Για την κατανόησή της έχουν μελετηθεί και διατυπωθεί αρκετά μοντέλα (Hamill et al., 1982).

Η δεύτερη διεργασία είναι η διαδικασία της συμπύκνωσης (condensation), κατά την οποία τα υγρά ή στερεά σωματίδια μεγεθύνονται με συσσώρευση της νέας φάσης γύρω από το νεοσχηματισθέν σωματίδιο. Τέλος, λαμβάνει χώρα και η διαδικασία της πήξης (coagulation), η οποία περιγράφει τη συνένωση των σωματιδίων (Wagner, 1982). Οι διεργασίες αυτές παρουσιάζονται μέσα σε ένα ανοικτό θερμοδυναμικό σύστημα στο Σχήμα 3.2. Στο σύστημα αυτό, το οποίο θα μπορούσε να προσομοιάζει την ατμόσφαιρα, φαίνονται οι φυσικές και οι ρευστοδυναμικές διεργασίες, από τις οποίες επηρεάζεται ο σχηματισμός των σωματιδίων.

Έως τώρα τα σωματίδια του αερολύματος έχουν παρουσιαστεί ως ένα ξεχωριστό σύστημα. Στην πραγματικότητα, όμως, αιωρούνται στον ατμοσφαιρικό αέρα και όλο το δυναμικό αυτό σύστημα (σωματίδια-αέρα) συμπεριφέρεται ως αέριο, όπου τα σωματίδια συγκρούονται συνεχώς και τυχαία μεταξύ τους. Η κίνηση αυτή μεταφράζεται μακροσκοπικά ως διάχυση και στο μικροσκοπικό επίπεδο είναι αυτή που προκαλεί τη διεργασία της πήξης (coagulation). Με την άτακτη αυτή κίνηση των σωματιδίων μέσα στα μόρια του αέρα, μερικά εξ' αυτών έρχονται κοντά, με αποτέλεσμα να εμφανίζονται δυνάμεις Van der Waals, οι οποίες ενώνουν τα σωματίδια αυτά μεταξύ τους (Mei, 2002).





Σχήμα 3.2: Σχηματική αναπαράσταση της δυναμικής του αερολύματος σε ένα ανοικτό σύστημα, όπως είναι ο ατμοσφαιρικός αέρας (Whitby and McMurry, 1997).

### 3.1.3 Δειγματοληψία αερολύματος

Σήμερα έχει εδραιωθεί ότι το αερόλυμα παίζει καθοριστικό ρόλο σε αρκετούς επιστημονικούς τομείς. Για το λόγο αυτό γίνονται συνεχώς πειραματικές μελέτες, οι οποίες αποσκοπούν στην καλύτερη κατανόηση της συμπεριφοράς του. Οι μελέτες αυτές, μεταξύ άλλων, αφορούν τη χημική του σύσταση, τις ρευστομηχανικές του ιδιότητες στην ατμόσφαιρα, το ρόλο του στη μετεωρολογία και τη ραδιενέργειά του. Για να είναι εφικτές αυτές οι μελέτες απαιτείται η απομόνωση των σωματιδίων, από τα οποία απαρτίζεται το αερόλυμα. Κρίνεται σκόπιμο, λοιπόν, να αναλυθούν στο κεφάλαιο αυτό τα βασικά χαρακτηριστικά της δειγματοληψίας του αερολύματος.

Ο συνηθέστερος τρόπος δειγματοληψίας αερολύματος βασίζεται στη λειτουργία μίας διάταξης δύο συνιστωσών. Μία αντλία αέρα (πρώτη συνιστώσα) διακινεί μία συγκεκριμένη παροχή αέρα. Ο αέρας αυτός καθοδηγείται με αγωγούς αέρα σε ένα φίλτρο (δεύτερη συνιστώσα). Ο αέρας διαπερνάει το φίλτρο, το οποίο είναι κατάλληλα κατασκευασμένο, ώστε να συγκρατεί σωματίδια μεγαλύτερα από μία ελάχιστη τιμή αεροδυναμικής διαμέτρου. Αυτός ο τρόπος δειγματοληψίας εφαρμόζεται και στο ΕΠΤ-ΕΜΠ.

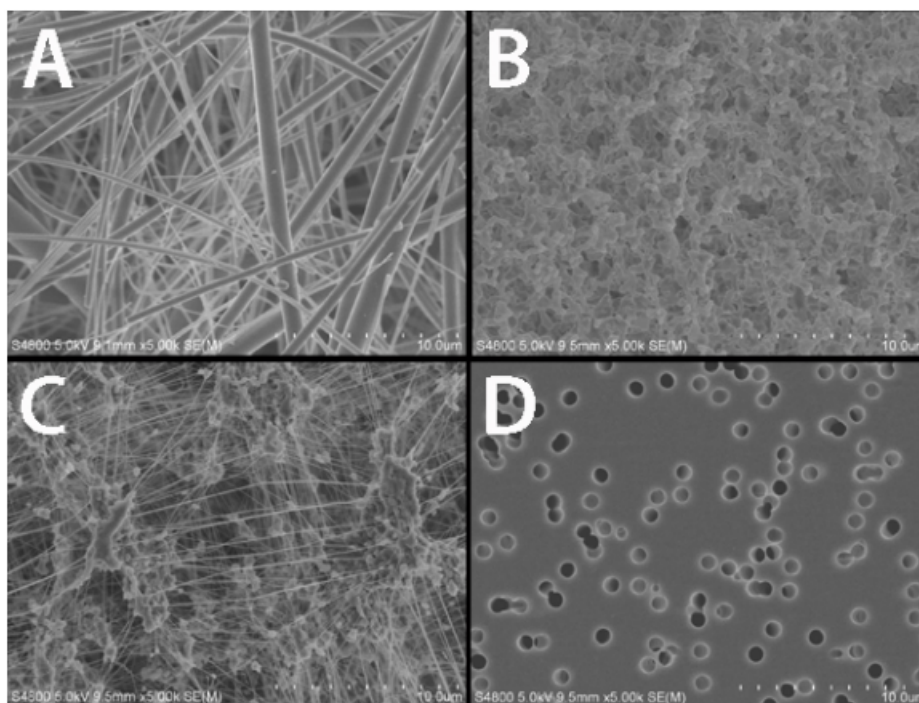
Οι αντλίες αέρα, οι οποίες χρησιμοποιούνται για τη δειγματοληψία αερολύματος ονομάζονται αντλίες δειγματοληψίας αέρα (air sampling pumps). Η επιλογή αντλίας αέρα εξαρτάται από πολλούς παράγοντες. Υπάρχουν πολλές εταιρείες κατασκευής τέτοιων αντλιών, οι οποίες κατασκευάζουν διαφορετικά μοντέλα. Κυριότερος παράγοντας επιλογής αντλίας είναι τα όρια παροχής αέρα της αντλίας, δηλαδή η κατώτερη και η ανώτερη παροχή αέρα, η οποία μπορεί

να δικακινηθεί από ένα συγκεκριμένο μοντέλο αντλίας. Άλλοι σημαντικοί παράγοντες είναι η τεχνολογία της αντλίας και η συμβατότητα με τα χρησιμοποιούμενα φίλτρα. Στο ΕΠΤ-ΕΜΠ υπάρχει αντλία δειγματοληψίας αέρα υψηλής παροχής τύπου DH-50810 E της εταιρείας F& J Specialty Products Inc. Η αντλία αυτή είναι τοποθετημένη στην οροφή του εργαστηρίου σε ύψος περίπου 10 m από το έδαφος και περίπου 185 m από την επιφάνεια της θάλασσας.

Όσον αφορά τα φίλτρα, οι κυριότερες κατηγορίες οι οποίες απαντώνται στη δειγματοληψία αέρα είναι τρεις (Lindsley, 2016) . Οι κατηγορίες αυτές αναλύονται συνοπτικά παρακάτω και η μικροδομή τους φαίνεται στο Σχήμα 3.3.

1. Ινώδη Φίλτρα (Fiber Glass Filters): Η μικροδομή τους αποτελείται από πλέγμα ινών. Η κάθε ίνα έχει ακανόνιστη και τυχαία διεύθυνση (Σχήμα 3.3A).
2. Φίλτρα Πορώδους Μεμβράνης (Porous Membrane Filters): Η μικροδομή τους είναι σύνθετη. Κυρίως σχηματίζονται ελικοειδείς διαδρομές. Τα δημοφιλέστερα υλικά, τα οποία χρησιμοποιούνται σε αυτά τα φίλτρα είναι οι οργανικές ενώσεις MCE (Σχήμα 3.3B) και PTFE (Σχήμα 3.3C).
3. Τριχοειδή Πορώδη Φίλτρα (Capillary Porous Filters) ή Φίλτρα Nucleopore: Τα φίλτρα αυτά αποτελούνται από λεπτά πολυανθρακικά (PC) ή πολυαιθυλενικά τετραφθαλικά (PETE) φιλμ με κυκλικούς πόρους (Σχήμα 3.3D).

Όλες οι κατηγορίες φίλτρων χαρακτηρίζονται από ένα μέγεθος διαμέτρου, το οποίο ονομάζεται Διάμετρος Πόρων. Σύμφωνα με όσα ειπώθηκαν παραπάνω και όσα φαίνονται στο Σχήμα 3.3, δεν μπορούν όλα τα φίλτρα να χαρακτηριστούν από μία διάμετρο πόρων, καθώς δεν υπάρχει σε όλες τις κατηγορίες ένα σχήμα στη μικροδομή τους, το οποίο να μπορεί να χαρακτηριστεί με κάποια διάμετρο. Στα τριχοειδή φίλτρα είναι προφανές πως η Διάμετρος Πόρων αναφέρεται στη διάμετρο των κυκλικών πόρων. Για τις υπόλοιπες κατηγορίες ορίζεται το μέγεθος Ισοδύναμη Διάμετρος Πόρων. Η Ισοδύναμη Διάμετρος Πόρων ενός φίλτρου, σημαίνει ότι το συγκεκριμένο φίλτρο έχει την ίδια ικανότητα φιλτραρίσματος με ένα ιδανικό φίλτρο με Διάμετρο Πόρων ίση με την Ισοδύναμη Διάμετρο Πόρων. Ως ιδανικό φίλτρο ορίζεται ένα φίλτρο με πόρους, οι οποίοι είναι ομοιόμορφες κυκλικές οπές με ίδια διάμετρο, οι οποίες βρίσκονται απολύτως κάθετα ως προς την επιφάνεια του φίλτρου (Lindsley, 2016). Συνεπώς, οι κατασκευαστές φίλτρων αναγράφουν την κυκλική διάμετρο πόρων πάνω στα Τριχοειδή Πορώδη Φίλτρα, ενώ στις υπόλοιπες κατηγορίες αναγράφονται οι Ισοδύναμες Διάμετροι Πόρων. Ο υπολογισμός της Ισοδύναμης Διαμέτρου Πόρου για ένα φίλτρο γίνεται με τυποποιημένες πειραματικές διαδικασίες. Οι δημοφιλέστερες διαδικασίες είναι το bubble-point test και το mean flow pore test (ASTM International, 2011).



Σχήμα 3.3: Κυριότερες κατηγορίες φίλτρων. A: Ίνώδες φίλτρο με Ισοδύναμη Διάμετρο Πόρων  $1 \mu m$  B: Φίλτρο Πορώδους Μembrάνης με MCE και Ισοδύναμη Διάμετρο Πόρων  $0.8 \mu m$  C: Φίλτρο Πορώδους Μembrάνης με PTFE και Ισοδύναμη Διάμετρο Πόρων  $3 \mu m$  D: Τριχοειδές Πορώδες Φίλτρο με Πολυανθρακικό (PC) φιλμ και Ισοδύναμη Διάμετρο Πόρων  $1 \mu m$  (Lindsay, 2016) .

Στο ΕΠΤ-ΕΜΠ χρησιμοποιούνται φίλτρα ορθογωνικής διατομής (8" x10") τύπου FP810M της εταιρείας F&J Specialty Products Inc.

Σε αυτό το σημείο πρέπει να τονισθεί πως η τιμή της διαμέτρου, που αναγράφεται στα φίλτρα από τους κατασκευαστές είναι ενδεικτική, αφού ακόμα και στην περίπτωση φίλτρων με κυκλικούς πόρους υπάρχει ανομοιομορφία στη διάμετρο των πόρων. Στα φίλτρα ο αέρας εισέρχεται και ακολουθεί μία ακανόνιστη διαδρομή, μέσω της οποίας αυξάνεται η πιθανότητα τα σωματίδια να δεσμευτούν στο φίλτρο και να μην το διαπεράσουν μαζί με το διερχόμενο αέρα. Πάντως, δεν είναι δεδομένο, πως όλα τα σωματίδια με διάμετρο μικρότερη από την αναγραφόμενη θα διέλθουν από το φίλτρο. Με λίγα λόγια τα φίλτρα δεν πρέπει να χρησιμοποιούνται ως 'διαχωριστές' μεγέθους των σωματιδίων ενός δείγματος αερολύματος.

Σε πολλές περιπτώσεις απαιτείται ο διαχωρισμός του δείγματος σε κλάσματα, δηλαδή σε σωματίδια, τα οποία ανήκουν σε ένα διάστημα αεροδυναμικών διαμέτρων. Ακριβώς αυτό το ρόλο εκτελεί ο Αδρανειακός Συλλέκτης, ο οποίος είναι συνήθως ένα πρόσθετο εξάρτημα της αντλίας δειγματοληψίας αέρα. Βασίζεται στην αρχή ότι ένα σωματίδιο, ανάλογα το μέγεθός του, έχει διαφορετική κινηματική συμπεριφορά σε μεταβολές ταχύτητας. Επιταχύνοντας, λοιπόν, τον αέρα και αλλάζοντάς απότομα διεύθυνση στην ταχύτητά του είναι εφικτή η συλλογή σωματιδίων ενός συγκεκριμένου μεγέθους. Οι Αδρανειακοί Συλλέκτες Διαδοχικών Σταδίων (Cascade Impactors), είναι οι ευρύτερα διαδεδομένοι Αδρανειακοί Συλλέκτες. Σε κάθε στάδιο ενός τέτοιου συλλέκτη συλλέγονται και σωματίδια, τα οποία ανήκουν σε μία συγκεκριμένη περιοχή Αεροδυναμικών Διαμέτρων. Τα σωματίδια του κάθε σταδίου συλλέγονται σε ειδικές επιφάνειες, οι οποίες είναι συνήθως φίλτρα ή μεταλλικές επιφάνειες επιχρισμένες με κάποιο λάδι. Ο διαχωρισμός των σωματιδίων σε περιοχές μεγεθών ενδιαφέρει για τον προσδιορισμό της κατανομής μεγέθους σωματιδίων ενός δείγματος αερολύματος ή για περιπτώσεις, στις οποίες ενδιαφέρει μόνο η μελέτη σωματιδίων συγκεκριμένων Αεροδυναμικών Διαμέτρων. Το ΕΠΤ-ΕΜΠ διαθέτει Αδρανειακό Συλλέκτη Διαδοχικών Σταδίων υψηλής παροχής της Staplex.

## 3.2 Ραδιενέργεια και ατμοσφαιρικό αερόλυμα

### 3.2.1 Ο ιονισμός του ατμοσφαιρικού αέρα

Όπως περιγράφεται και στο Κεφάλαιο 2, στην ατμόσφαιρα της Γης υπάρχουν ραδιενεργά

ισότοπα. Τα ισότοπα αυτά δεν αιωρούνται μόνα τους στην ατμόσφαιρα, αλλά κάποια στιγμή ενώνονται με το ατμοσφαιρικό αερόλυμα. Η ένωσή τους με το ατμοσφαιρικό αερόλυμα ευνοείται από κάποιες φυσικές διεργασίες. Σκοπός αυτής της ενότητας είναι να αναλυθούν οι διεργασίες αυτές, δηλαδή να ερμηνευτεί ο τρόπος με τον οποίο τα ραδιενεργά ισότοπα συσχετίζονται με το ατμοσφαιρικό αερόλυμα.

Η διαδικασία με την οποία σχηματίζονται τα σωματίδια, του ατμοσφαιρικού αερολύματος αποτελείται από ορισμένα βήματα. Τα βήματα αυτά είναι διακριτά, όμως ο τρόπος με τον οποίο ξεκινά η διαδικασία πυρήνοποίησης, η εξέλιξή της και οι παράγοντες που επηρεάζουν το κάθε βήμα είναι ακόμα αντικείμενο τόσο πειραματικής (Laakso et al., 2004), όσο και υπολογιστικής μελέτης (Kotalczyk et al., 2019). Παρ' όλη την αβεβαιότητα γύρω από το συγκεκριμένο ζήτημα, έχει επιβεβαιωθεί πειραματικά και θεωρητικά πώς το ηλεκτρικό φορτίο διαδραματίζει σημαντικό ρόλο στο σχηματισμό των σωματιδίων. Συγκεκριμένα, υπάρχουν πειραματικά στοιχεία, τα οποία επιβεβαιώνουν πως τα ιόντα, τα οποία υπάρχουν στην ατμόσφαιρα συνδράμουν στο σχηματισμό σωματιδίων, άρα και στην ανάπτυξη του αερολύματος (Svensmark et al., 2007).

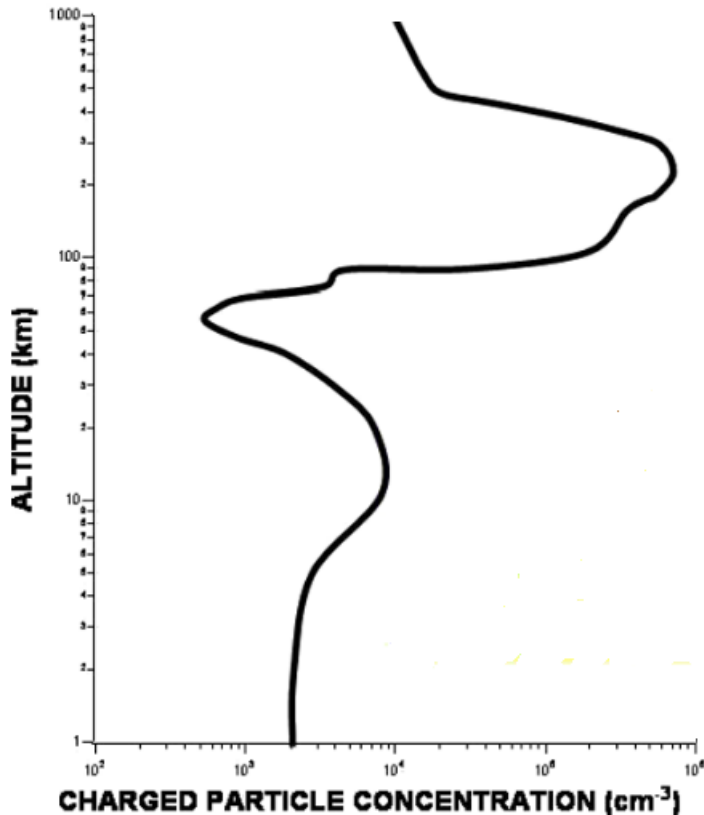
Το πρώτο βήμα, λοιπόν, για την κατανόηση της συσχέτισης των ραδιενεργών ισοτόπων με το αεροζόλ είναι να αναλυθεί η προέλευση των ιόντων της ατμόσφαιρας. Είναι γνωστό πως ένα ιόν παράγεται όταν από ένα άτομο απομακρυνθεί ή προστεθεί ένα ηλεκτρόνιο. Η παραγωγή ιόντων γίνεται με τρεις τρόπους: με αλληλεπίδραση ακτινοβολίας με τα ηλεκτρόνια των ατόμων, δηλαδή μέσω χβαντομηχανικών φαινομένων, με τριβή και με αλληλεπίδραση με κάποιο ηλεκτρικό πεδίο. Σε κάθε περίπτωση πρέπει να προσφέρεται ενέργεια στο άτομο μεγαλύτερη από την ενέργεια σύνδεσης του πιο ασθενώς συνδεδεμένου ηλεκτρονίου με τον πυρήνα. Στην περίπτωση της ατμόσφαιρας, ο ιονισμός των ατμοσφαιρικών μορίων προκαλείται κυρίως από ακτινοβολία και ηλεκτρικές εκκενώσεις, για παράδειγμα από έναν κεραυνό (Arnold, 2008). Με τον όρο ακτινοβολία εννοείται η ακτινοβολία της ατμόσφαιρας από τις τρεις πηγές, οι οποίες αναφέρθηκαν στο Κεφάλαιο 2, δηλαδή από την κοσμική ακτινοβολία και από τις πυρηνικές διασπάσεις των θυγατρικών του ραδονίου και των τεχνητών-ανθρωπογενών ισοτόπων. Στην ατμόσφαιρα και κυρίως σε υψόμετρα 3–4 έως 50–70 *km* από την επιφάνεια της θάλασσας, σημαντικότερο ρόλο για τον ιονισμό των ατμοσφαιρικών μορίων διαδραματίζει η κοσμική ακτινοβολία (Bazilevskaya et al., 2008; Velinov et al., 2009).

Κατά την ακτινοβολία του ατμοσφαιρικού αέρα παράγονται τόσο θετικά όσο και αρνητικά ιόντα. Τα θετικά ιόντα παράγονται όταν τα σωματίδια της ακτινοβολίας έχουν αρκετή ενέργεια, ώστε με κάποια αλληλεπίδραση να απομακρύνουν ένα ηλεκτρόνιο από κάποιο μόριο του αέρα. Τα αρνητικά ιόντα παράγονται, όταν ένα ελεύθερο ηλεκτρόνιο, αποθέσει την ενέργειά του και τελικά απορροφηθεί από κάποιο μόριο του αέρα. Στον ατμοσφαιρικό αέρα τα πρωτογενή θετικά

ιόντα, τα οποία σχηματίζονται, είναι τα  $O_2^+$ ,  $N_2^+$ ,  $O^+$ ,  $N^+$ . Αντίστοιχα, όταν υπάρχουν ελεύθερα ηλεκτρόνια, αυτά ενσωματώνονται ευκολότερα στο άτομο του οξυγόνου σχηματίζοντας το ανιόν  $O_2^-$ . Μετά το σχηματισμό τους τα ιόντα συμμετέχουν σε χημικές αντιδράσεις με μόρια του αέρα παράγοντας νέα-δευτερογενή ιόντα, τα οποία είναι σύνθετες μοριακές ενώσεις (Arnold, 2008).

Γύρω από τα ιόντα τείνουν να σχηματίζονται συμπλέγματα, γύρω από τα οποία είναι ευκολότερο να αρχίσει η διαδικασία της πυρήνωσης. Επιπλέον, με την παρουσία του ηλεκτρικού πεδίου των ιόντων μειώνεται και το κατώφλι της ενέργειας Gibbs, το οποίο απαιτείται για να ξεκινήσει η διαδικασία (Hamill et al., 1982; Kazil et al., 2006). Τέλος, από την εξουδετέρωση ενός ιόντος με ένα άλλο είναι δυνατόν να παραχθεί ένα σταθερό συσσωμάτωμα, γύρω από το οποίο θα ξεκινήσει η πυρήνωση.

Στο Σχήμα 3.4 που ακολουθεί φαίνεται η συγκέντρωση των ιόντων της ατμόσφαιρας συναρτήσει του ύψους από την επιφάνεια της θάλασσας. Αξίζει να σημειωθεί πως στο διάγραμμα αυτό παρουσιάζεται ένα τοπικό μέγιστο στη συγκέντρωση των ιόντων περίπου στα 20 km. Υπενθυμίζεται ότι στο ίδιο σημείο παρουσιάζεται και το μέγιστο Pfofzer, το οποίο αναλύθηκε στην Παράγραφο 2.3.1. Το ολικό μέγιστο της καμπύλης παρουσιάζεται σε μεγαλύτερα ύψη. Στα μεγαλύτερα υψόμετρα η ακτινοβολία χαρακτηρίζεται από μεγαλύτερες ενέργειες και μικρότερη ροή. Συνεπώς, η παραγωγή ιόντων φαίνεται να εξαρτάται περισσότερο από την ενέργεια της ακτινοβολίας παρά από τη ροή της.



Σχήμα 3.4: Συγκέντρωση ατμοσφαιρικών ιόντων συναρτήσει του ύψους από την επιφάνεια της θάλασσας (Arnold, 2008).

### 3.2.2 Σύνδεση των ραδιενεργών ισοτόπων με το αερόλυμα

Στην προηγούμενη ενότητα αναλύθηκε ο ρόλος των ιόντων, τα οποία παράγονται στον ατμοσφαιρικό αέρα στο σχηματισμό σωματιδίων. Το ερώτημα, λοιπόν, που τίθεται σε αυτό το σημείο είναι πώς οι ραδιενεργοί πυρήνες της ατμόσφαιρας καταλήγουν στο αερόλυμα. Σκοπός της παρούσας ενότητας είναι να δοθεί απάντηση σε αυτό το ερώτημα.

Σύμφωνα με όσα ειπώθηκαν στην Παράγραφο 3.2.1 τα ιόντα του ατμοσφαιρικού αέρα έχουν καθοριστικό ρόλο για το σχηματισμό σωματιδίων στην ατμόσφαιρα. Ο ρόλος τους, όμως, δεν περιορίζεται μόνο στο σχηματισμό του αερολύματος. Τα ατμοσφαιρικά ιόντα βοηθούν και στο σχηματισμό ραδιενεργού αερολύματος, δηλαδή στο σχηματισμό σωματιδίων στα οποία υπάρχουν ραδιενεργοί πυρήνες. Οι ραδιενεργοί αυτοί πυρήνες παράγονται στην ατμόσφαιρα μέσω

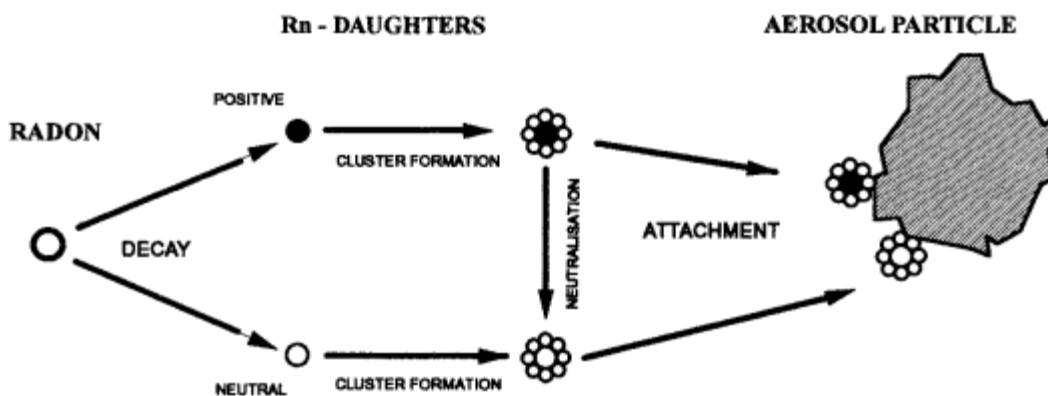
προηγούμενης πυρηνικής αντίδραση ή διάσπασης. Για παράδειγμα το  ${}^7\text{Be}$  παράγεται μέσω των αντιδράσεων κατακερματισμού, ενώ το  ${}^{210}\text{Pb}$  παράγεται από διάσπαση- $\alpha$ . Σε κάθε περίπτωση οι παραγόμενοι πυρήνες αποκτούν κάποια ενέργεια μετά την αντίδραση ή διάσπαση. Η ενέργεια αυτή ονομάζεται ενέργεια ανάκρουσης (recoil) και είναι ικανή, ώστε ορισμένα ή και όλα τα ηλεκτρόνια να απομακρυνθούν από τους πυρήνες, έτσι ώστε οι πυρήνες να προκύπτουν θετικά ιονισμένοι, με συνέπεια να αυξάνουν τον πληθυσμό των ιόντων της ατμόσφαιρας. Δεδομένης της παραπάνω παρατήρησης και σύμφωνα με όσα ειπώθηκαν στην Παράγραφο 3.2.1, γύρω από τους ραδιενεργούς πυρήνες-θετικά ιόντα είναι εύκολο να εκκινήσει ο σχηματισμός σχηματισμού σωματιδίων.

Το θετικό φορτίο των πυρήνων επηρεάζει επιπλέον και την κινητικότητά τους στην ατμόσφαιρα, καθώς τα θετικά ιόντα έχουν μεγάλη κινητικότητα και συντελεστή διάχυσης στην ατμόσφαιρα, λόγω και του αυξημένου πληθυσμού των θετικών ιόντων στην ατμόσφαιρα σε σχέση με τα αρνητικά. Λόγω της πλειοψηφίας των θετικών ιόντων, δηλαδή ομόσημου φορτίου τα θετικά ιόντα απωθούνται μεταξύ τους έως ότου τελικά εξουδετερωθούν (Vohra et al., 1966).

Τα παραπάνω φαινόμενα ευνοούν το σχηματισμό ραδιενεργού αερολύματος με δύο τρόπους. Αρχικά, τα ιόντα κινούνται έντονα στην ατμόσφαιρα μέχρι να σταθεροποιηθούν, δηλαδή μέχρι να ουδετεροποιηθούν, συνεπώς αυξάνεται η πιθανότητα να αρχίσουν να σχηματίζονται συμπλέγματα γύρω από αυτά. Επιπλέον, η έντονη αυτή κίνησή τους μπορεί να οδηγήσει σε σχηματισμό δεσμών Van der Waals με ήδη υπάρχοντα συσσωματώματα ή και σωματίδια. Στο Σχήμα 3.5 παρουσιάζεται σχηματικά ο τρόπος με τον οποίο μετά από μία ραδιενεργό διάσπαση σχηματίζεται ένα σωματίδιο στην ατμόσφαιρα (Papastefanou, 2011). Πρέπει να τονιστεί σε αυτό το σημείο πως η παραγωγή των θετικών πυρήνων ως θετικά ιόντα απλά ευνοεί τη διαδικασία σχηματισμού του αερολύματος και δεν είναι προϋπόθεση για το σχηματισμό του. Για τον σχηματισμό των σωματιδίων του αερολύματος έχουν αναπτυχθεί αρκετά μοντέλα, όπως αναφέρθηκε και στην Παράγραφο 3.1.2, στα οποία ο ιονισμός δεν είναι προαπαιτούμενο (Hamill et al., 1982).

Τα ραδιενεργά ισότοπα της ατμόσφαιρας δεν συνδέονται με το αερόλυμα σε ένα συγκεκριμένο στάδιο της δημιουργίας των σωματιδίων. Η σύνδεσή τους είναι μία σύνθετη και τυχαία διαδικασία, η οποία εξαρτάται από πολλούς φυσικούς παράγοντες. Γι' αυτό το λόγο κάθε πυρήνας μπορεί να συνδεθεί με σωματίδιο διαφορετικού μεγέθους, δηλαδή διαφορετικής Μέσης Αεροδυναμικής Διαμέτρου (ΜΑΔ). Άρα, η ραδιενέργεια ενός δείγματος αερολύματος κατανέμεται σε σωματίδια διαφορετικού μεγέθους. Οπότε, απαιτείται και πάλι ένας αντίστοιχος ορισμός με αυτόν της ΜΑΔ για τη ραδιενέργεια. Έτσι, ορίζεται Μέση Ραδιενεργός Αεροδυναμική Διάμετρος (ΜΡΑΔ) (Activity Median Aerodynamic Diameter-AMAD), η τιμή της οποίας δηλώνει την Αεροδυναμική Διάμετρο των σωματιδίων, κάτω από την οποία ανιχνεύεται το 50%





Σχήμα 3.5: Σχηματική αναπαράσταση σχηματισμού σωματιδίου, στο οποίο υπάρχει ραδιενεργός πυρήνας (Papastefanou, 2011).

της ραδιενέργειας του δείγματος. Συνοψίζοντας, η ΜΡΑΔ χωρίζει τη ραδιενέργεια του δείγματος σε δύο ίσα μέρη γύρω από μία αεροδυναμική διάμετρο. Η μισή ραδιενέργεια του δείγματος βρίσκεται συνδεδεμένη με σωματίδια αεροδυναμικής διάμετρο μικρότερη από τη ΜΡΑΔ, ενώ η άλλη μισή βρίσκεται σε σωματίδια με αεροδυναμική διάμετρο μεγαλύτερη από την ΜΡΑΔ (IAEA Safety Glossary 2007, p. 16).

### 3.2.3 Φασματοσκοπική ανάλυση δειγμάτων αεροζόλ

Στην Παράγραφο 3.1.2 αναλύθηκε η διαδικασία, με την οποία μπορεί να συλλεχθεί ένα δείγμα αερολύματος. Συνοπτικά αναφέρεται πως μία αντλία αέρα αναρροφά τον αέρα του περιβάλλοντος ή ενός εσωτερικού χώρου και τον οδηγεί σε ένα φίλτρο, στο οποίο συκρατούνται τα σωματίδια. Συνεπώς, αυτό που συνήθως εννοείται ως δείγμα αερολύματος είναι ένα φίλτρο, στο οποίο έχουν δεσμευτεί τα σωματίδια του αερολύματος. Στην περίπτωση χρήσης αδρανειακού συλλέκτη, το δείγμα είναι το σύνολο των φίλτρων, τα οποία έχουν συλλέξει τα κλάσματα των σωματιδίων.

Για να ανιχνευτούν τα ραδιενεργά ισότοπα που βρίσκονται στο αερόλυμα χρησιμοποιείται μία μέθοδος φασματοσκοπικής ανάλυσης του φίλτρου-δείγματος. Η συνηθέστερη μέθοδος ανάλυσης δειγμάτων αεροζόλ είναι η γ-φασματοσκοπία. Η προετοιμασία του δείγματος εν όψει της ανάλυσης είναι εν γένει πολύ απλή, αφού μετά τη συλλογή του απαιτείται, απλά, η μετατροπή των φίλτρων στην γεωμετρία επιλογής, συνήθως με το κατάλληλο δίπλωμα του φίλτρου. Εξυπακούεται ότι για τη γεωμετρία που χρησιμοποιείται, πρέπει να έχει γίνει και η αντίστοιχη

βαθμονόμηση του ανιχνευτή, μία διαδικασία που θα περιγραφεί στο Κεφάλαιο 4.

Η φασματοσκοπική ανάλυση ενός δείγματος αερολύματος γίνεται, με σκοπό να εκτιμηθεί η ραδιενέργεια του δείγματος. Τέτοιες αναλύσεις γίνονται πολύ συχνά, ενώ αποτελούν και βασικές μετρήσεις εργαστηρίων, τα οποία ελέγχουν τα επίπεδα της φυσικής και τεχνητής ραδιενέργειας. Στη βιβλιογραφία, τα αποτελέσματα των αναλύσεων αυτών δίδονται σε  $Bq/m^3$ . Η μονάδα αυτή είναι ευρέως διαδεδομένη, επειδή δεν απαιτείται ζύγιση του δείγματος, η οποία δεν είναι μία εύκολη διαδικασία. Για την αναγωγή της ραδιενέργειας σε  $Bq/m^3$  αρκεί να είναι γνωστή η παροχή της αντλίας ( $m^3/h$ ) και ο χρόνος δειγματοληψίας.

Η φασματοσκοπική ανάλυση δειγμάτων ατμοσφαιρικού αερολύματος είναι μία συνήθης διαδικασία, η οποία ακολουθείται για τον έλεγχο της φυσικής και της τεχνητής ραδιενέργειας του ατμοσφαιρικού αέρα. Συχνά, η ανάλυση των δειγμάτων συνοδεύεται και από άλλες μετρήσεις, με σκοπό να εξεταστούν συσχετίσεις μεταξύ της ραδιενέργειας ή των συγκεντρώσεων των ραδιενεργών ισοτόπων, τα οποία ανιχνεύονται, από διάφορους παράγοντες. Επιπλέον, η ανάλυση δειγμάτων αεροζόλ, για τα οποία έχει χρησιμοποιηθεί Αδρανειακός Συλλέκτης, μπορεί να οδηγήσει στον υπολογισμό της ΜΡΑΔ. Στο άρθρο των Ioannidou and Paatero (2014) υπολογίζεται η ΜΡΑΔ για το ραδιενεργό ισότοπο  $^7Be$  από 0.54 έως 1.05  $\mu m$ , το οποίο συμφωνεί με παλαιότερες έρευνες στον ίδιο τομέα (Papastefanou and Ioannidou, 1995).

Στη βιβλιογραφία υπάρχουν πολλές αναφορές για την ανάλυση δειγμάτων ατμοσφαιρικού αερολύματος, με μεθόδους οι οποίες διαφέρουν ως προς τον τεχνικό εξοπλισμό, τη γεωμετρία του δείγματος και τη θέση της δειγματοληψίας. Συγκεκριμένα έχουν αναφερθεί δειγματοληψίες αέρα διάρκειας από 1 έως 10 μέρες, με παροχή αέρα στις χρησιμοποιούμενες αντλίες από 1.8 έως 1000  $m^3/h$ . Από τις μετρήσεις αυτές έχει εκτιμηθεί η ραδιενέργεια διαφόρων ραδιενεργών ισοτόπων της ατμόσφαιρας. Για το  $^7Be$ , το οποίο είναι το ισότοπο με το μεγαλύτερο ενδιαφέρον για την παρούσα ΔΕ έχουν αποδοθεί τιμές ραδιενέργειας από 0.32 έως 15.3  $mBq/m^3$  (Dueñas et al., 2011; Papandreou et al., 2011; Ioannidou et al., 2005; Cannizzaro et al., 2004; Azahra et al., 2003; Błażej and Mietelski, 2014). Αντίστοιχα για τον  $^{210}Pb$ , έχουν καταγραφεί τιμές από 0.58 έως 0.75  $mBq/m^3$  (Dueñas et al., 2011; Sýkora and Povinec, 2020).

## 3.3 Απόθεση του ατμοσφαιρικού αερολύματος στο έδαφος

### 3.3.1 Εισαγωγή

Στο Κεφάλαιο 3 α παρουσιάστηκαν τα ραδιενεργά ισότοπα τα οποία υπάρχουν στην ατμόσφαιρα, ενώ στην Παράγραφο 3.2.2, έγινε μία προσπάθεια να εξηγηθεί ο τρόπος, με τον οποίο αυτά τα ραδιενεργά ισότοπα συνδέονται με το αερόλυμα της ατμόσφαιρας. Στην παράγραφο αυτή θα περιγραφούν οι μηχανισμοί με τους οποίους το αερόλυμα καταλήγει από την ατμόσφαιρα στην επιφάνεια της Γης, ενώ στο τέλος της παραγράφου θα γίνει και μία αναφορά στη διεργασία της επαναιώρησης σωματιδίων από την επιφάνεια της Γης στην ατμόσφαιρα.

### 3.3.2 Η Διεργασία της ξηρής απόθεσης

Η κίνηση του αεροζόλ στην ατμόσφαιρα περιγράφεται από τη Γενική Δυναμική Εξίσωση του Αερολύματος (Aerosol General Dynamic Equation-GDE), από την οποία προκύπτει ότι το μέγεθος των σωματιδίων, αλλά και η ταχύτητά τους εξαρτώνται από πέντε βασικούς όρους (HIDY, 1984):

1. Τις δυνάμεις συναγωγής μεταξύ του ρευστού και των σωματιδίων.
2. Τη μοριακή διάχυση, η οποία λαμβάνει χώρα μεταξύ διαφόρων περιοχών της ατμόσφαιρας, λόγω διαβάθμισης στη συγκέντρωση.
3. Την κίνηση Brown των σωματιδίων μέσα στο ρευστό.
4. Τις φυσικές αλληλεπιδράσεις μεταξύ των σωματιδίων.
5. Την επίδραση των εξωτερικών δυνάμεων, όπως της βαρύτητας ή κάποιου ηλεκτρικού πεδίου.

Ως Ξηρή Απόθεση του αερολύματος ορίζεται η εναπόθεσή του από την ατμόσφαιρα στην επιφάνεια της Γης, εξ' αιτίας της επίδρασης της βαρύτητας πάνω σε αυτό. Με λίγα, λόγια

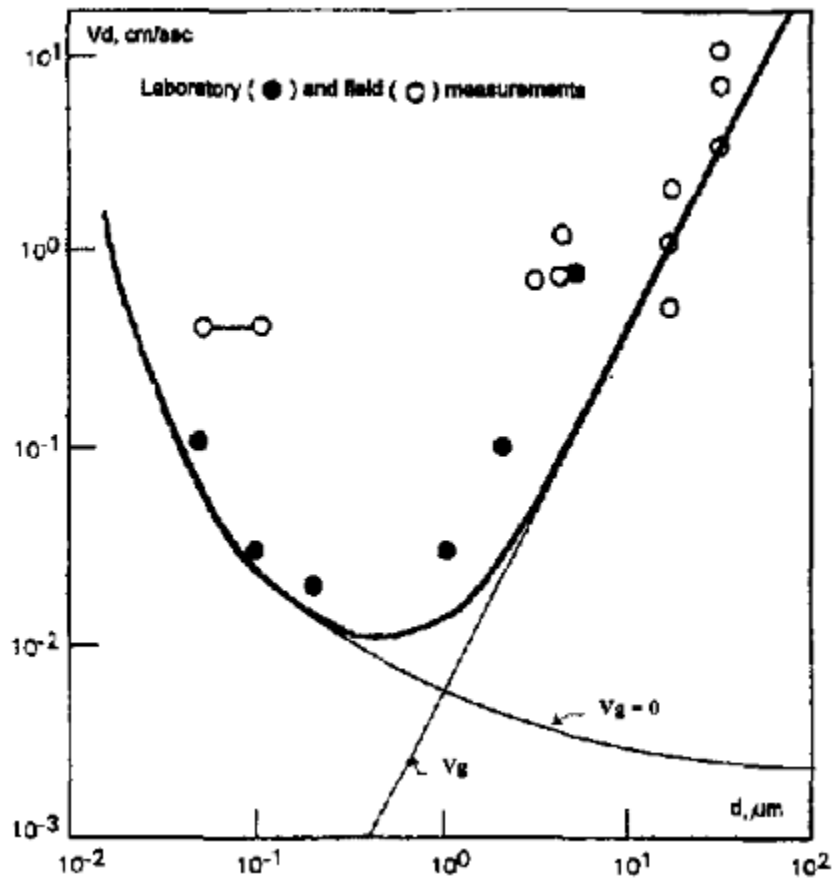
το αερόλυμα, λόγω της δράσης της βαρυτικής έλξης πάνω του, χάνει ύψος όσο κινείται στην ατμόσφαιρα. Όπως προαναφέρθηκε η κίνηση του αερολύματος, μέσα στην ατμόσφαιρα περιγράφεται από τη Γενική Δυναμική Εξίσωση, όμως με καλή προσέγγιση για την ατμόσφαιρα μπορεί να θεωρηθεί κίνηση Brown.

Προφανώς το μέγεθος των σωματιδίων, δηλαδή η μάζα τους έχει καθοριστικό ρόλο στην ξηρή απόθεση, αφού μεγαλύτερο μέγεθος σωματιδίου συνεπάγεται και μεγαλύτερη μάζα, άρα μεγαλύτερη βαρυτική δύναμη με τελικό αποτέλεσμα την ταχύτερη απόθεση. Μικρότερη διάμετρος των σωματιδίων συνεπάγεται και μεγαλύτερη συνεισφορά της κίνησης Brown και της μοριακής διάχυσης στην απόθεση των σωματιδίων. Το μέγεθος των σωματιδίων δεν επιδρά στην απόθεση μόνο λόγω της δημιουργίας υψηλότερων βαρυτικών δυνάμεων. Η ροή του αέρα γύρω από σφαίρες μπορεί να προσεγγισθεί ως στρωτή μόνο για σφαίρες μικρών διαμέτρων, ενώ για μεγαλύτερες διαμέτρους η τύρβη αρχίζει να αποκτά καθοριστικό ρόλο στα ρευστομηχανικά μεγέθη της ροής, άρα και στις δυνάμεις που ασκούνται στα σωματίδια. Η διάμετρος, κάτω από την οποία η ροή γύρω από ένα σωματίδιο μπορεί να θεωρηθεί αμιγώς στρωτή είναι  $r_p = 20 - 30 \mu\text{m}$ .

Η ταχύτητα απόθεσης ( $V_d$ ) είναι ο ρυθμός με τον οποίο εναποτίθεται το αερόλυμα από την ατμόσφαιρα και μπορεί να οριστεί με τη Σχέση 3.1 (Baklanov and Sørensen, 2001), όπου  $F$  η ροή ραδιενέργειας σε  $Bqm^{-2}s^{-1}$  και  $C$  η συγκέντρωση ραδιενέργειας σε  $Bqm^{-3}$ . Η σχέση αυτή φανερώνει τη σημασία της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης στα δείγματα ξηρής απόθεσης, αφού με μία καθαρά πειραματική διαδικασία (όπως αυτή της παρούσας ΔΕ) μπορεί να υπολογιστεί η ροή  $F$ , και αντίστοιχα με γ-φασματοσκοπική ανάλυση σε δείγματα αέρα να υπολογιστεί η συγκέντρωση  $C$ , όπως περιγράφεται και στην Παράγραφο 3.2.3.

$$v_d = \frac{F}{C} \quad (3.1)$$

Στο Σχήμα 3.6 παρουσιάζεται η ταχύτητα απόθεσης ενός σωματιδίου συναρτήσει της ακτίνας του (Baklanov and Sørensen, 2001).



Σχήμα 3.6: Εξάρτιση της ταχύτητας απόθεσης ενός σωματιδίου συναρτήσει της ακτίνας του (Baklanov and Sørensen, 2001).

### 3.3.3 Η Διεργασία της υγρής απόθεσης

Η υγρή απόθεση είναι και αυτή μία διεργασία απομάκρυνσης του αερολύματος από την ατμόσφαιρα, με το χαρακτηριστικό ότι συμβαίνει αποκλειστικά όταν υπάρχουν φαινόμενα κατακρήμνισης. Σε αντίθεση, λοιπόν, με την ξηρή απόθεση η οποία συμβαίνει διαρκώς, η υγρή απόθεση συμβαίνει μόνο με αλληλεπίδραση των σωματιδίων με τις ατμοσφαιρικές κατακρήμνισεις, όπως είναι η βροχή και το χιόνι. Συγκεκριμένα, δύο είναι οι κύριοι μηχανισμοί, με τους οποίους τα σωματίδια του αερολύματος καταλήγουν στην επιφάνεια της Γης μέσω υγρής απόθεσης (Le Roux et al., 2016):

- **Washout:** Οι σταγόνες, όπως πέφτουν συμπαρασύρουν μαζί και το αερόλυμα, εξ' αιτίας σχηματισμού χαλαρών ηλεκτροστατικών δεσμών μεταξύ τους. Πρόκειται για ένα φαινόμενο, το οποίο λαμβάνει χώρα κάτω από τα σύννεφα.
- **Rainout:** Το αερόλυμα συμμετέχει στο σχηματισμό των σύννεφων, τα οποία δημιουργούνται από υγρασία, η οποία συσσωρεύεται γύρω από τα σωματίδια. Όταν ξεκινάει η κατακρήμνιση, το αερόλυμα που βρίσκεται μέσα στα σύννεφα συμπαρασύρεται και καταλήγει στην επιφάνεια της Γης με την κατακρήμνιση. Πρόκειται για φαινόμενο, το οποίο λαμβάνει χώρα πάνω από τα σύννεφα.

Παρόλο που η διαδικασία της ξηρής απόθεσης είναι συνεχής έχει αποδειχθεί τόσο από υπολογιστικά μοντέλα, όσο και από πειράματα ότι η διεργασία της υγρής απόθεσης είναι σημαντικότερη, δηλαδή συμβάλει στην απόθεση μεγαλύτερης μάζας σωματιδίων. Για να υπάρχει μία εκτίμηση για την απόδοση ενός φαινομένου κατακρήμνισης χρησιμοποιείται το μέγεθος washout ratio ( $W$ ), το οποίο υπολογίζεται από τη Σχέση 3.2, όπου  $C_{pr}$  η συγκέντρωση ενός ραδιενεργού ισοτόπου σε  $Bq/kg$  δείγματος κατακρήμνισης που συλλέγεται και  $C_{air}$  η συγκέντρωση του ίδιου ισοτόπου στον ατμοσφαιρικό αέρα σε  $Bqm^{-3}$ . Στη Σχέση 3.2 ο λόγος των συγκεντρώσεων πολλαπλασιάζεται και με την πυκνότητα του αέρα σε κανονικές συνθήκες, ώστε το  $W$  να προκύψει καθαρός αριθμός. Εξ' άλλου το  $W$  είναι ένα ποσοστό της ραδιενέργειας, η οποία διέφυγε με την κατακρήμνιση και ως ποσοστό συνηθίζεται να είναι καθαρός αριθμός. Για τα ραδιενεργά ισότοπα το μέγεθος αυτό μπορεί βρίσκεται στο εύρος 100 – 380 για το  $^7Be$  και 200 – 300 για το  $^{210}Pb$  (Papastefanou, 2011).

$$W = \rho_{air} \frac{C_{pr}}{C_{air}} \quad (3.2)$$

### 3.3.4 Η Διεργασία της επαναιώρησης

Σύμφωνα με όσα έχουν ειπωθεί στο Κεφάλαιο 2, ένας άλλος μηχανισμός, με τον οποίο ραδιενεργά ισότοπα καταλήγουν στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα είναι αυτός της επαναιώρησης, σύμφωνα με τον οποίο τα ισότοπα που έχουν αποτεθεί στο έδαφος, καταλήγουν και πάλι να αιωρούνται στην ατμόσφαιρα εξ' αιτίας ρευστομηχανικών και μηχανικών δραστηριοτήτων. Με τον όρο ρευστομηχανικές δραστηριότητες εννοούνται οι κινήσεις του αέρα, ο οποίος παρασύρει μάζα από τις επιφάνειες – όπως είναι και το έδαφος – εξ' αιτίας της συνεκτικότητας, ενώ με τον όρο μηχανικές δραστηριότητες εννοούνται οι δραστηριότητες κατά τις οποίες μάζα από επιφάνειες εκτοξεύεται στην ατμόσφαιρα μετά από επαφή με κάποιο μέσο, όπως για παράδειγμα, συμβαίνει κατά τις γεωργικές εργασίες.

Το φαινόμενο της επαναιώρησης είναι αρκετά σύνθετο και η επιρροή του στη ραδιενέργεια της ατμόσφαιρας και του αερολύματος είναι σημαντική. Συγκεκριμένα, η επαναιώρηση εξαρτάται από πολλούς παράγοντες, όπως η ταχύτητα του ανέμου, η πυκνότητα και η θερμοκρασία του αέρα, το είδος, η σύσταση και η υγρασία του εδάφους, καθώς και από την ένταση της ανθρώπινης δραστηριότητας. Ως μέτρο της επαναιώρησης χρησιμοποιείται ο παράγοντας επαναιώρησης  $k$ , ο οποίος υπολογίζεται με τη Σχέση 3.3, όπου  $C_{air}$  η συγκέντρωση ενός ραδιενεργού ισότοπου στον ατμοσφαιρικό αέρα σε  $Bq\,m^{-3}$  και  $C_{dep}$  η συγκέντρωση του ίδιου ισότοπου σε δείγμα απόθεσης σε  $Bq\,m^{-2}$ . Όπως φαίνεται και από τη σχέση αυτή το  $k$  θα μπορούσε να υπολογιστεί απ' ευθείας και πειραματικά, με συλλογή δειγμάτων αέρα και ταυτόχρονη συλλογή δειγμάτων απόθεσης την ίδια περίοδο, όμως λόγω της πολυπλοκότητας του φαινομένου και της εξάρτησής του από πολλούς παράγοντες, οι οποίοι μπορεί να προκαλούν μέχρι και ωριαίες μεταβολές έχουν αναπτυχθεί μοντέλα, τα οποία συσχετίζουν το μέγεθος  $k$  με το χρόνο (Pröhl et al., 2012).

$$k = \frac{C_{air}}{C_{dep}} \quad (3.3)$$

## 3.4 Δειγματοληψία και ανάλυση δειγμάτων ξηρής απόθεσης

### 3.4.1 Εισαγωγή

Τα ραδιενεργά ισότοπα τα οποία εντοπίζονται στο ατμοσφαιρικό αεροζόλ μελετώνται εδώ και χρόνια. Τα ανθρωπογενή ραδιενεργά ισότοπα μελετώνται μετά από πυρηνικά ατυχήματα, ώστε να διασφαλίζεται η ανθρώπινη και περιβαλλοντική ασφάλεια (Petropoulos et al., 2001; Marzo, 2014). Τα φυσικά ραδιενεργά ισότοπα παρουσιάζουν ιδιαίτερο περιβαλλοντικό ενδιαφέρον, επειδή παρέχουν δεδομένα για τις ρευστομηχανικές διεργασίες της ατμόσφαιρας, γι' αυτό αντιμετωπίζονται από πολλές έρευνες ως φυσικοί ιχνηλάτες των διεργασιών αυτών (Sanva et al., 2018; Kim et al., 2016; Hasegawa et al., 2007).

Όσον αφορά την έρευνα σε δείγματα αποκλειστικά ξηρής απόθεσης δεν υπάρχει τόσο μεγάλη εμπειρία όση σε δείγματα μεικτής ή υγρής απόθεσης, κυρίως επειδή η ξηρή απόθεση είναι δευτερευούσης σημασίας σε όρους ειδικής ραδιενέργειας, σε σχέση με την υγρή απόθεση, όε σχέση με την υγρή απόθεση, όπως θα φανεί και από τα αποτελέσματα της βιβλιογραφικής ανασκόπησης που παρουσιάζεται σε παραγράφους που ακολουθούν.

Η έρευνα πάνω στην ξηρή και στην υγρή απόθεση του αερολύματος γίνεται όλο και περισσότερο δημοφιλής, επειδή στο αερόλυμα εντοπίζονται και χημικά στοιχεία, τα οποία βλάπτουν την ανθρώπινη υγεία. Οι μηχανισμοί μεταφοράς και απόθεσης ορισμένων ραδιενεργών ισωτόπων όπως το  $^7\text{Be}$  και το  $^{210}\text{Pb}$  έχουν πολλά κοινά στοιχεία με αυτά με τους αντίστοιχους μηχανισμούς των βλαβερών στοιχείων, οπότε μπορούν να χρησιμοποιηθούν ως ιχνηλάτες τέτοιων μηχανισμών (Caggiano et al., 2015; Olawoyin et al., 2018; McNeary and Baskaran, 2003). Επιπλέον, η εμπειρία πάνω στην ανίχνευση πυρηνικής ακτινοβολίας σε δείγματα ξηρής και υγρής απόθεσης είναι απαραίτητη σε περίπτωση πυρηνικού ατυχήματος. Για όλους τους παραπάνω λόγους έχουν γίνει αρκετές έρευνες πάνω στους τρόπους δειγματοληψίας και ραδιοπεριβαλλοντικής ανάλυσης δειγμάτων ξηρής απόθεσης. Οι κυριότερες από αυτές της μεθόδους, οι οποίες συνέβαλαν και στην επιλογή της μεθόδου που περιγράφεται στο Κεφάλαιο 5 θα παρουσιαστούν στις παραγράφους που ακολουθούν. Σε αυτό το σημείο πρέπει να επισημανθεί ότι, παρόλο που υπάρχει βιβλιογραφία για γ-φασματοσκοπικές αναλύσεις δειγμάτων ξηρής απόθεσης, τις περισσότερες φορές τα δείγματα ξηρής απόθεσης είναι αποτέλεσμα δειγματοληψίας μεικτής απόθεσης,



κατά την οποία έτυχε να μην υπάρξει βροχόπτωση.

### 3.4.2 Γεωμετρία του συλλέκτη

Για να συλλεχθεί ένα δείγμα ξηρής, υγρής ή μεικτής απόθεσης εκτίθεται μία επιφάνεια σε εξωτερικό-ανοικτό χώρο. Στις βιβλιογραφικές αναφορές δεν εμφανίζεται μία συγκεκριμένη τέτοια επιφάνεια για τη συλλογή του δείγματος, αλλά, αντίθετα, οι επιφάνειες που χρησιμοποιούνται διαφέρουν ως προς το σχήμα, το μέγεθος και το υλικό. Στη δημοσίευση των Erickson and Chieco (1997), η οποία αποτελεί και πηγή αναφοράς για συλλογή περιβαλλοντικών δειγμάτων, με σκοπό τη φασματοσκοπική τους ανάλυση, χρησιμοποιείται η διάταξη του Σχήματος 3.7. Η επιφάνεια συλλογής της συγκεκριμένης εγκατάστασης είναι ένας πλαστικός κάδος, με διάμετρο περίπου 30 *cm*. Επιπλέον, υπάρχει και αυτοματοποιημένο σύστημα κάλυψης της επιφάνειας σε περίπτωση βροχόπτωσης, όταν επιθυμείται η συλλογή δείγματος αποκλειστικά ξηρής απόθεσης. Σε αυτή την περίπτωση ο χώρος δειγματοληψίας δε βρίσκεται στον ίδιο χώρο με το χώρο ανάλυσης του δείγματος, οπότε υπάρχουν και απαιτήσεις για ασφαλή μεταφορά του δείγματος στον τόπο ανάλυσης. Ειδικά στην περίπτωση δείγματος μεικτής ή υγρής απόθεσης πρέπει να δείγμα να σφραγιστεί υδατοστεγώς, κάτι το οποίο επιτυγχάνεται ευκολότερα με τη χρήση κάδου παρά κάποιας άλλης γεωμετρίας.

Στον Πίνακα 3.1 παρουσιάζονται τα υλικά και η γεωμετρία των υλικών διαφόρων δειγματοληπτών που έχουν χρησιμοποιηθεί. Μία παρατήρηση, η οποία πρέπει να γίνει είναι ότι σε ορισμένες δειγματοληψίες τοποθετήθηκε είτε οξινισμένο είτε απλώς απιονισμένο νερό στους συλλέκτες, ώστε να αποφευχθεί και η διάχυση των σωματιδίων προς τα τοιχώματα του συλλέκτη, αλλά και η επαναίωσή τους, η οποία είναι δυσκολότερη αν τα σωματίδια είναι μέσα σε υγρό (Anand and Rangarajan, 1990; Ioannidou and Papastefanou, 2006). Από τον ίδιο Πίνακα φαίνεται ότι έχουν χρησιμοποιηθεί για την κατασκευή του συλλέκτη τόσο μεταλλικά όσο και συνθετικά υλικά κατασκευής του συλλέκτη. Ιδιαίτερο ενδιαφέρον για τη συγκεκριμένη παρατήρηση παρουσιάζει η έρευνα των Laguionie et al. (2014), όπου ως επιφάνειες συλλογής χρησιμοποιήθηκαν επτά (7) διαφορετικά υλικά, τα οποία συναντώνται στο αστικό περιβάλλον. Μάλιστα, οι διαφορετικοί, αυτοί, συλλέκτες τοποθετήθηκαν και με τη συνηθέστερη κλίση, με την οποία συναντώνται στο αστικό περιβάλλον (Σχήμα 3.8). Για παράδειγμα, ο συλλέκτης με το γρασίδι τοποθετήθηκε οριζόντια, ο συλλέκτης από γυαλί τοποθετήθηκε κάθετα, ενώ μία κλίση 30° χρησιμοποιήθηκε για το συλλέκτη από πλακάκι. Η διάταξη παρουσιάζεται στο . Από τα αποτελέσματα του πειράματος αυτού φαίνεται να προκύπτουν διαφορετικές τιμές για κάθε υλικό, χωρίς, όμως, να έχει προκύψει κάποιου είδους συσχέτιση της απόθεσης με το υλικό ή

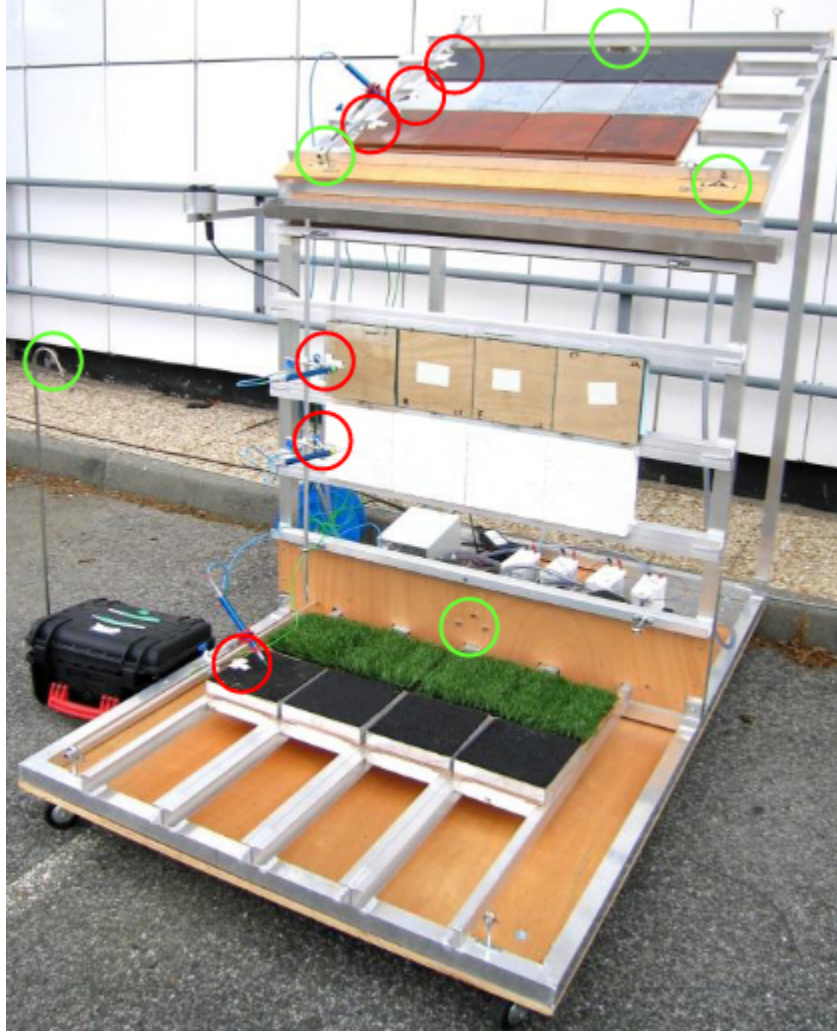


Σχήμα 3.7: Φωτογραφία από τους συλλέκτες ξηρής και υγρής απόθεσης του EML (Erickson and Chieco, 1997).

την κλίση του συλλέκτη.

Σε ορισμένες έρευνες, όπως φαίνεται και από τον Πίνακα 3.1, χρησιμοποιήθηκαν χωνιά ως συλλέκτες. Η επιλογή αυτή διευκολύνει τη συλλογή των δειγμάτων από την επιφάνεια, ιδιαίτερα στην περίπτωση που αυτή γίνεται στην τοποθεσία δειγματοληψίας. Βέβαια, ίσως με επιλογή τέτοιων κεκλιμένων επιφανειών, να εισάγεται μία αβεβαιότητα, λόγω της εξάρτισης της ξηρής απόθεσης από την κλίση της επιφάνειας. Ανάλογη παρατήρηση ισχύει και για την περίπτωση που χρησιμοποιήθηκαν μεγάλες επίπεδες πλάκες, των οποίων η μεταφορά είναι δύσκολη, οπότε τοποθετήθηκαν υπό κλίση για να διευκολυνθεί η συλλογή του αερολύματος από την επιφάνεια. Επιπλέον, σε αρκετές έρευνες ο συλλέκτης έχει στο πλάι και υψωμένο τοίχωμα ύψους από 5 έως 15 cm, το οποίο δρα ως προστασία για το φαινόμενο της επαναιώρησης, εμποδίζει, δηλαδή, την επαναιώρηση των σωματιδίων, τα οποία έχουν αποθεθεί στο συλλέκτη, από τον αέρα, και την εναπόθεση νέων σωματιδίων στο συλλέκτη, τα οποία έχουν μόλις αιωρηθεί.

Πρέπει να επισημανθεί ότι η μοναδική έρευνα στην οποία χρησιμοποιήθηκε ειδική διάταξη μέτρησης ξηρής απόθεσης (deposition sampler) είναι αυτή των Vargas et al. (2016), όπου έγινε χρήση της συσκευής ARS1010 της εταιρείας ATX. Η συσκευή αυτή φαίνεται στο Σχήμα 3.9, και κάνει αυτόματο διαχωρισμό του δείγματος, το οποίο προέρχεται αποκλειστικά από ξηρή απόθεση με αυτό της υγρής-μεικτής απόθεσης. Συγκεκριμένα, το καπάκι το οποίο βρίσκεται πάνω από το ένα δοχείο ελέγχεται από ένα μικροεπεξεργαστή, ο οποίος είναι συνδεδεμένος με ένα αισθητήρα κατακριμνήσεων (precipitation sensor). Κατ' αυτόν τον τρόπο, όποτε ο αισθητήρας δημιουργήσει σήμα επερχόμενης βροχόπτωσης το καπάκι καλύπτει το ένα δοχείο, με αποτέλεσμα να μη συλλέγεται δείγμα κατά τη διάρκεια της κατακρήμνισης. Το δείγμα της ξηρής απόθεσης συλλέγεται σε ένα φίλτρο, το οποίο αλείφεται με σιλικόνη, ώστε τα σωματίδια να μην επαναωρούνται εύκολα.



Σχήμα 3.8: Φωτογραφία της εγκατάστασης για τη σύγκριση συλλεκτών ξηρής απόθεσης κατασκευασμένους από διαφορετικό υλικό (Roupsard and RadioProtection-ENVironnement, 2013).



Σχήμα 3.9: Φωτογραφία του μοντέλου ARS 1010 της εταιρείας ATX. Πρόκειται για μία συσκευή συλλογής δειγμάτων ατμοσφαιρικής απόθεσης deposition sampler (ATX Company, Italy).

Πίνακας 3.1: Είδος και γεωμετρία των συλλεκτών δειγμάτων ξηρής απόθεσης, οι οποίοι έχουν χρησιμοποιηθεί για συλλογές δειγμάτων ξηρής απόθεσης.

A/A	Έρευνα	Υλικό Συλλέκτη	Σχήμα Συλλέκτη	Επιφάνεια Συλλέκτη ( $m^2$ )
1	McNary and Baskaran (2003)	Πολυαιθυλένιο	Κυλινδρικό	0.28
2	Baskaran et al. (1993)	Πολυαιθυλένιο	Κυλινδρικό	0.28
3	Ioannidou and Papastefanou (2006)	-	Χωνί	1.12
4	Filizok and Uğur Görgün (2019)	Πολυπροπυλένιο	Ορθογωνικό	-
5	Doering and Akber (2008)	Ανοξείδωτο Ατσάλι	Χωνί	0.57
6	Akata et al. (2008)	Πολυαιθυλένιο	Ορθογωνικό	0.98
7	Dueñas et al. (2011)	Ατσάλι	Ορθογωνικό	1.00
8	Pham et al. (2013)	Ατσάλι	Χωνί	4.00
9	Laguionie et al. (2014)	7 διαφορετικά υλικά	Ορθογωνικό	7 · 0.04
10	Vargas et al. (2016)	Φίλτρο	ARS 1010,MTX Company	0.07
11	Courtier et al. (2017)	Μεταλλικό, Πλαστικό	Ορθογωνικό, Χωνί	1.00, 0.0114, 0.0064
12	Anand and Rangarajan (1990)	Αλουμίνιο	Ορθογωνικό	1.00
13	Brown' et al. (1989)	Πλαστικό	Κυλινδρικό	-
14	Conaway et al. (2013)	Πολυαιθυλένιο	Κυλινδρικό	0.0670
15	Lozano et al. (2011)	Πλαστικό	Κυλινδρικό	4 · 0.1030 ± 0.0030

### 3.4.3 Τοποθεσία της δειγματοληψίας

Η τοποθεσία της δειγματοληψίας είναι ένας καθοριστικός παράγοντας για τα αποτελέσματα του συγκεκριμένου πειράματος. Το περιβάλλον, στο οποίο διενεργείται το πείραμα καθορίζει τη σύσταση του αερολύματος, δηλαδή τόσο τα χημικά στοιχεία, από τα οποία αποτελείται, όσο και το μέγεθός τους. Συνεπώς, άλλα ισότοπα θα ανιχνευθούν σε τοποθεσίες κοντά σε αστικό ή βιομηχανικό περιβάλλον, όπου υπάρχουν εκπομπές καυσαερίων και άλλα κοντά σε φυσικό περιβάλλον, όπου το αεροζόλ δεν επηρεάζεται σε μεγάλο βαθμό από την ανθρώπινη δραστηριότητα (Karangelos et al., 2004).

Τα αποτελέσματα της δειγματοληψίας επηρεάζονται επίσης και από τις συντετεγμένες Όπως ειπώθηκε και στο Κεφάλαιο 2, η συγκέντρωση των φυσικών ραδιενεργών ισωτόπων (όπως το  $^7\text{Be}$ ), τα οποία παράγονται στην ατμόσφαιρα εξαρτάται από την ηλιακή δραστηριότητα και το μαγνητικό πεδίο της Γης, τα οποία είναι άμεση συνάρτηση του γεωγραφικού πλάτους και της εποχής, κατά την οποία γίνεται η συλλογή του δείγματος. Γι' αυτό το λόγο στις περισσότερες βιβλιογραφικές αναφορές, στις οποίες υπάρχει το  $^7\text{Be}$  παρουσιάζονται αποτελέσματα μακροχρόνιων μετρήσεων, για τα οποία δίνονται και συσχετίσεις με την ηλιακή δραστηριότητα (Ioannidou and Papastefanou, 2006; Dueñas et al., 2011).

Η επιλογή της τοποθεσίας, όπου θα γίνει η δειγματοληψία στις δεκαπέντε (15) έρευνες, που επιλέχθηκαν να παρουσιαστούν, είναι συνήθως μια απλή απόφαση. Επιλέγεται κάποιος ανοιχτός χώρος, όπως το δώμα του εργαστηρίου. Όμως, υπάρχουν και έρευνες στις οποίες επιλέγονται διαφορετικά σημεία δειγματοληψίας, προκειμένου να γίνουν συγκρίσεις των αποτελεσμάτων μεταξύ των σημείων που επιλέχθηκαν, χωρίς, όμως τελικά να παρουσιάζεται κάποιο στατιστικά σαφές αποτέλεσμα στις περισσότερες περιπτώσεις. Ιδιαίτερο ενδιαφέρον παρουσιάζει η εργασία των Filizok and Uğur Görgün (2019), όπου τα τρία (3) σημεία δειγματοληψίας επιλέχθηκαν ανάλογα με τη βιομηχανική δραστηριότητα της κάθε περιοχής, ώστε να εξετασθεί η επιρροή των βιομηχανικών εκπομπών στα αποτελέσματα.

Στον Πίνακα 3.2 παρουσιάζονται οι τοποθεσίες, όπου έγιναν οι μετρήσεις, καθώς και το πλήθος των σημείων δειγματοληψίας, που επιλέχθηκαν στην κάθε έρευνα. Τέλος, δεν πρέπει να μείνει ασχολίαστο το γεγονός ότι το ύψος από την επιφάνεια της θάλασσας αλλά και από το έδαφος επηρεάζει και αυτό το αποτέλεσμα της μέτρησης. Όπως ειπώθηκε στο Κεφάλαιο 2 η συγκέντρωση των φυσικών ραδιενεργών ισωτόπων εξαρτάται από το υψόμετρο, ενώ το ύψος από το έδαφος περιορίζει το φαινόμενο της επαναίωσης.

Πίνακας 3.2: Τοποθεσίες δειγματοληψίας των ερευνών ξηρής απόθεσης.

A/A	Έρευνα	Τοποθεσία	Σημεία Δειγματοληψίας
1	McNeary and Baskaran (2003)	Detroit, Michigan	1
2	Baskaran et al. (1993)	Galveston/College Station, Texas	2
3	Ioannidou and Papastefanou (2006)	Thessaloniki, Greece	1
4	Filizok and Uğur Görgün (2019)	Aliaga/Bornova/Dikili, Izmir	3
5	Doering and Akber (2008)	Brisbane, Australia	1
6	Akata et al. (2008)	Rokkasho, Aomori Prefecture, Japan	3
7	Dueñas et al. (2011)	Malaga, Spain	1
8	Pham et al. (2013)	Monaco	1
9	Laguionie et al. (2014)	Nantes, France	1
10	Vargas et al. (2016)	Barcelona, Spain	1
11	Courtier et al. (2017)	Yallambie, Victoria	1
12	Anand and Rangarajan (1990)	Bombay, India	1
13	Brown' et al. (1989)	Hawaii, Illinois and New Jersey, USA	3
14	Conaway et al. (2013)	Santa Cruz County	2
15	Lozano et al. (2011)	Huelva, Spain	3



### 3.4.4 Συλλογή και επεξεργασία του δείγματος

Ο τρόπος με τον οποίο συλλέχθηκε και επεξεργάστηκε το κάθε δείγμα είναι η σημαντικότερη πληροφορία, που προέκυψε από αυτή τη βιβλιογραφική ανασκόπηση, δεδομένου ότι κύριος σκοπός της παρούσας ΔΕ είναι να σχεδιαστεί εκ νέου μία πειραματική διαδικασία για τη μέτρηση δειγμάτων ξηρής απόθεσης. Με τον όρο συλλογή του δείγματος εννοείται ο τρόπος με τον οποίο τα σωματίδια, τα οποία έχουν αποτεθεί στο συλλέκτη απομονώνονται από αυτόν. Με τον όρο επεξεργασία του δείγματος εννοείται η μέθοδος, η οποία ακολουθείται ώστε το δείγμα, το οποίο έχει απομονωθεί από το συλλέκτη, να καταλήξει στην τελική του γεωμετρία, με την οποία θα τοποθετηθεί στον ανιχνευτή για γ-φασματοσκοπική ανάλυση. Η συλλογή του δείγματος γίνεται σε όλες τις έρευνες με πλύση του συλλέκτη, ώστε να ξεπλυθούν τα σωματίδια, τα οποία έχουν αποτεθεί στην επιφάνεια. Το διάλυμα, το οποίο προκύπτει μετά την πλύση του συλλέκτη πρέπει να είναι ετερογενές, δηλαδή τα σωματίδια πρέπει να είναι διακριτά στο διάλυμα και όχι διαλυμένα μέσα σε αυτό, για το λόγο αυτό χρησιμοποιείται απιονισμένο νερό, ώστε να μην υπάρχουν ιόντα, στα οποία θα δεσμευτούν τα ισότοπα και στη συνέχεια απομακρυνθούν με αυτό με κάποια φυσική επεξεργασία. Επιπλέον, χρησιμοποιείται και ένα διάλυμα οξέος για τις πλύσεις, συννηθέστερα διαλύματα  $HCl$  ή  $HNO_3$ , ώστε να συλλέγονται και τα σωματίδια, τα οποία έχουν αρχίσει να διαχέονται στα τοιχώματα. Η ποσότητα απιονισμένου νερού και οξέος, που χρησιμοποιείται εξαρτάται από την επιφάνεια του συλλέκτη, καθώς και από τη διαδικασία επεξεργασίας, που θα ακολουθηθεί, αφού αυτή δίνει ένα πάνω όριο στο μέγεθος-όγκο του δείγματος, το οποίο μπορεί να αναλυθεί από κάθε ανιχνευτή. Εξαιρέση από τα παραπάνω αποτελεί η έρευνα των Vargas et al. (2016), όπου το δείγμα ξηρής απόθεσης συλλέχθηκε πάνω σε φίλτρο εμποτισμένο με σιλικόνη, οπότε δεν απαιτούνταν άλλου είδους επεξεργασία.

Όπως προέκυψε από τη βιβλιογραφική ανασκόπηση, οι μέθοδοι επεξεργασίας των δειγμάτων, οι οποίες χρησιμοποιούνται μπορούν να διαχωριστούν σε πέντε (5) βασικές κατηγορίες αν εξαιρεθεί η περίπτωση των Filizok and Uğur Görgün (2019), όπου έγινε ραδιοχημική επεξεργασία με σκοπό να αναλυθεί το δείγμα με  $\alpha$ -φασματοσκοπία:

- Εξάτμιση του διαλύματος, με το οποίο πλύθηκαν οι συλλέκτες, έως ενός συγκεκριμένου όγκου, για τον οποίο υπάρχει βαθμονομημένη γεωμετρία (π.χ. δοχείο Marinelli 1L) ή μέχρι την πλήρη αποξήρασή του.
- Σχηματισμός ιζήματος με ανάμειξη οξίνων και βασικών διαλυμάτων στο διάλυμα της πλύσης και τελικά ανάμειξη του ιζήματος σε όξινο διάλυμα, με όγκο κατάλληλο για βαθμονομημένη γεωμετρία.

- Εξάτμιση του διαλύματος έως την πλήρη αποξήρασή του.
- Σχηματισμός ιζήματος με ανάμειξη όξινων και βασικών διαλυμάτων και τελικά εξάτμιση του διαλύματος έως την πλήρη αποξήρασή του.
- Χρήση στήλης ρητίνης και τελικά ξήραση της ρητίνης στους  $80^{\circ}\text{C}$ .

Η μέθοδος της εξάτμισης μέχρι ένα συγκεκριμένο όγκο έχει χρησιμοποιηθεί σε αρκετές εργασίες. Η συγκεκριμένη μέθοδος είναι αρκετά απλή, αφού δεν απαιτείται καμμία χημική επεξεργασία, όμως είναι αρκετά ανακριβής. Παρόλο που η εξάτμιση γίνεται σε χαμηλές θερμοκρασίες  $60 - 80^{\circ}\text{C}$  τα σωματίδια, τα οποία είναι διαλυμένα μέσα στο διάλυμα με το οποίο έχουν πλυθεί οι συλλέκτες, λαμβάνουν αρκετή θερμική ενέργεια ώστε να αιωρηθούν και να δραπετεύσουν από το διάλυμα μαζί με τον υδρατμό.

Σε πολυπλοκότητα ακολουθούν η δεύτερη και η τρίτη από τις παραπάνω μεθόδους. Σε αυτές σκοπός είναι να αφαιρεθεί όσο το δυνατό περισσότερη μάζα από το διάλυμα, δηλαδή όσο το δυνατό περισσότερα σωματίδια, το οποίο επιτυγχάνεται με τη δημιουργία αλατικών ιζημάτων. Στη συνέχεια, το δείγμα εξατμίζεται είτε μέχρι έναν επιθυμητό όγκο είτε μέχρι την πλήρη ξήραση. Σε μερικές μεθόδους μεσολαβεί και φιλτράρισμα του δείγματος πριν την εξάτμιση, ώστε να γίνει αποδοτικότερη συλλογή του ιζήματος. Στη μέθοδο αυτή υπάρχει πάλι εξάτμιση, οπότε και πάλι ισχύει η παραπάνω παρατήρηση για τη διαφυγή σωματιδίων με τον ατμό. Όμως, η παραπάνω μέθοδος παρουσιάζει το πλεονέκτημα ότι είναι εφικτό κατά τη δημιουργία του ιζήματος να εισαχθεί μία ποσότητα από ένα άλλο ισότοπο των ραδιενεργών ισωτόπων, στα οποία εστιάζει η έρευνα. Το στοιχείο, που περιέχει το γνωστό ραδιενεργό πυρήνα, ονομάζεται στη βιβλιογραφία *tracer* και εισάγεται με τη λογική ότι ο πυρήνας-*tracer* θα έχει την ίδια συμπεριφορά στις χημικές και φυσικές διεργασίες με το ραδιενεργό πυρήνα. Οπότε εισάγοντας μία γνωστή ποσότητα και μετρώντας τη πάλι στο τέλος φαίνεται η ποσότητα, η οποία 'χάθηκε' κατά την επεξεργασία. Μετά τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση, λοιπόν, με την υπόθεση ότι όσο χάθηκε από το σταθερό πυρήνα θα χάθηκε και από το ραδιενεργό μπορεί να υπολογιστεί η ραδιενέργεια από το ισότοπο στο αρχικό δείγμα.

Ένας άλλος παράγοντας, ο οποίος εισάγει αβεβαιότητα στις μετρήσεις, όταν πρόκειται για υγρά δείγματα είναι η ανομοιομορφία του διαλύματος. υγκεκριμένα, όταν σκοπός είναι η μέτρηση της ραδιενέργειας από ένα δείγμα που περιέχει σωματίδια, όπως στα δείγματα ξηρής απόθεσης και τα σωματίδια αυτά είναι διαλυμένα σε κάποιο υγρό, τότε δεν υπάρχει ομοιομορφία στην κατανομή των σωματιδίων μέσα στο υγρό. Επίσης, δεν υπάρχει εύκολος τρόπος να εκτιμηθεί αυτή η κατανομή. Έτσι, δημιουργείται ένα δείγμα πρακτικά άγνωστης γεωμετρίας, γεγονός που

εισάγει μεγάλη αβεβαιότητα στην απόδοση, η οποία θα έχει υπολογιστεί για ομοιόμορφο υγρό δείγμα.

Η τελευταία μέθοδος επεξεργασίας είναι πολύ σημαντική για την παρούσα ΔΕ, αφού η μέθοδος, η οποία αναπτύχθηκε και τελικά χρησιμοποιήθηκε περιέχει τη χρήση ρητίνης. Συγκεκριμένη σε αυτή την κατηγορία ανήκει μόνο η έρευνα των Akata et al. (2008). Στην έρευνα αυτή το διάλυμα πέρασε από στήλη ρητίνης ιόντων, με σκοπό να δεσμευτούν τα ιόντα του διαλύματος, στα οποία είναι προσκολλημένα τα περισσότερα ραδιενεργά ισότοπα. Στη συνέχεια, η ρητίνη, η οποία συλλέγεται από τις στήλες αποξηραίνεται στους  $80^{\circ}\text{C}$  για 48 ώρες και τοποθετείται για γ-φασματοσκοπική ανάλυση. Αν και δεν χρησιμοποιήθηκε η συγκεκριμένη μέθοδος στη ΔΕ, παρουσιάζει τη βασική ομοιότητα ότι χρησιμοποιείται ρητίνη για τη δέσμευση των ισοτόπων και η ρητίνη εν συνεχεία αναλύεται με τεχνικές γ-φασματοσκοπίας.

### 3.4.5 Αποτελέσματα και σχολιασμός

Σύμφωνα με την εμπειρία του ΕΠΤ-ΕΜΠ το ενδιαφέρον του πειράματος της παρούσας διπλωματικής εργασίας στράφηκε στο σχεδιασμό μίας πειραματικής διαδικασίας συλλογής δειγμάτων ξηρής απόθεσης, με αρχικό σκοπό να ανιχνευτούν στα δείγματα αυτά τα ισότοπα  $^7\text{Be}$  και  $^{210}\text{Pb}$ . Αν από την ανάλυση του φάσματος προκύψουν ικανοποιητικά αποτελέσματα υπήρξε και σκέψη για βελτίωση της διαδικασίας, ώστε να ανιχνευτούν τα ραδιενεργά ισότοπα  $^{40}\text{K}$  και  $^{22}\text{Na}$ .

Σε πρώτη φάση, λοιπόν εξετάστηκαν οι μετρήσεις των ερευνών ως προς τα ισότοπα  $^7\text{Be}$  και  $^{210}\text{Pb}$ . Συγκεκριμένα, υπήρξε κριτική των μετρήσεων ως προς το χρόνο συλλογής του δείγματος, την επιφάνεια του συλλέκτη και το τελικό αποτέλεσμα από τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση. Όπως, φαίνεται και από τους Πίνακες 3.3,3.4, σε συνδυασμό με τον Πίνακα 3.1, στη βιβλιογραφία έχουν καταγραφεί ικανοποιητικά αποτελέσματα με χρόνους δειγματοληψίας σε χρόνους συλλογής από 7 έως 30 ημέρες με μέγιστη επιφάνεια συλλέκτη  $4\text{m}^2$ .

Τα αποτελέσματα αυτά είναι σε πρώτη φάση ενθαρρυντικά, διότι όπως κρίνεται από την εμπειρία του ΕΠΤ-ΕΜΠ, με τη μέθοδο που χρησιμοποιήθηκε και για κατάλληλο διάστημα δειγματοληψίας και επιφάνειας συλλέκτη μπορούν να προκύψουν αξιόπιστα αποτελέσματα με ικανοποιητική αβεβαιότητα από την πειραματική διαδικασία. Ένα ακόμα ενθαρρυντικό γεγονός είναι ότι τα παραπάνω αποτελέσματα προέκυψαν μετά από γ-φασματοσκοπική ανάλυση σε ανιχνευτές με χαμηλότερη σχετική απόδοση σε σχέση με αυτή του ανιχνευτή *XtRa* του ΕΠΤ-ΕΜΠ, ενώ η μέθοδος επεξεργασίας σε μερικές από αυτές τις έρευνες είχε αρκετά μεγάλη αβεβαιότητα.

Τα αποτελέσματα, τα οποία παρουσιάζονται στους Πίνακες 3.3,3.4 είναι πολύ λιγότερα από 15, δηλαδή από τον αρχικό ερευνών που παρουσιάστηκαν σε αυτό το Κεφάλαιο. Δεν παρουσι-

άζονται, δηλαδή, τα αποτελέσματα όλων των ερευνών. Αυτό συμβαίνει επειδή, αρχικά, δεν ήταν ενδιαφέρον όλων των ερευνών οι μετρήσεις των ισοτόπων  $^7\text{Be}$  και  $^{210}\text{Pb}$ . Επιπλέον, παρόλο που σε όλες τις έρευνες, που επιλέχθηκαν υπήρχαν δείγματα αποκλειστικά ξηρής απόθεσης, σε πολλές από αυτές τα δείγματα αυτά προέκυψαν απλά κατά τη διάρκεια δειγματοληψιών, κατά τη διάρκεια των οποίων έτυχε να μην υπάρξουν κατακρημνίσεις (για παράδειγμα, κατά τους καλοκαιρινούς μήνες μία μακροχρόνιας δειγματοληψίας). Δεν ήταν, δηλαδή, βασικό ενδιαφέρον των ερευνών αυτών η ξηρή απόθεση, αλλά η μεικτή, γι' αυτό και δεν υπάρχουν μέσα σε αυτές οι μετρήσεις αποκλειστικά ξηρής απόθεσης.

Τέλος, πρέπει να τονισθεί ότι στις έρευνες αυτές συλλέγονται δείγματα ξηρής απόθεσης, με σκοπό να γίνουν κάποιες συσχετίσεις μεταξύ της ραδιενέργειας των δειγμάτων αυτών και διαφόρων άλλων μεγεθών. Μία βασική παρατήρηση, η οποία προέκυψε από την παρούσα βιβλιογραφική ανασκόπηση είναι ότι το ποσοστό συνεισφοράς της ξηρής απόθεσης σε σχέση με τη μεικτή κυμαίνεται από 9 έως 24%, με τη μέγιστη τιμή να υπολογίζεται μόνο σε μήνες με χαμηλή βροχόπτωση (Dueñas et al., 2011; Ioannidou and Papastefanou, 2006; Pham et al., 2013; Koch et al., 1996). Γενικότερα συσχετίσεις, οι οποίες παρουσιάζουν ενδιαφέρον είναι:

- Συσχετίσεις μεταξύ της ραδιενέργειας των διαφόρων ισοτόπων.
- Ραδιενέργεια των ισοτόπων με το ύψος βροχόπτωσης.
- Ραδιενέργεια των ισοτόπων με φυσικά μεγέθη, όπως η θερμοκρασία και η σχετική υγρασία κατά τη συλλογή.
- Ραδιενέργεια των ισοτόπων με την αντίστοιχη που ανιχνεύεται στον ατμοσφαιρικό αέρα.
- Ραδιενέργεια των ισοτόπων με τη μάζα και την κατανομή διαμέτρων του αεροζόλ.

Για να γίνουν οι παραπάνω συσχετίσεις απαιτείται ένας ικανοποιητικός αριθμός δείγματος, δηλαδή πολλές μετρήσεις. Όπως φαίνεται και από τους Πίνακες 3.3,3.4, η συλλογή δειγμάτων ξηρής απόθεσης απαιτεί έκθεση των συλλεκτών για πολλές μέρες, συνεπώς για να συλλεχθεί ένας στατιστικά ικανοποιητικός αριθμός δειγμάτων, ώστε να γίνουν οι παραπάνω συσχετίσεις, οι μετρήσεις μπορεί να είναι αρκετά μακροχρόνιες. Δεδομένου του σχεδιασμού μίας αξιόπιστης μεθόδου για τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση τέτοιων δειγμάτων οι παραπάνω συσχετίσεις θα μπορούσαν να γίνουν και από το ΕΠΤ-ΕΜΠ.

Πίνακας 3.3: Τιμές για τη ραδιενέργεια  ${}^7\text{Be}$  από τις βιβλιογραφικές αναφορές

Έρευνα	Διάφορα Συλλογής Δείγματος (days)	${}^7\text{Be}$	Μονάδα
McNeary and Baskaran (2003)	7-30	143.3	$Bqm^{-2}yr^{-1}$
Baskaran et al. (1993)	7-14	51.1	$Bqm^{-2}yr^{-1}$
Ioannidou and Papastefanou (2006)	3-4	$17.14 \pm 0.40$ , $20.60 \pm 0.83$	$Bqm^{-2}$
Dueñas et al. (2011)	30	4.00 έως 35.0	$Bqm^{-2}$
Pham et al. (2013)	30	$9.6 \pm 0.1$ έως $178 \pm 0.1$	$Bqm^{-2}month^{-1}$
Courtier et al. (2017)	7	$2.90 \pm 0.50$ έως $25.89 \pm 2.75$	$Bqm^{-2}week^{-1}$
Conaway et al. (2013)	1-7	7	$Bqm^{-2}month^{-1}$
Lozano et al. (2011)	7-30	7.5	$Bqm^{-2}month^{-1}$

Πίνακας 3.4: Τιμές για τη ραδιενέργεια  ${}^{210}\text{Pb}$  από τις βιβλιογραφικές αναφορές

Έρευνα	Διάφορα Συλλογής Δείγματος (days)	${}^{210}\text{Pb}$	Μονάδα
McNeary and Baskaran (2003)	7-30	46.6	$Bqm^{-2}yr^{-1}$
Baskaran et al. (1993)	7-14	10.1	$Bqm^{-2}yr^{-1}$
Ioannidou and Papastefanou (2006)	3-4	-	$Bqm^{-2}$
Dueñas et al. (2011)	30	1.20 έως 4.40	$Bqm^{-2}$
Pham et al. (2013)	30	$1.7 \pm 0.1$ έως $18.3 \pm 14$	$Bqm^{-2}month^{-1}$
Courtier et al. (2017)	7	$0.40 \pm 0.07$ έως $2.35 \pm 0.34$	$Bqm^{-2}week^{-1}$
Conaway et al. (2013)	1-7	-	$Bqm^{-2}month^{-1}$
Lozano et al. (2011)	7-30	1.2	$Bqm^{-2}month^{-1}$

## Κεφάλαιο 4

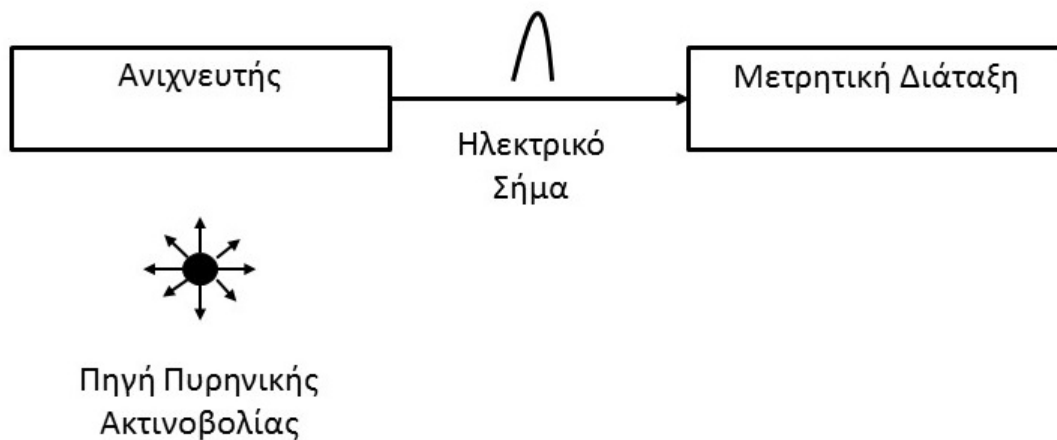
# Η μέθοδος της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης

### 4.1 Γενικά περί ανιχνευτικών διατάξεων

#### 4.1.1 Αρχή της ανίχνευσης

Ο όρος "ανίχνευση πυρηνικής ακτινοβολίας" αναφέρεται τόσο στη διαπίστωση ύπαρξης της ακτινοβολίας όσο και στον προσδιορισμό του είδους, της ποσότητάς και της ενέργειάς της. Με λίγα λόγια στόχος των ανιχνευτικών διατάξεων είναι είτε ο ποσοτικός είτε/και ο ποιοτικός προσδιορισμός της ακτινοβολίας. Στο παρόν κεφάλαιο θα αναλυθεί ο τρόπος με τον οποίο λειτουργούν οι ανιχνευτικές διατάξεις και κάποιες βασικές παράμετροι, οι οποίες επηρεάζουν τη λειτουργία τέτοιων διατάξεων. Έμφαση θα δοθεί στις ανιχνευτικές διατάξεις ακτινοβολίας-γ και στις μεθόδους γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης, αφού αυτές χρησιμοποιούνται στην παρούσα ΔΕ.

Για την ανίχνευση πυρηνικής ακτινοβολίας χρησιμοποιούνται ανιχνευτικές διατάξεις που εν γένει αποτελούνται από έναν ανιχνευτή ή από μία διάταξη ανιχνευτών και από τη διάταξη της μέτρησης. Η ακτινοβολία, η οποία εκπέμπεται από μία πηγή, αλληλεπιδρά με τον ανιχνευτή και παράγεται ηλεκτρικό σήμα, από την επεξεργασία του οποίου γίνεται η ανίχνευση της ακτινοβολίας. Μία σχηματική αναπαράσταση μίας ανιχνευτικής διάταξης φαίνεται στο Σχήμα 4.1.



Σχήμα 4.1: Βασικός σχεδιασμός μίας ανιχνευτικής διάταξης

#### 4.1.2 Ο Ανιχνευτής

Ο ανιχνευτής είναι η βασικότερη και η ακριβότερη συνιστώσα μίας ανιχνευτικής διάταξης. Ο ανιχνευτής αποτελεί ένα είδος μεταλλάκτη, ο οποίος μετατρέπει την πυρηνική ακτινοβολία σε ηλεκτρικό σήμα. Υπάρχουν αρκετοί τρόποι, με τους οποίους μπορεί να γίνει η μετατροπή αυτή. Σε όλες τις περιπτώσεις υπάρχει ένα κοινό χαρακτηριστικό. Η πυρηνική ακτινοβολία εισέρχεται από το παράθυρο του ανιχνευτή και αλληλεπιδρά με ένα υλικό μέσο. Η ενέργεια, δηλαδή, της ακτινοβολίας αποτίθεται στον ανιχνευτή και μετατρέπεται σε ηλεκτρικό σήμα. Η τεχνολογία του ανιχνευτή είναι αυτή που καθορίζει και τον τύπο του.

Στη συνέχεια παρουσιάζονται συνοπτικά οι τρεις κυριότερες τεχνολογίες ανιχνευτών πυρηνικής ακτινοβολίας.

1. **Ανιχνευτές Αερίου:** Στους ανιχνευτές αυτούς το μέσο, για την αλληλεπίδραση της ακτινοβολίας είναι αέριο. Η λειτουργία του συγκεκριμένου ανιχνευτή βασίζεται στη συλλογή των ιόντων, τα οποία παράγονται όταν η ακτινοβολία αλληλεπιδρά με το αέριο του ανιχνευτή. Η συλλογή των ιόντων γίνεται με κατάλληλα ηλεκτρόδια, στα οποία έχει εφαρμοστεί διαφορά δυναμικού. Στο Σχήμα 4.2α παρουσιάζεται ένα απλό μονογραμμικό διάγραμμα ενός ανιχνευτή αερίου, στο οποίο αναπαρίσταται η αρχή λειτουργίας του.

Η διαφορά δυναμικού παίζει πολύ σημαντικό ρόλο στη λειτουργία του ανιχνευτή. Η τιμή της τάσης ενισχύουν λιγότερο ή περισσότερο διάφορους μηχανισμούς, οι οποίοι σχετίζο-

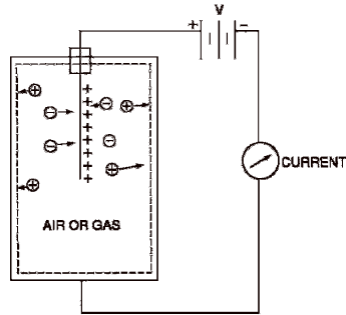
νται με την περισυλλογή των φορτίων από τα ηλεκτρόδια. Ανάλογα, λοιπόν, με την εφαρμοζόμενη τάση οι ανιχνευτές αερίου διακρίνονται σε:

- Θαλάμους Ιονισμού
- Αναλογικούς Ανιχνευτές
- Ανιχνευτές Geiger-Muller

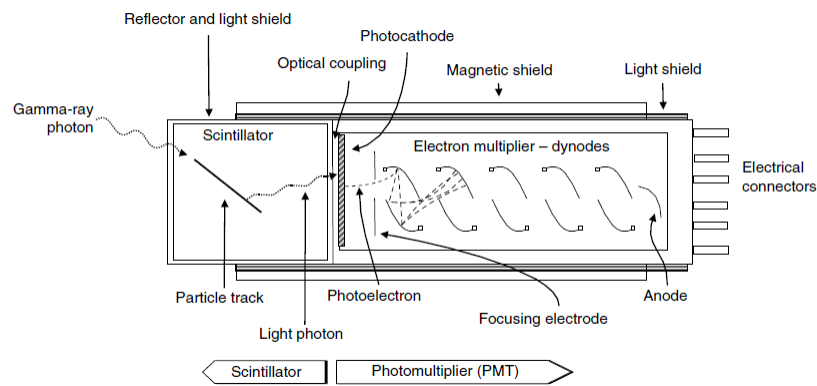
Από αυτές τις κατηγορίες μόνο οι αναλογικοί ανιχνευτές μπορούν, θεωρητικά, να βρουν εφαρμογή σε μεθόδους φασματοσκοπικών αναλύσεων, όπου ζητούμενο είναι ο ποιοτικός και ποσοτικός προσδιορισμός των ισοτόπων. Παρόλ' αυτά εξ' αιτίας της χαμηλής απόδοσης και διακριτικής ικανότητας δεν έχουν χρησιμοποιηθεί ευρέως. Οι θάλαμοι ιονισμού χρησιμοποιούνται για εκτίμηση έκθεσης σε ακτινοβολίες, ενώ οι ανιχνευτές Geiger-Muller χρησιμοποιούνται μόνο για τη διαπίστωση ύπαρξης ακτινοβολίας. Οι δύο τελευταίες κατηγορίες χρησιμοποιούνται σε μεγάλο βαθμό σε εφαρμογές ακτινοπροστασίας, δοσιμετρίας και πυρηνικής ιατρικής (Saha, 2006).

- 2. Ανιχνευτές Σπινθηρισμών:** Οι ανιχνευτές σπινθηρισμών αποτελούνται από δύο μέρη. Το πρώτο μέρος είναι ένας κρύσταλλος με τον οποίο αλληλεπιδρά η πυρηνική ακτινοβολία προκαλώντας ιονισμούς, διεγέρσεις και μετασταθείς καταστάσεις. Κατά την αποδιέγερση που ακολουθεί, εκπέμπονται φωτόνια συγκεκριμένων ενεργειών, οι οποίες εξαρτώνται από το υλικό, δηλαδή, στην προκειμένη περίπτωση από τον κρύσταλλο. Με κατάλληλη επιλογή υλικού είναι δυνατό τα φωτόνια αυτά να έχουν συχνότητες στο ορατό φάσμα, γι' αυτό ο κρύσταλλος αναφέρεται στη βιβλιογραφία και ως σπινθηριστής. Στη συνέχεια, τα φωτόνια προσπίπτουν στη φωτοκάθοδο, όπου αλληλεπιδρούν παράγοντας ηλεκτρόνια τα οποία εισέρχονται στον φωτοπολλαπλασιαστή. Ο φωτοπολλαπλασιαστής αποτελεί το δεύτερο μέρος του ανιχνευτή και είναι υπεύθυνος για τον πολλαπλασιασμό των ηλεκτρονίων και τη διαμόρφωση ενός ηλεκτρικού σήματος. Με κατάλληλο σχεδιασμό μπορεί μέσω ενός ανιχνευτή σπινθηρισμών, να παραχθεί ένα μοναδικό σήμα εξόδου, για κάθε ένα σωματίδιο, το οποίο προσπίπτει στον ανιχνευτή. Οι ανιχνευτές σπινθηρισμών με κρυστάλλους NaI χρησιμοποιούνται ακόμα και σήμερα για γ-φασματοσκοπικές αναλύσεις. Στο Σχήμα 4.2β φαίνεται μία σχηματική αναπαράσταση της δομής των ανιχνευτών σπινθηρισμών, όπου γίνεται και μία προσπάθεια αναπαράστασης της λειτουργίας τους.
- 3. Ανιχνευτές Ημιαγωγού:** Αυτή η τεχνολογία ανιχνευτών βασίστηκε στους ανιχνευτές αερίου. Η αρχή λειτουργίας είναι κατά βάση η ίδια, με τη διαφορά ότι στους ανιχνευτές





(α) Τυπικό σχηματικό διάγραμμα ενός ανιχνευτή αερίου (Saha, 2006).



(β') Τυπικό σχηματικό διάγραμμα ενός ανιχνευτή σπινθηρισμών ("Scintillation Spectrometry" 2008).

Σχήμα 4.2: Μονογραμμικά διαγράμματα ενός ανιχνευτή αερίου και ενός ανιχνευτή σπινθηρισμών, οποία φαίνονται οι διαφορές στις δύο τεχνολογίες.

ημιαγωγών χρησιμοποιούνται ημιαγώγιμα υλικά και κυρίως Ge. Οι ανιχνευτές αυτοί χάρη στην υψηλή τους διακριτική ικανότητα και στο μεγάλο ενεργειακό εύρος λειτουργίας τους, χρησιμοποιούνται σχεδόν αποκλειστικά σε φασματοσκοπικές αναλύσεις, γι' αυτό το λόγο η λειτουργία τους θα αναλυθεί λεπτομερώς στο Κεφάλαιο 4.2.

### 4.1.3 Μετρητική Διάταξη

Το ηλεκτρικό σήμα, το οποίο εξέρχεται από τον ανιχνευτή πρέπει στη συνέχεια να αναλυθεί,

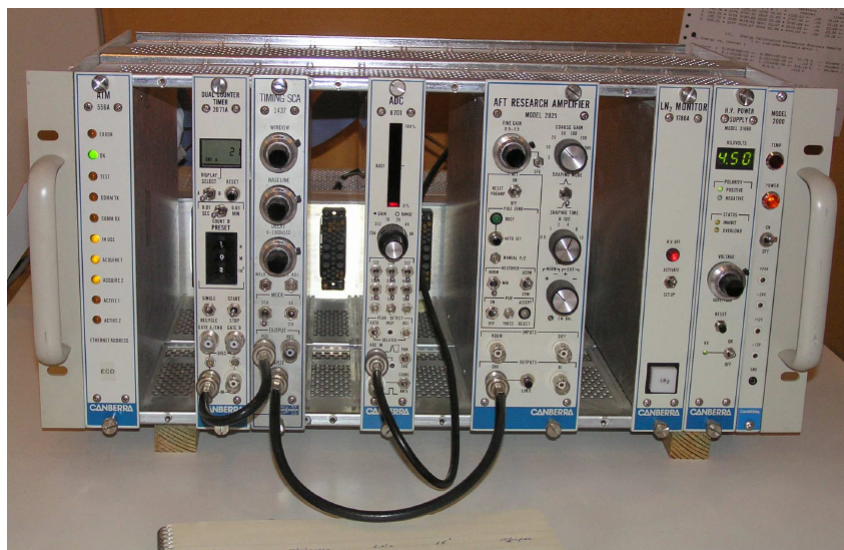
ώστε να ληφθεί από αυτό πληροφορία για την ανίχνευση πυρηνικής ακτινοβολίας. Η μετρητική διάταξη είναι ένα σύνολο ηλεκτρονικών συσκευών, οι οποίες συχνά αναφέρονται και ως "πυρηνικά ηλεκτρονικά". Τα ηλεκτρονικά αυτά είναι απαραίτητα για την ενίσχυση του σήματος, τη διασφάλιση της ποιότητάς του και για τη σωστή καταγραφή του.

Η πρώτη συνιστώσα μίας μετρητικής διάταξης είναι ο προενισχυτής. Ο ρόλος της συγκεκριμένης συνιστώσας είναι να ενισχύει το ηλεκτρικό σήμα, το οποίο εξέρχεται από τον ανιχνευτή, ώστε να γίνει μεγαλύτερο από κάθε ηλεκτρικό θόρυβο. Ο προενισχυτής τοποθετείται όσο γίνεται πιο κοντά στην έξοδο του ανιχνευτή. Μάλιστα, στους σύγχρονους ανιχνευτές ο προενισχυτής τοποθετείται μέσα στον χροοστάτη του ανιχνευτή. Με αυτόν τον τρόπο ελαχιστοποιούνται οι απώλειες, οι οποίες μπορεί να έχει το σήμα κατά τη διαδρομή του από την έξοδο του ανιχνευτή έως την είσοδο του προενισχυτή.

Ο πολυκαναλικός αναλυτής διαχωρίζει τη διαθέσιμη μνήμη στην οποία θα αποθηκευθεί το φάσμα της ακτινοβολίας σε κατάλληλο αριθμό καναλιών, δηλαδή κάθε θέση μνήμης αντιστοιχεί σε ένα κανάλι. Κάθε κανάλι αντιστοιχεί σε μία τιμή του σήματος, η οποία αντιστοιχεί σε μία τιμή της ενέργειας που αποτέθηκε στον ανιχνευτή. Έτσι, για κάθε σήμα το οποίο εισέρχεται στον πολυκαναλικό αναλυτή, καταγράφεται ένα γεγονός στο αντίστοιχο κανάλι. Συνεπώς, η πληροφορία που καταγράφεται στον πολυκαναλικό αναλυτή (φάσμα) είναι το πλήθος των γεγονότων που έχουν καταγραφεί σε κάθε κανάλι, δηλαδή το πλήθος σωματιδίων που έχουν αποθέσει στον ανιχνευτή την αντίστοιχη ενέργεια.

Ο πολυκαναλικός αναλυτής διαχωρίζει τη διαθέσιμη μνήμη σε κατάλληλο αριθμό καναλιών, δηλαδή κάθε θέση μνήμης αντιστοιχεί σε ένα κανάλι. Κάθε κανάλι αντιστοιχεί σε μία ενέργεια σήματος. Έτσι, κάθε σήμα με αυτή την ενέργεια, το οποίο εισέρχεται στον πολυκαναλικό αναλυτή, καταγράφεται ένα γεγονός στο κανάλι. Συνεπώς, έξοδος του πολυκαναλικού αναλυτή είναι ο αριθμός των καναλιών, στα οποία έχουν αντιστοιχηθεί αριθμοί καταγεγραμμένων γεγονότων (counts), δηλαδή αριθμοί σωματιδίων, τα οποία έχουν αποθέσει ενέργεια στον ανιχνευτή. Με λίγα λόγια, η έξοδος του πολυκαναλικού αναλυτή είναι το φάσμα. Συνηθίζεται οι πολυκαναλικοί αναλυτές να συνοδεύονται από ειδικές μονάδες, οι οποίες φροντίζουν για τη σταθερότητα του φάσματος.

Στην περίπτωση ανιχνευτών, οι οποίοι δε μπορούν να έχουν ως έξοδο το διαφορικό φάσμα, επειδή η ενέργεια του κάθε παλμού δεν είναι ανάλογη με την ενέργεια, η οποία αποτίθεται στον ανιχνευτή, ο πολυκαναλικός αναλυτής απουσιάζει. Αντ' αυτού υπάρχει ένας διαχωριστής, ο οποίος είναι πρακτικά ένα φίλτρο, το οποίο επιτρέπει μόνο τη διέλευση παλμών πάνω από ένα συγκεκριμένο ύψος, το οποίο ονομάζεται επίπεδο διαχωρισμού. Ρόλος του διαχωριστή είναι να επιτρέπεται μόνο η διέλευση της πυρηνικής ακτινοβολίας, της πηγής, η οποία εξετάζεται.



Σχήμα 4.3: Διάταξη πυρηνικών ηλεκτρονικών από το ΕΠΤ-ΕΜΠ.

Αποκόπτεται, δηλαδή, η ακτινοβολία υποβάθρου, η οποία αποτελεί θόρυβο.

Στις ανιχνευτικές διατάξεις απαιτείται και μία πηγή υψηλής τάσης, απαραίτητη για τη λειτουργία του ανιχνευτή. Για το λόγο αυτό χρησιμοποιούνται τροφοδοτικά υψηλής τάσης, τα οποία επιδέχονται ρυθμίσεις για το επίπεδο και την πολικότητα της τάσης ανάλογα τον ανιχνευτή. Άλλες μονάδες που απαρτίζουν τη διάταξη μπορεί να είναι: ο ενισχυτής (Amplifier), ο αναλογοψηφιακός μετετροπέας (ΑΔ<sup>ο</sup>), ο αναλυτής ενός καναλιού (Single Channel Analyzer), ο καταμετρητής (Counter Timer) κλπ. Δεν πρέπει να παραληφθεί σε αυτό το σημείο, πως όλες οι συνιστώσες της μετρητικής διάταξης είναι σταθερά τοποθετημένες πάνω σε ειδικές μονάδες-βάσεις, οι οποίες ονομάζονται NIM-BIN και ο ρόλος τους – εκτός των άλλων – είναι να παρέχουν χαμηλή τάση  $\pm 6V$ ,  $\pm 12V$  και  $\pm 24V$  σε όλες τις συνιστώσες του συστήματος. Οι συνδέσεις μεταξύ των συνιστωσών γίνονται με καλώδια σήματος και υψηλής τάσης. Τέλος, πρέπει να αναφερθεί ότι πλέον, οι νεότερες μετρητικές διατάξεις, οι οποίες συνοδεύουν τον κάθε ανιχνευτή είναι ψηφιακά κυκλώματα, στα οποία υπάρχουν ενσωματωμένες όλες οι επιμέρους μονάδες. Στο Σχήμα 4.3 φαίνεται μία πλήρης διάταξη πυρηνικών ηλεκτρονικών, η οποία χρησιμοποιείται σε μετρητική διασταξη του ΕΠΤ-ΕΜΠ.

## 4.2 Ανιχνευτές ημιαγωγού

### 4.2.1 Εισαγωγή

Όπως αναφέρθηκε και παραπάνω, οι καταλληλότεροι ανιχνευτές για γ-φασματοσκοπικές αναλύσεις είναι οι ανιχνευτές ημιαγωγών. Καθώς η μέθοδος της γ-φασματοσκοπίας χρησιμοποιήθηκε κατά κόρον στα πλαίσια αυτής της ΔΕ, κρίθηκε σκόπιμο να αναλυθούν εκτενώς οι ανιχνευτές ημιαγωγών καθώς και οι παράμετροι από τις οποίες επηρεάζονται. Συγκεκριμένα σκοπός του παρόντος κεφαλαίου είναι να παρουσιαστεί η βασική αρχή λειτουργίας των ανιχνευτών αυτών, ενώ στο Κεφάλαιο 4.3 θα αναλυθεί ο τρόπος με τον οποίο παράγεται το γ-φάσμα από αυτούς και θα παρουσιαστούν οι διαδικασίες βαθμονόμησής τους, οι οποίες είναι υψίστης σημασίας για τη λειτουργία των ανιχνευτικών διατάξεων.

### 4.2.2 Αλληλεπίδραση Ακτινοβολίας-γ και Ημιαγωγού

Όταν οι φωτονιακές ακτινοβολίες διέρχονται μέσα από την ύλη, υπάρχει πιθανότητα να αλληλεπιδράσουν με αυτήν. Οι κυριότεροι μηχανισμοί, με τους οποίους τα φωτόνια της ακτινοβολίας αλληλεπιδρούν με την ύλη είναι τρεις (3):

1. **Φωτοηλεκτρικό Φαινόμενο:** Πρόκειται για την πλήρη απορρόφηση φωτονίου από περιφερειακό ηλεκτρόνιο του ατόμου. Συνήθως, το φαινόμενο παρατηρείται μεταξύ φωτονίων και ηλεκτρονίων ισχυρώς συνδεδεμένων με πυρήνα της ύλης.
2. **Σκέδαση Compton:** Πρόκειται για μη-ελαστική σκέδαση μεταξύ του φωτονίου και ενός ασθενώς συνδεδεμένου ηλεκτρονίου του ατόμου.
3. **Φαινόμενο Δίδυμης Γέννησης:** Πρόκειται για αλληλεπίδραση φωτονίου ενέργειας ίσης ή μεγαλύτερης από  $E = 2m_e c^2 \approx 1.02 \text{ MeV}$  με το ηλεκτρικό πεδίο, το οποίο περιβάλλει τον πυρήνα. Το αποτέλεσμα, αυτής της αλληλεπίδρασης είναι η εξαφάνιση του φωτονίου με την ταυτόχρονη εκπομπή ενός ηλεκτρονίου και ενός ποζιτρονίου.

Όταν κάθε ένα φωτόνιο αλληλεπιδρά σε έναν ημιαγωγό ανιχνευτή μεταβιβάζεται ενέργεια από το φωτόνιο στα ηλεκτρόνια των ατόμων του ημιαγωγού, τα οποία μπορεί να βρίσκονται,

τόσο στις κατώτερες όσο και στις ανώτερες επιτρεπόμενες ζώνες ενέργειας του κρυστάλλου. Συνεπώς, δημιουργούνται περισσότερα ζεύγη ηλεκτρονίων και οπών, αφού τα ηλεκτρόνια, λόγω της μεταβιβαζόμενης, από το φωτόνιο, ενέργειας μπορούν να μεταπηδήσουν σε υψηλότερη ενεργειακή ζώνη. Στη συνέχεια, τα ηλεκτρόνια αλληλεπιδρούν και αυτά με την ύλη με δικούς τους μηχανισμούς, αποδίδοντας τελικά την ενέργεια στον κρύσταλλο. Τελικά, τα ηλεκτρόνια επανασυνδέονται με τις οπές μετά από κάποιο μικρό χρονικό διάστημα. Κατ' αυτόν τον τρόπο, όλη η ενέργεια της ακτινοβολίας μετατρέπεται σε θερμότητα μέσα στον κρύσταλλο του ημιαγωγού αυξάνοντας την εντροπία του συστήματος.

Η όλη παραπάνω κατάσταση αλλάζει όταν στα άκρα του ημιαγωγού εφαρμοστεί μία εξωτερική τάση. Η εξωτερική τάση προσανατολίζει την κίνηση των ηλεκτρονίων, τα οποία βρίσκονται στη ζώνη αγωγιμότητας, με αποτέλεσμα να συλλέγονται από το θετικό ηλεκτρόδιο. Σύμφωνα με τα παραπάνω για κάθε φωτόνιο, το οποίο προσπίπτει από μια εξωτερική πηγή ακτινοβολίας στον ημιαγωγό, πολλά ηλεκτρόνια μεταπηδούν σε ανώτερες ενεργειακές ζώνες, άρα και στη ζώνη αγωγιμότητας. Έτσι, αν στον ημιαγωγό εφαρμοστεί τάση, τα "νέα" αυτά ηλεκτρόνια, τα οποία έχουν μεταπηδήσει στη ζώνη αγωγιμότητας θα συλλεχθούν από το θετικό ηλεκτρόδιο, άρα θα παραχθεί ηλεκτρικός παλμός.

### 4.2.3 Δομή ανιχνευτών ημιαγωγού

Ο τύπος ενός ανιχνευτή ημιαγωγού καθορίζεται από το ημιαγώγιμο υλικό, το οποίο έχει χρησιμοποιηθεί για την κατασκευή του και από τη γεωμετρία του. Από όλα τα γνωστά ημιαγώγιμα υλικά, λοιπόν, πρέπει να γίνει η επιλογή του καταλληλότερου, ώστε να χρησιμοποιηθεί ως ανιχνευτής πυρηνικής ακτινοβολίας. Η επιλογή βασίζεται στους παρακάτω περιορισμούς:

- Μεγάλος συντελεστής εξασθένισης, δηλαδή μεγάλος ατομικός αριθμός.
- Υψηλή καθαρότητα κρυστάλλου.
- Παραγωγή πολλών φορέων για κάθε ενέργεια φωτονίου που αποτίθεται.
- Υψηλή κινητικότητα φορέων.

Τα συνηθέστερα και πιο γνωστά ημιαγώγιμα υλικά της βιομηχανίας είναι το γερμάνιο (Ge) και το πυρίτιο (Si) εκ των οποίων επικρατέστερο είναι το πυρίτιο, λόγω της εκτενούς χρήσης του σε ηλεκτρονικά συστήματα. Όσον αφορά τους ανιχνευτές πυρηνικής ακτινοβολίας το γερμάνιο

Πίνακας 4.1: Ατομικός Αριθμός(Z), Μέση απαιτούμενη ενέργεια για την παραγωγή ζεύγους ηλεκτρονίου-οπής ( $\epsilon$ ) και κινητικότητα για το γερμάνιο (Ge) και το πυρίτιο (Si) (“Scintillation Spectrometry” 2008).

Υλικό	Z	$\epsilon$ (eV)	Κινητικότητα ( $\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ )	
			ηλεκτρόνια	οπές
Ge	34	2.96	36000	42000
Si	16	3.62	1350	480

παρουσιάζει αρκετά πλεονεκτήματα έναντι του πυριτίου. Συγκεκριμένα, το γερμάνιο έχει μεγαλύτερο ατομικό αριθμό, η κινητικότητα των φορέων του είναι μίας τάξης μεγαλύτερη σε σχέση με αυτή του πυριτίου και τέλος, η μέση ενέργεια, που απαιτείται για την παραγωγή φορέων είναι μικρότερη σε σχέση με αυτή του πυριτίου (Πίνακας 4.1).

Λόγω, λοιπόν, του μεγάλου πλεονεκτήματος του γερμανίου έναντι του πυριτίου όσον αφορά τη χρήση του ως ανιχνευτής πυρηνικής ακτινοβολίας το μεγαλύτερο ποσοστό των ανιχνευτών, οι οποίοι χρησιμοποιούνται για γ-φασματοσκοπία είναι ανιχνευτές γερμανίου. Η ευρεία χρήση του γερμανίου στους ανιχνευτές αυτούς αποτέλεσε και μία ώθηση για την εξέλιξη της τεχνολογίας, με σκοπό την παραγωγή κρυστάλλων γερμανίου με πολύ υψηλά επίπεδα καθαρότητας (High Purity Germanium - HPGe), οι οποίοι αποτελούν τον κρύσταλλο του μεγαλύτερου ποσοστού των ανιχνευτών γερμανίου που χρησιμοποιούνται σήμερα.

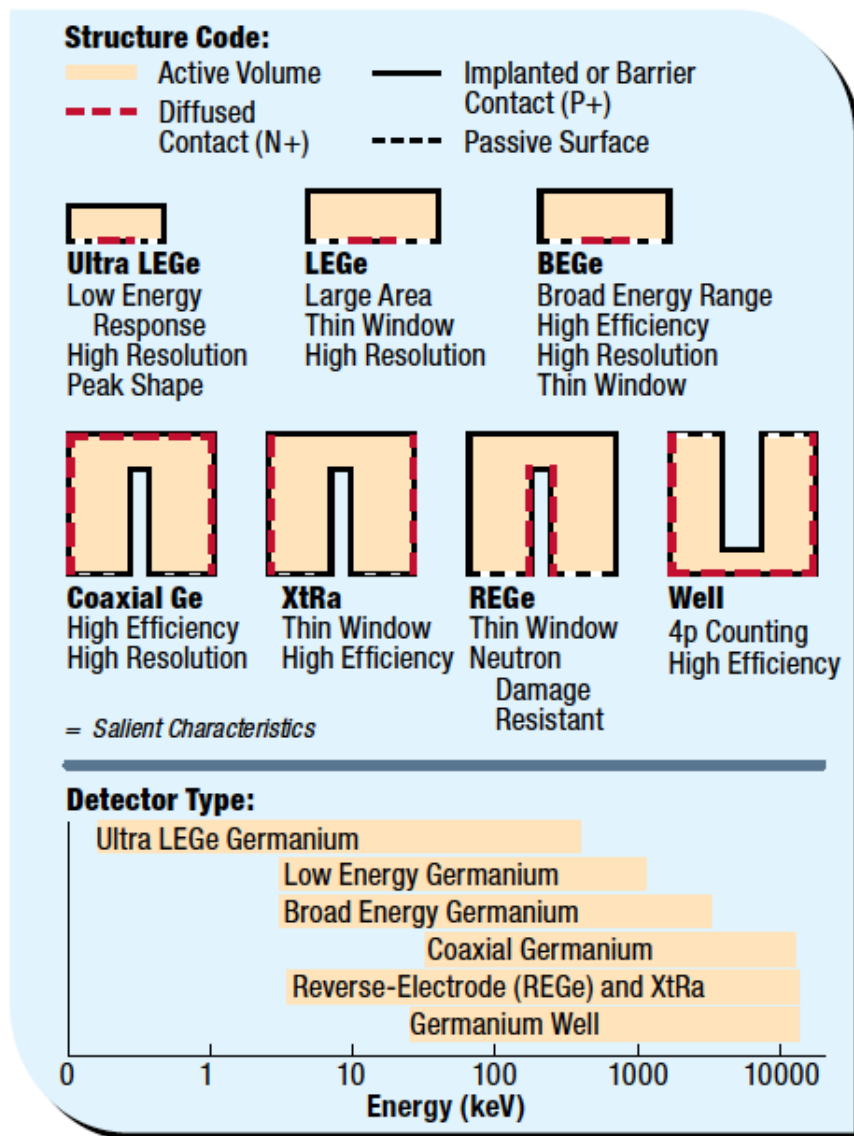
Η κατασκευή ενός ημιαγωγίου κρυστάλλου, ο οποίος προορίζεται για ανιχνευτή είναι μία εξειδικευμένη και σύνθετη διαδικασία, η οποία ξεφεύγει από τα πλαίσια αυτής της ΔΕ. Πρέπει, όμως, να τονισθεί ότι όλοι οι κρύσταλλοι αποτελούνται από τα ίδια βασικά σημεία: Τη ζώνη διαβάσεως, η οποία είναι και ο ενεργός όγκος του ανιχνευτή, δηλαδή το μέρος, όπου γίνεται η αλληλεπίδραση της πυρηνικής ακτινοβολίας με τον ημιαγωγό και τις επαφές n και p, οι οποίες βρίσκονται στα όρια του κρυστάλλου και συνδέονται με τα ηλεκτρόδια. Οι περιοχές n και p πρέπει να είναι όσο μικρότερες γίνεται, ώστε να περιορίζεται η αλληλεπίδραση των φωτονίων σε αυτές, έτσι ώστε να μη χάνουν ενέργεια και να την αποθέτουν εξ' ολοκλήρου στον ενεργό όγκο του ανιχνευτή. Οι περιοχές αυτές αναφέρονται στη βιβλιογραφία ως η νεκρή ζώνη του ανιχνευτή (dead layer). Ανάλογα τη γεωμετρία και την κατασκευή τους οι ανιχνευτές γερμανίου μπορούν να κατηγοριοποιηθούν όπως φαίνεται στο Σχήμα 4.4. Στο ίδιο σχήμα φαίνονται και οι ενέργειες της πυρηνικής ακτινοβολίας για τις οποίες προορίζεται ο κάθε τύπος ανιχνευτή. Φαίνεται, δηλαδή, ότι οι ενέργειες για τις οποίες προορίζεται ο κάθε ανιχνευτής, άρα και η

απόδοσή του στο φάσμα αυτών των ενεργειών, εξαρτάται άμεσα από την κατασκευή και τη γεωμετρία του.

Για λόγους προστασίας του ανιχνευτή, αυτός βρίσκεται εν κενό, μέσα σε κατάλληλη θήκη (κρυστάτης) που είναι κατασκευασμένη από αλουμίνιο υψηλής καθαρότητας. Για την είσοδο της ακτινοβολίας στον ανιχνευτή διαμορφώνεται κατάλληλο παράθυρο στο σημείο όπου θα τοποθετηθεί το δείγμα. Το παράθυρο των ανιχνευτών πρέπει να είναι κατασκευασμένο από υλικό με χαμηλό ατομικό αριθμό, δηλαδή με χαμηλό συντελεστή εξασθένισης, έτσι ώστε να φωτόνια της πηγής να μην αλληλεπιδρούν με το παράθυρο χάνοντας μέρος της ενέργειάς τους. Συνήθη υλικά κατασκευής των παραθύρων – εκτός από το αλουμίνιο του κρυστάτη - είναι το βηρύλλιο και τα ανθρακονήματα.

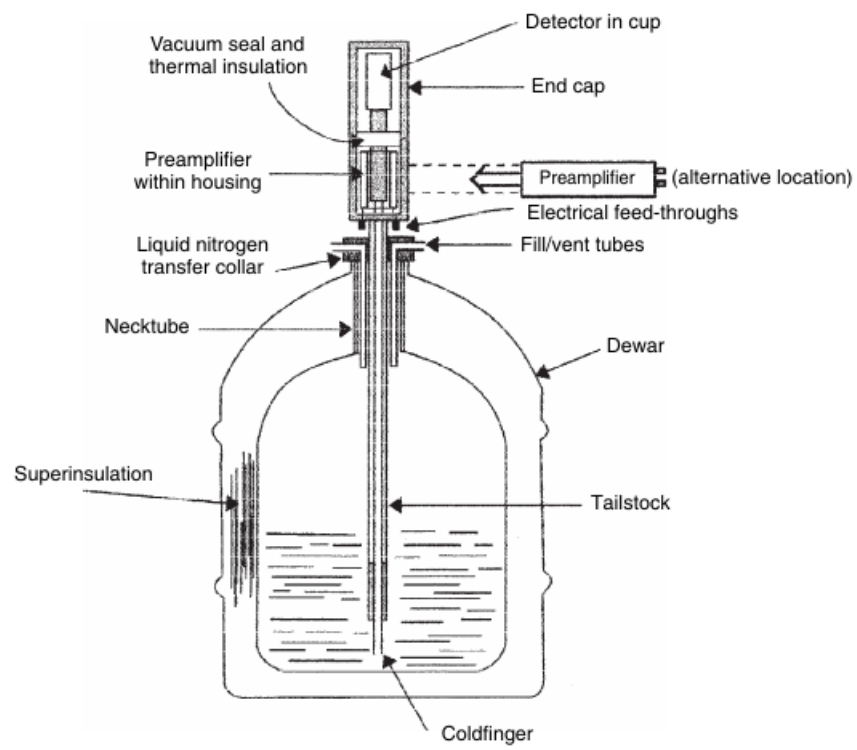
Όπως φαίνεται και στους κυλινδρικούς ανιχνευτές του Σχήματος 4.4 υπάρχει στο κέντρο τους μία κυλινδρική διαμόρφωση, η οποία χρησιμοποιείται για την καλύτερη διαμόρφωση του ηλεκτρικού πεδίου μέσα στον ανιχνευτή, ιδιαίτερα όταν αυτός έχει μεγάλο όγκο. Το μεγαλύτερο μειονέκτημα, των ανιχνευτών γερμανίου είναι η ανάγκη για συνεχή ψύξη κατά τη λειτουργία τους. Συγκεκριμένα, όπως φαίνεται και στον Πίνακα 4.1, για το γερμάνιο απαιτείται σχετικά μικρή ενέργεια για τη δημιουργία φορέων, με αποτέλεσμα να δημιουργούνται φορείς σε θερμοκρασία περιβάλλοντος. Τα ηλεκτρόνια που περνούν με αυτόν τον τρόπο στη ζώνη αγωγιμότητας ονομάζονται θερμικά ηλεκτρόνια και αποτελούν και αυτά θόρυβο, ενώ οδηγούν και σε μείωση και της διακριτικής ικανότητας του ανιχνευτή. Εξ' αιτίας των παραπάνω οι ανιχνευτές γερμανίου πρέπει να βρίσκονται σε διαρκή ψύξη, η οποία επιτυγχάνεται με βύθιση του κρυστάτη σε ειδικά δοχεία (Dewar) με υγρό άζωτο, το οποίο διατηρεί τον κρύσταλλο σε χαμηλή θερμοκρασία. Μία σχηματική παρουσίαση ενός τυπικού ανιχνευτή γερμανίου φαίνεται στο Σχήμα 4.5.

Τέλος, κρίνεται σκόπιμο να αναφερθεί ότι οι πρώτοι ανιχνευτές γερμανίου, οι οποίοι κατασκευάστηκαν είναι οι ανιχνευτές GeLi. Οι ανιχνευτές αυτοί βρήκαν εφαρμογή, εξ' αιτίας της κατασκευαστικής του ευκολίας. Το γερμάνιο συνήθως βρίσκεται σε μορφή p, ενώ το λίθιο, το οποίο μπορεί εύκολα να τοποθετηθεί στον κρύσταλλο δρα ως εμπλουτισμός τύπου n. Τέτοιοι ανιχνευτές δεν κατασκευάζονται πλέον, όμως ακόμα υπάρχουν και χρησιμοποιούνται από πολλά εργαστήρια. Αντίστοιχης νοοτροπίας είναι και οι ανιχνευτές SiLi, οι οποίοι έχουν ως βάση το πυρίτιο, όμως συνεχίζουν να βρίσκουν εφαρμογή και σήμερα κυρίως σε φασματοσκοπία ακτίνων-χ.



Σχήμα 4.4: Κατηγορίες ανιχνευτών γερμανίου σύμφωνα με την κατασκευαστική εταιρεία ανιχνευτών Canberra Industries (Ιστοσελίδα της Canberra Industries).





Σχήμα 4.5: Τυπική δομή ανιχνευτή γερμανίου με χρυσστάτη βυθισμένο σε δοχείο (Dewar) (“Scintillation Spectrometry” 2008).

## 4.3 Παραγωγή και επεξεργασία του $\gamma$ -Φάσματος

### 4.3.1 Εισαγωγή

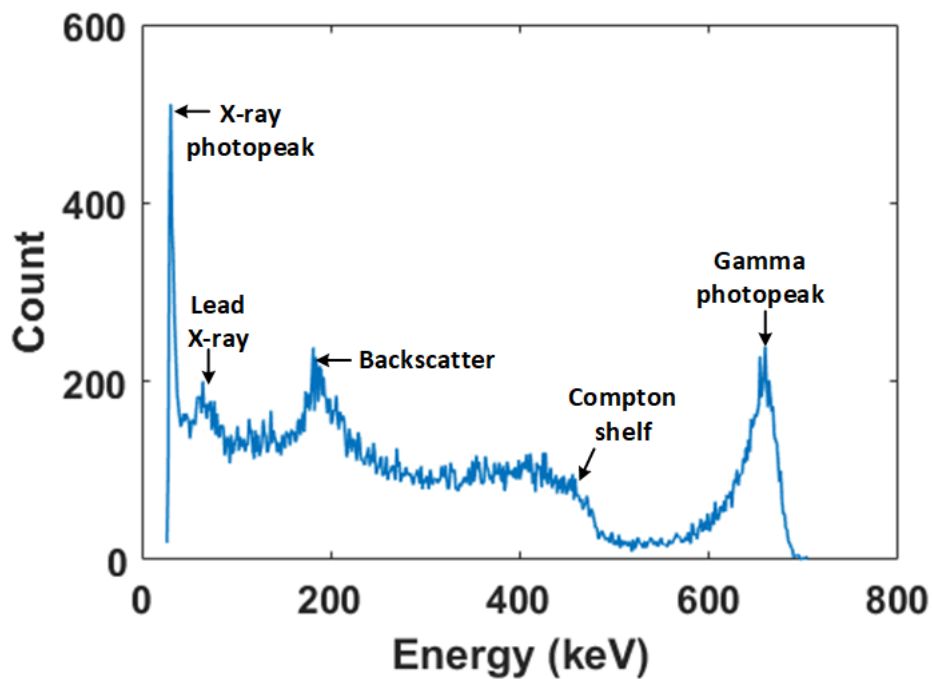
Όπως αναφέρθηκε στην Παράγραφο 4.1.3 το φάσμα δημιουργείται από τον πολυκαναλικό αναλυτή, ο οποίος διαχωρίζει τη διαθέσιμη μνήμη στο κατάλληλο πλήθος καναλιών. Έτσι, πρακτικά σε κάθε θέση μνήμης αντιστοιχίζεται μία ενέργεια. Κατά τη διάρκεια της μέτρησης όταν ένα φωτόνιο αποθέτει όλη του την ενέργεια στον κρύσταλλο του ανιχνευτή μέσω κάποιας αλληλεπίδρασης, δημιουργείται ένας ηλεκτρικός παλμός, ο οποίος συλλέγεται και ονομάζεται γεγονός (event). Το φορτίο του παλμού εξαρτάται από την ενέργεια του φωτονίου, το οποίο απέθεσε την ενέργειά του στον ανιχνευτή. Όσο μεγαλύτερη η ενέργεια του φωτονίου, τόσο περισσότερα ελεύθερα ηλεκτρόνια παράγονται στον κρύσταλλο, άρα συλλέγονται και περισσότερα ηλεκτρόνια από τα ηλεκτρόδια, το οποίο σημαίνει και παλμός μεγαλύτερου φορτίου. Ο πολυκαναλικός αναλυτής, λοιπόν, κατατάσσει τον παλμό στο κατάλληλο κανάλι, δηλαδή στην κατάλληλη ενέργεια, ανάλογα με το φορτίο του. Στο τέλος, αθροίζονται όλα αυτά τα γεγονότα, με αποτέλεσμα να δημιουργείται ένα διάγραμμα από τα καταγεγραμμένα γεγονότα (counts) συναρτήσει της ενέργειας.

Εως αυτό το σημείο μπορούν να διατυπωθούν δύο βασικά ερωτήματα, τα οποία θα απαντηθούν σε αυτό το κεφάλαιο. Αρχικά, πώς μπορεί να οριστεί η απόδοση ενός ανιχνευτή πυρηνικής ακτινοβολίας, δηλαδή η συσχέτιση των counts που καταγράφονται με τα φωτόνια που εκπέμπονται από την πηγή. Επιπλέον, σε ένα τυπικό φάσμα παρατηρούνται counts σε όλες τις ενέργειες. Από πού προέρχονται αυτά τα counts και ποια η τυπική μορφή ενός απλού φάσματος;

### 4.3.2 Το $\gamma$ -Φάσμα και η στατιστική της μέτρησης

Όπως ειπώθηκε και προηγουμένως ο πολυκαναλικός αναλυτής αντιστοιχίζει σε κάθε κανάλι που διαθέτει ένα εύρος ενέργειας, το οποίο ονομάζεται ενεργειακό παράθυρο. Για παράδειγμα, εάν ο πολυκαναλικός αναλυτής διαθέτει 4096 κανάλια, τότε για το διάστημα ενέργειας 0 έως 2048 keV το ενεργειακό παράθυρο παίρνει την τιμή 0.5 keV, το οποίο σημαίνει ότι δύο γεγονότα, τα οποία αντιστοιχούν σε φωτόνια με διαφορά ενέργειας 0.2 keV καταγράφονται στο ίδιο κανάλι.

Όταν λοιπόν ένα γεγονός καταγράφεται από τον πολυκαναλικό αναλυτή, σημαίνει ότι κατα-



Σχήμα 4.6: γ-Φάσμα του ραδιενεργού  $^{137}\text{Cs}$ , κατασκευασμένο με προσομοίωση (Ukaegbu and Gamage, 2018)

γράφεται στο κατάλληλο κανάλι. Κατ' αυτόν τον τρόπο προκύπτει ένα διάγραμμα - το φάσμα, στο οποίο φαίνονται τα καταγεγραμμένα γεγονότα σε κάθε κανάλι, δηλαδή σε κάθε εύρος ενέργειας. Σε πρώτη ανάλυση, λοιπόν, θα περίμενε κανείς ότι αν τοποθετηθεί στον ανιχνευτή ένα δείγμα με ένα ραδιενεργό ισότοπο, τότε το φάσμα θα αποτελούνταν απλώς από γεγονότα καταγεγραμμένα στο κατάλληλο παράθυρο ενέργειας. Εν αντιθέσει, ένα απλό φάσμα ενός ραδιενεργού ισότοπου φαίνεται στο Σχήμα 4.6. Το φάσμα αυτό έχει κατασκευαστεί με υπολογιστική προσομοίωση και αντιπροσωπεύει το γ-φάσμα που δημιουργεί μία ανιχνευτική διάταξη γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης εάν είχε τοποθετηθεί στον ανιχνευτή δείγμα, το οποίο περιείχε το ραδιενεργό ισότοπο  $^{137}\text{Cs}$ .

Φαίνεται αμέσως ότι το Σχήμα 4.6 δεν έχει την αναμενόμενη μορφή. Αντί για μία μοναδική κορυφή στην ενέργεια 662 keV, η οποία είναι ενέργεια των φωτονίων που εκπέμπονται από το  $^{137}\text{Cs}$ , παρατηρούνται πέντε κορυφές διαφορετικού ύψους και μορφής, οι οποίες βρίσκονται πάνω από ένα συνεχές υπόστρωμα. Η κορυφή, η οποία βρίσκεται στην υψηλότερη ενέργεια είναι αυτή, που οφείλεται στα φωτόνια της ραδιενεργού διάσπασης του  $^{137}\text{Cs}$ . Οι κορυφές των φωτονίων, οι οποίες ανιχνεύονται σε ένα γ-φάσμα και έχει διαπιστωθεί από την ανάλυση του φάσματος ότι

οφείλονται στην πλήρη απόθεση ενέργειας των φωτονίων του δείγματος ονομάζονται φωτοκορυφές.

Αριστερά της φωτοκορυφής, η πρώτη κορυφή, η οποία συναντάται είναι η κορυφή-αιχμή Compton (Compton edge). η οποία οφείλεται στα φωτόνια εκείνα που κατά πραγματοποιούν σκέδαση Compton με τον ανιχνευτή και αποθέτουν τμήμα μόνο της ενέργειάς τους σε αυτόν. Συνεπώς, η αιχμή Compton εμφανίζεται σε όλα τα γ-φάσματα στην περιοχή των χαμηλών ενεργειών και μάλιστα αρκετές φορές αποτελεί και σημαντικό πρόβλημα, επειδή καλύπτει φωτοκορυφές στις χαμηλές ενέργειες.

Αμέσως επόμενη κορυφή είναι αυτή της οπισθοσκέδασης (backscattering). Η αιχμή της οπισθοσκέδασης παρατηρείται από τα φωτόνια της πηγής τα οποία αποθέτουν την ενέργειά τους στον ανιχνευτή, ύστερα από μη-ελαστική σκέδαση μεγάλης γωνίας με τη θωράκιση. Κατ' αυτόν τον τρόπο η ενέργεια τους μειώνεται σύμφωνα με τη Σχέση 4.1, όπου ο όρος  $m_0c^2$  είναι η ενέργεια ηρεμίας του ηλεκτρονίου, δηλαδή  $m_0c^2 = 511 \text{ keV}$  και  $\theta$  η γωνία της σκέδασης. Οπότε, εφαρμόζοντας τη Σχέση 4.1 για την ενέργεια  $E_\gamma = 662 \text{ keV}$  των φωτονίων του  $^{137}\text{Cs}$  και  $\theta = 120^\circ$  υπολογίζεται  $E'_\gamma \approx 220 \text{ keV}$ , το οποίο ανήκει στο διάστημα της κορυφής οπισθοσκέδασης που παρατηρείται στο φάσμα του Σχήματος 4.6.

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0c^2}(1 - \cos(\theta))} \quad (4.1)$$

Τέλος, οι δύο δεξιότερες κορυφές στις χαμηλότερες ενέργειες ανήκουν σε χαρακτηριστικές ακτίνες-χ του υλικού της θωράκισης – συνήθως μόλυβδος. Όσον αφορά στο συνεχές υπόστρωμα πάνω από το οποίο παρατηρούνται οι κορυφές, αυτό οφείλεται, σε μεγάλο βαθμό, στην ακτινοβολία υποβάθρου, η οποία διαπερνά τη θωράκιση του ανιχνευτή και ανιχνεύεται από τη διάταξη. Σε αυτό το σημείο πρέπει να τονισθεί ότι το συνεχές υπόστρωμα έχει καθοριστικό ρόλο στη στατιστική και στην ανάλυση ενός φάσματος. Πρέπει πάντα να αφαιρείται, ώστε η ραδιενέργεια των ισοτόπων του περιβάλλοντος να μην προσμετράται στη ραδιενέργεια των ισοτόπων του δείγματος.

Πρέπει να έχει γίνει σαφές έως τώρα ότι η πυρηνική ακτινοβολία, άρα και η μέτρησή της, είναι ένα φαινόμενο, το οποίο χαρακτηρίζεται από πολύ μεγάλη τυχαιότητα. Ο τρόπος με τον οποίο θα αλληλεπιδράσει κάθε σωματίδιο είναι εξ' ορισμού τυχαίος, αφού εξαρτάται σε μικροσκοπικό επίπεδο από κβαντομηχανικούς και θερμοδυναμικούς παράγοντες. Αυτός είναι και ο λόγος, για τον οποίο σε ένα φάσμα καταγράφονται γεγονότα σε κάθε ενεργειακό παράθυρο. Τα σωματίδια αλληλεπιδρούν τυχαία, οπότε και η ενέργεια, με την οποία θα συνεχίσουν την πορεία τους και θα ανιχνευτούν είναι και αυτή τυχαία, δηλαδή μπορεί να ανήκει σε όλο το φάσμα ενέργειας που

εξετάζεται. Αν τώρα στο υπό εξέταση δείγμα υπάρχει αρκετή ποσότητα από κάποιο ραδιενεργό ισότοπο τότε, λόγω του μεγαλύτερου αριθμού φωτονίων από αυτό το ισότοπο το φωτοηλεκτρικό φαινόμενο εντός του ανιχνευτή θα είναι και εντονότερο. Έτσι, θα καταγράφονται και περισσότερα γεγονότα στην περιοχή της πλήρους απόθεσης ενέργειας του φωτονίου. Με αυτόν τον τρόπο δημιουργείται η φωτοκορυφή, η οποία θεωρείται με καλή προσέγγιση (λόγω και της τυχαιότητας του φαινομένου, η οποία προαναφέρθηκε) ότι έχει τη μορφή καμπύλης Gauss.

Τα δύο κυριότερα στατιστικά μεγέθη, τα οποία χρειάζονται για την ανάλυση μίας φωτοκορυφής είναι το κεντρο της φωτοκορυφής και κάποιο μέτρο του πλάτους της, όπως το εύρος ημίσειας ύψους (Full Width at Half Maximum, FWHM). Το κεντρο της φωτοκορυφής είναι αυτό, το οποίο αντιπροσωπεύει την ενέργεια του ανιχνευόμενου φωτονίου, ενώ το *FWHM* είναι ένα μέτρο της αβεβαιότητας της ενέργειας και σχετίζεται με την τυπική απόκλιση μέσω της σχέσης  $FWHM = 2\sqrt{2\ln(2)}\sigma \approx 2.355\sigma$ . Με μαθηματικές μεθόδους και μεθόδους αριθμητικής ανάλυσης υπολογίζεται το εμβαδόν της φωτοκορυφής, το οποίο εκφράζει το συνολικό αριθμό γεγονότων που αντιστοιχούν στη συγκεκριμένη ενέργεια. Σε αυτό το σημείο αξίζει να σημειωθεί ότι είναι πολύ σημαντικό από τη μέτρηση να σχηματιστεί μία φωτοκορυφή, η οποία να μπορεί να προσεγγιστεί όσο το δυνατόν καλύτερα από μια κανονική κατανομή. Κυρίαρχο ρόλο σε αυτό παίζει η χρονική διάρκεια ανάλυσης του δείγματος και συλλογής του φάσματος, ώστε η φωτοκορυφή να αποκτήσει «καλή στατιστική», καθώς και η σωστή επιλογή του πλήθους των καναλιών για το ενεργειακό εύρος που εξετάζεται και τον ανιχνευτή που χρησιμοποιείται. κές κατανομές θα είναι καλύτερη, οπότε τα αποτελέσματα θα έχουν μεγαλύτερη αξιοπιστία.

### 4.3.3 Απόδοση του ανιχνευτή

Ο βασικός σχεδιασμός μίας ανιχνευτικής διάταξης πυρηνικής ακτινοβολίας έχει περιγραφεί στην Παράγραφο 4.1.1 και φαίνεται σχηματικά στο Σχήμα 4.1. Οι ραδιενεργές διασπάσεις που πραγματοποιούνται στην πηγή έχουν ως αποτέλεσμα η πυρηνική ακτινοβολία να εκπέμπεται σφαιρικά και ισότροπα προς όλες τις κατευθύνσεις, με αποτέλεσμα μόνο ένα μέρος των σωματιδίων να καταλήγουν τελικά στον ανιχνευτή. Συνεπώς, μπορεί να οριστεί ένας βαθμός απόδοσης, ο οποίος να συσχετίζει τα φωτόνια, τα οποία καταλήγουν τελικά να καταγράφονται (γεγονότα), σε σχέση με το σύνολο των φωτονίων, τα οποία εκπέμπει η πηγή. Αυτός ο ορισμός αποτελεί τον Απόλυτο Βαθμό Απόδοσης της διάταξης. Είναι φανερό, ότι η γεωμετρία ανιχνευτή - πηγής έχει άμεση επιρροή στον Απόλυτο Βαθμό Απόδοσης της διάταξης. Χαρακτηριστικό παράδειγμα αυτής της παρατήρησης είναι οι ανιχνευτές τύπου Well, των οποίων η γεωμετρία φαίνεται στο Σχήμα 4.4. Οι ανιχνευτές αυτοί έχουν μία κοιλότητα, μέσα στην οποία τοποθετείται το δείγμα

με αποτέλεσμα η πηγή πρακτικά να περιβάλεται από τον ανιχνευτή (γεωμετρία 4π). Αυτό έχει ως αποτέλεσμα να αυξάνεται ο Απόλυτος Βαθμός Απόδοσης.

Το βασικό πρόβλημα του παραπάνω ορισμού είναι η εξάρτηση από τη γεωμετρία. Για να μπορέσει να αποφευχθεί η εξάρτηση αυτή ορίζεται ο Εσωτερικός Βαθμός Απόδοσης του ανιχνευτή, ο οποίος συσχετίζει μόνο τα φωτόνια, τα οποία προσπίπτουν στο παράθυρο του ανιχνευτή με τα τελικώς καταγραφόμενα γεγονότα. Ο ορισμός αυτός δε λαμβάνει υπόψη καθόλου τη γεωμετρία, αφού όπου και αν τοποθετηθεί το δείγμα η συσχέτιση θα λάβει υπόψη μόνο τα φωτόνια, τα οποία τελικά κατέληξαν στον ανιχνευτή και όχι αυτά που διέφυγαν προς άλλες κατευθύνσεις, λόγω της γεωμετρίας.

Κατά τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση, η πληροφορία η οποία μπορεί να οδηγήσει στην εκτίμηση της ραδιενέργειας του δείγματος που αναλύεται είναι το πλήθος των γεγονότων που καταγράφονται κάτω από μία φωτοκορυφή. Τα γεγονότα που καταγράφονται σε άλλα σημεία του φάσματος δεν μπορούν να αξιοποιηθούν για τον προσδιορισμό της ραδιενέργειας, καθώς δεν είναι δυνατόν να ταυτοποιηθεί η ενέργεια των φωτονίων στα οποία οφείλονται, ιδιαίτερα στις περιπτώσεις που μία πηγή εκπέμπει φωτόνια σε πολλές ενέργειες. Υπάρχει λοιπόν ανάγκη αλλά και δυνατότητα συσχέτισης της επιφάνειας μίας φωτοκορυφής με τη ραδιενέργεια της πηγής που εκπέμπει τα αντίστοιχα φωτόνια. Αυτό γίνεται μέσω της Απόδοσης Φωτοκορυφής, η οποία εκφράζει το λόγο των φωτονίων μίας συγκεκριμένης ενέργειας, τα οποία έχουν αποδόσει πλήρως την ενέργειά τους στον ανιχνευτή σε σχέση με τα φωτόνια της συγκεκριμένης ενέργειας, τα οποία έχει εκπέμψει η πηγή. Μαθηματικά, ο βαθμός απόδοσης φωτοκορυφής υπολογίζεται από τη Σχέση 4.2, στην οποία το πλήθος των γεγονότων υπολογίζεται από την επιφάνεια της φωτοκορυφής κατά την ανάλυση του φάσματος,  $R[Bq]$  είναι η ραδιενέργεια της πηγής,  $\Delta t[s]$  η διάρκεια ανάλυσης του δείγματος και τέλος yield είναι το ποσοστό εκπομπής των φωτονίων της συγκεκριμένης ενέργειας. Η Απόδοση Φωτοκορυφής έχει έντονη εξάρτηση από τη γεωμετρία πηγής - ανιχνευτή.

$$\epsilon = \frac{\text{counts}}{R \cdot \Delta t \cdot \text{yield}} \quad (4.2)$$

Για εμπορικούς λόγους και για λόγους συγκρίσεως μεταξύ δύο ανιχνευτών πρέπει να υπάρχει ένα μέγεθος απόδοσης, μέσω του οποίου να γίνεται κάποιος ποιοτικός διαχωρισμός των ανιχνευτών. Αυτό το σκοπό εξυπηρετεί ο **Σχετικός Βαθμός Απόδοσης** ενός ανιχνευτή. Ως Σχετική Απόδοση ενός ανιχνευτή ορίζεται η απόδοσή του σε σχέση με έναν πρότυπο ανιχνευτή NaI, στον οποίο έχει τοποθετηθεί πρότυπη πηγή σε συγκεκριμένη γεωμετρία. Ο Σχετικός Βαθμός Απόδοσης είναι και ο μοναδικός δείκτης απόδοσης, ο οποίος δίνεται από τους

κατασκευαστές ανιχνευτικών διατάξεων και μπορεί να έχει και τιμή πάνω από 100%.

#### 4.3.4 Βαθμονόμηση του Ανιχνευτή

Στην Παράγραφο 4.3.3 δόθηκε ο ορισμός της Απόδοσης Φωτοκορυφής ενός ανιχνευτή, καθώς και Σχέση 4.2, η οποία είναι η αναλυτική μαθηματική έκφραση του βαθμού απόδοσης. Στη σχέση αυτή υπάρχει το μέγεθος  $R$ , το οποίο είναι η ραδιενέργεια της πηγής, άρα και το ζητούμενο από τη μέτρηση ενός δείγματος. Φαίνεται, λοιπόν, ότι η απόδοση ενός ανιχνευτή είναι καθοριστικό μέγεθος για τη μέτρηση, αφού πρέπει να είναι γνωστή εκ των προτέρων, ώστε να επιτευχθεί ο σκοπός της μέτρησης, δηλαδή ο υπολογισμός της ραδιενέργειας ενός δείγματος. Η διαδικασία, μέσω της οποίας υπολογίζεται ο βαθμός απόδοσης φωτοκορυφής ενός ανιχνευτή συναρτήσει της ενέργειας ονομάζεται Βαθμονόμηση Απόδοσης του ανιχνευτή.

Για να γίνει σωστά η διαδικασία της βαθμονόμησης πρέπει, αρχικά, να ρυθμιστούν τα τεχνικά χαρακτηριστικά της διάταξης, στη συνέχεια να επιλεγεί μία γεωμετρία και τέλος να γίνουν μετρήσεις για διάφορες ενέργειες από πηγές γνωστής ραδιενέργειας, από τις οποίες θα προκύπτει ένα γ-φάσμα, από την ανάλυση του οποίου και μέσω της Σχέσης 4.2 θα υπολογίζεται ο βαθμός απόδοσης για κάθε φωτοκορυφή. Η ρύθμιση των τεχνικών παραμέτρων και η επιλογή της γεωμετρίας γίνεται άμεσα. Για τις μετρήσεις, όμως, απαιτούνται πηγές γνωστής ραδιενέργειας, οι οποίες πρέπει και να περιέχουν ραδιενεργά ισότοπα, τα οποία να εκπέμπουν φωτόνια σε όλο το φάσμα της ενέργειας. Δύο είναι οι κύριοι τρόποι για να γίνει αυτή η διαδικασία της μέτρησης:

1. Πειραματικά, με χρήση πιστοποιημένων πηγών βαθμονόμησης (Certified Reference Sources).
2. Υπολογιστικά, με χρήση μεθόδων προσομοίωσης Monte-Carlo.

Για άλλη μία φορά τονίζεται ότι η πυρηνική ακτινοβολία και η αλληλεπίδραση της με την ύλη, άρα και η διαδικασία μέτρησής της είναι φαινόμενα εκ φύσεως στοχαστικά και τυχαία. Πέρα, όμως, από την τυχαία φύση του φαινομένου, της οποίας η επίδραση έχει ήδη αναλυθεί, η απόδοση ενός ανιχνευτή επηρεάζεται και από τρία (3), άλλα φαινόμενα. Τα φαινόμενα προκύπτουν από συνδυασμό της στοχαστικότητας του φαινομένου με την εξάρτηση της απόδοσης από τη γεωμετρία και τα τεχνικά χαρακτηριστικά της διάταξης (π.χ. χρόνος περισυλλογής του φορτίου). Τα τρία αυτά φαινόμενα είναι:

- **Αυτοαπορρόφηση (Self-Absorption)** : Πρόκειται για το φαινόμενο κατά το οποίο τα φωτόνια της πηγής αλληλεπιδρούν και σταματούν την πορεία τους πριν εξέλθουν από

τη γεωμετρία του δείγματος. Απορροφούνται, δηλαδή από την ίδια την πηγή. Το φαινόμενο αυτό είναι ιδιαίτερης σημασίας, ιδίως για φωτόνια χαμηλών ενεργειών και για πηγές μεγάλου όγκου.

- **Πραγματική Σύμπτωση (True Coincidence)** : Πρόκειται για το φαινόμενο, κατά το οποίο δύο ή περισσότερα φωτόνια διαφορετικής ενέργειας, προερχόμενα, όμως, από τον ίδιο πυρήνα φτάνουν στον κρύσταλλο σχεδόν την ίδια στιγμή, αποθέτουν την ενέργειά τους και δημιουργείται ένας μοναδικός παλμός, με αποτέλεσμα να προσμετρώνται στο γ-φάσμα ως ένα γεγονός, το οποίο αντιστοιχεί σε ένα φωτόνιο με ενέργεια ίση με το άθροισμα των ενεργειών των δύο φωτονίων.
- **Τυχαία Άθροιση (Random Summing)** : Πρόκειται για το φαινόμενο, κατά το οποίο δύο ή περισσότερα φωτόνια διαφορετικής ενέργειας φτάνουν στον κρύσταλλο του ανιχνευτή σχεδόν ταυτόχρονα, αποθέτουν την ενέργειά τους και τελικά καταμετρώνται στο γ-φάσμα ως ένα, όπως προηγούμενως.

Κατά την πειραματική διαδικασία βαθμονόμησης οι πιστοποιημένες πηγές τοποθετούνται στην κατάλληλη θέση σε σχέση με τον ανιχνευτή και το φάσμα συλλέγεται για επαρκή χρόνο ώστε να σχηματισθεί ικανοποιητικά το φάσμα της πιστοποιημένης πηγής. Η ραδιενέργεια της πηγής ( $R$ ) για κάθε ραδιενεργό ισότοπο που περιέχει είναι γνωστή από το πιστοποιητικό, το οποίο τη συνοδεύει. Αντίστοιχα, τα ποσοστά εκπομπής (*yield*) για κάθε. Τέλος, το πλήθος των γεγονότων κάτω από κάθε φωτοκορυφή του φάσματος υπολογίζονται από την ανάλυση του φάσματος, οπότε μέσω της Σχέσης 4.2 μπορεί να υπολογιστεί η απόδοση για κάθε ενέργεια φωτονίων της πιστοποιημένης πηγής.

Η υπολογιστική βαθμονόμηση γίνεται με χρήση της μεθόδου προσομοίωσης Monte-Carlo. Η μέθοδος αυτή βρίσκει εφαρμογή γενικότερα σε στοχαστικά προβλήματα, όπως αυτό της αλληλεπίδρασης των σωματιδίων. Η γενική αρχή είναι ότι δημιουργεί σενάρια, τα οποία χαρακτηρίζονται από πιθανότητες να συμβούν και να εξελιχθούν με διάφορους τρόπους. Έτσι, με επάρκεια χρόνου μπορεί να δημιουργηθεί μία καλή στατιστική προσέγγιση του στοχαστικού φαινομένου.

Τόσο στην περίπτωση της πειραματικής, όσο και της υπολογιστικής βαθμονόμησης δεν προκύπτει μία συνάρτηση της μορφής  $\epsilon = f(E)$ , αλλά μία σειρά από διακριτά σημεία ( $\epsilon_i, E_i$ ). Τα σημεία αυτά είναι η τιμή της απόδοσης για διακριτές τιμές ενέργειας φωτονίων. Πρέπει, λοιπόν, σε δεύτερη φάση, για να ολοκληρωθεί η διαδικασία βαθμονόμησης της απόδοσης να γίνει μία παρεμβολή στα σημεία αυτά. Στη βιβλιογραφία υπάρχουν πάρα πολλές μέθοδοι κατάλληλες για τέτοιου τύπου παρεμβολές. Ενδεικτικά δίνεται η βιβλιογραφική αναφορά (Owens, 1989), από



την οποία γίνεται σαφές ότι οι γραμμικές παρεμβολές δεν είναι επαρκείς προσεγγίσεις για τη συνάρτηση  $\epsilon = f(E)$ .

Η βαθμονόμηση απόδοσης είναι υψίστης σημασίας για μία μετρητική διάταξη πυρηνικής ακτινοβολίας, επειδή μέσω της απόδοσης υπολογίζεται η ραδιενέργεια του δείγματος. Πέρα, όμως, από τη βαθμονόμηση απόδοσης, στους ανιχνευτές πυρηνικής ακτινοβολίας πρέπει να γίνει και βαθμονόμηση ενέργειας  $E = f(ch)$ , αλλά και βαθμονόμηση διακριτικής ικανότητας  $FWHM = f(ch)$ , οι οποίες μάλιστα πρέπει να προηγηθούν της βαθμονόμησης απόδοσης. Οι βαθμονομήσεις αυτές γίνονται πάντα πειραματικά.

## 4.4 Η γ-φασματοσκοπική ανάλυση στο ΕΠΤ-ΕΜΠ

### 4.4.1 Ο Εξοπλισμός του Εργαστηρίου

Το ΕΠΤ-ΕΜΠ δραστηριοποιείται περίπου από το 1970 στο χώρο της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης περιβαλλοντικών δειγμάτων. Διαθέτει ένα πλήρως εξοπλισμένο εργαστήριο, ενώ έχει αναπτύξει και το δικό του κώδικα ανάλυσης και επεξεργασίας γ-φασμάτων (SPUNAL). Για τις ανάγκες της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης το ΕΠΤ-ΕΜΠ πέντε ανιχνευτές HPGe, εκ των οποίων οι τέσσερις χρησιμοποιούνται για *in vitro* μετρήσεις, ενώ ένας είναι φορητός για μετρήσεις *in situ*. Συνοπτικά οι ανιχνευτές του εργαστηρίου είναι (Δ.Δ. Κ.Καρφόπουλου, 2012):

- Ανιχνευτική διάταξη με ανιχνευτή γερμανίου υψηλής καθαρότητας HPGe, σχετικής απόδοσης 33.8% με διακριτική ικανότητα σε όρους  $FWHM$  0.85keV για φωτόνια ενέργειας 122.06keV και 1.78keV για φωτόνια ενέργειας 1332.50keV. Ο λόγος peak-to-Compton για φωτόνια ενέργειας 1332.50keV είναι 66.5 : 1.
- Ανιχνευτική διάταξη με ανιχνευτή γερμανίου χαμηλών ενεργειών (Low Energy Germanium, LEGe). Η διάταξη είναι κατάλληλα βαθμονομημένη ώστε να χρησιμοποιείται για την ανίχνευση φωτονίων στις ενεργειακές περιοχές 20Γ200keV ή 20Γ2000keV. Η διακριτική ικανότητα του ανιχνευτή σε όρους  $FWHM$  είναι 341eV για φωτόνια ενέργειας 5.9keV και 530eV για φωτόνια ενέργειας 122keV.

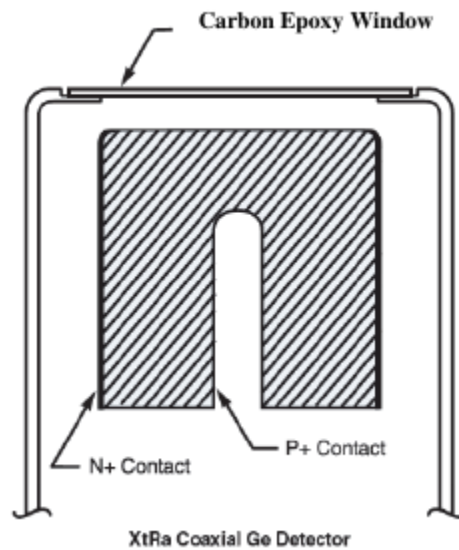
- Ανιχνευτική διάταξη με ανιχνευτή γερμανίου εκτεταμένου εύρους (Extended Range, XtRa), η οποία αναλύεται λεπτομερώς στο Κεφάλαιο 4.4.2, καθώς είναι αυτή που κυρίως χρησιμοποιήθηκε στην ΔΕ.
- Ανιχνευτική διάταξη με ανιχνευτή γερμανίου υψηλής καθαρότητας (High Purity Germanium, HPGe), η οποία αποτελεί και τη νεότερη ανιχνευτική διάταξη του ΕΠΤ-ΕΜΠ, καθώς τέθηκε σε λειτουργία το 2012. Η διάταξη βασίζεται σε ομοαξονικό ανιχνευτή, ενώ η σχετική απόδοση είναι 40.9%. Η διακριτική ικανότητα του ανιχνευτή σε όρους *FWHM* είναι  $0.875\text{keV}$  για ενέργεια φωτονίων  $122.06\text{keV}$  και  $1.8\text{keV}$  για ενέργεια φωτονίων  $1332.50\text{keV}$ . Ο λόγος peak-to-Compton για φωτόνια ενέργειας  $1332.50\text{keV}$  είναι 63 : 1.
- Ανιχνευτική διάταξη με ανιχνευτή γερμανίου ευρείας ενεργειακής περιοχής (Broad Energy Germanium, BEGe). Η διάταξη αυτή είναι και ο μοναδικός φορητός ανιχνευτής του εργαστηρίου για μετρήσεις *in situ*. Διαθέτει παράθυρο από ανθρακονήματα, το οποίο επιτρέπει την ανίχνευση φωτονίων χαμηλών ενεργειών. Η διακριτική του ικανότητα σε όρους *FWHM* είναι  $0.440\text{keV}$  για ενέργεια φωτονίων  $5.9\text{keV}$ ,  $0.658\text{keV}$  για ενέργεια φωτονίων  $122\text{keV}$  και  $1.780\text{keV}$  για ενέργεια φωτονίων  $1332.5\text{keV}$ .

#### 4.4.2 Ο ανιχνευτής XtRa

Στην παρούσα ΔΕ οι μετρήσεις των δειγμάτων ξηρής απόθεσης έγιναν στον ανιχνευτή XtRa του εργαστηρίου γι' αυτό κρίνεται σκόπιμο να δοθούν τα τεχνικά του χαρακτηριστικά καθώς και οι βαθμονομήσεις που χρησιμοποιήθηκαν.

Ο ανιχνευτής XtRa είναι ένας ομοαξονικός ανιχνευτής γερμανίου με παράθυρο από ανθρακονήματα. Συγκεκριμένα, πρόκειται για το μοντέλο GX10021 της εταιρείας Canberra Industries. Στο Σχήμα 4.7 παρουσιάζεται ένα σκαρίφημα του ανιχνευτή, όπου φαίνονται τα ηλεκτρόδια τύπου π και ν, καθώς και το παράθυρο του κρυστάτη από ανθρακονήματα πάχους  $0.5\text{mm}$ , το οποίο επιτρέπει την ανίχνευση φωτονίων χαμηλών ενεργειών. Ο ανιχνευτής έχει διάμετρο  $80\text{mm}$ , ύψος  $78\text{mm}$  και η σχετική απόδοσή του είναι 104.5% για φωτόνια ενέργειας  $1332.5\text{keV}$ . Παρουσιάζει πολύ καλή διακριτική ικανότητα, της τάξεως του  $1.03\text{keV}$  για φωτόνια ενέργειας  $122.06\text{keV}$  και  $2.04\text{keV}$  για φωτόνια ενέργειας  $1332.50\text{keV}$ , ενώ ο λόγος peak-to-Compton για φωτόνια ενέργειας  $1332.50\text{keV}$  είναι 82.2 : 1.

Οι υπόλοιπες συνιστώσες της μετρητικής διάταξης είναι:



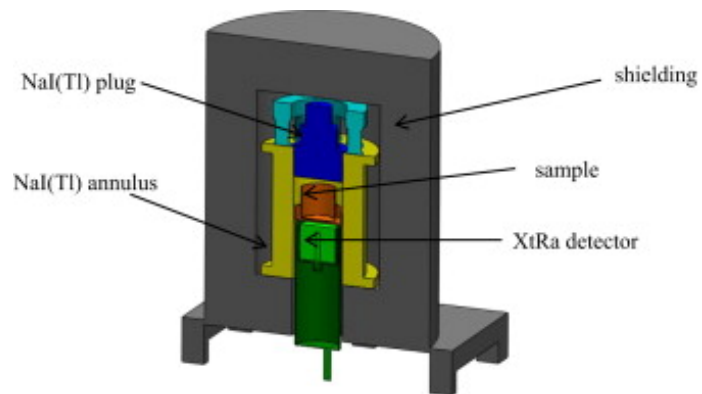
Σχήμα 4.7: Σχηματική αναπαράσταση του ανιχνευτή XtRa του ΕΠΤ-ΕΜΠ (Canberra Industries).

- Προενιχνυτής τύπου 2002CSL της Canberra.
- Ενισχυτής ύψους παλμών τύπου 2025 της Canberra.
- Διαχωριστής ύψους παλμών τύπου 1437 της Canberra.
- Αναλογοψηφιακός μετατροπέα τύπου 2071 της Canberra.
- Πολυκαναλικός αναλυτή AIM 556A της Canberra.
- Τροφοδοτικό υψηλής τάσης τύπου 3106D της Canberra.
- Δοχείο υγρού αζώτου όγκου 30L, στο οποίο είναι εμβαπτισμένος ο κρυστάτης τύπου 2000CSL της Canberra.
- Ελεγκτής στάθμης του αζώτου τύπου 1786 της Canberra.
- Θωράκιση τύπου front-open/split-top μοντέλο 767 της Canberra.
- Μονάδα NIM-BIN τύπου 2000 της Canberra.

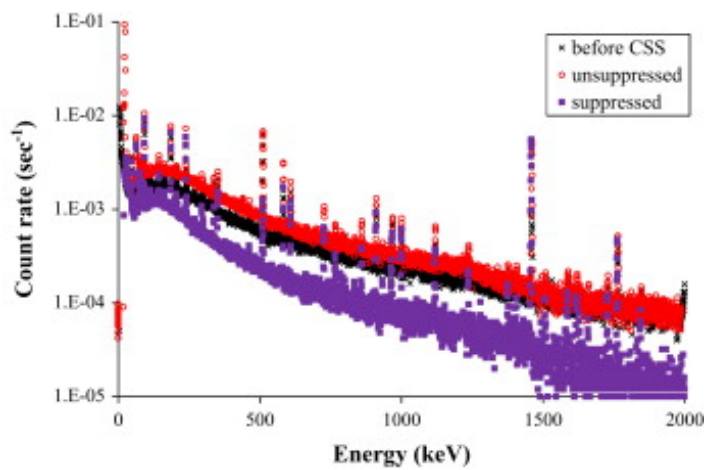
Με σκοπό τη βελτίωση της ανιχνευτικής ικανότητας του ανιχνευτή κυρίως στις χαμηλές ενέργειες έχει εγκατασταθεί σε αυτόν ένα σύστημα Compton Suppression (CSS) (Savva et al., 2014; Savva and Anagnostakis, 2016). Στα παρακάτω σχήματα παρουσιάζεται μία φωτογραφία του ανιχνευτή XtRa με το CSS (Σχήμα 4.8), μία σχηματική αναπαράσταση του συνολικού συστήματος (Σχήμα 4.9) και η επίδραση του CSS στο  $\gamma$ -φάσμα (Σχήμα 4.10).



Σχήμα 4.8: Φωτογραφία του ανιχνευτή XtRa του ΕΠΤ-ΕΜΠ με εγκατεστημένο το CSS.



Σχήμα 4.9: Τομή του ανιχνευτή XtRa του ΕΠΤ-ΕΜΠ με εγκατεστημένο το CSS (Savva et al., 2014).



Σχήμα 4.10: Επίδραση του CSS στο γ-φάσμα (Savva et al., 2014).

### 4.4.3 Ανάλυση του φάσματος και υπολογισμός ραδιενέργειας

Έως αυτό το σημείο έχει αναλυθεί ο τρόπος με τον οποίο λειτουργεί μία μετρητική διάταξη πυρηνικής ακτινοβολίας και έχει δοθεί έμφαση στον τρόπο με τον οποίο γίνεται η γ-φασματοσκοπία. Παρολί αυτά τελικό ζητούμενο μία τέτοιας ανάλυσης ενός δείγματος είναι ο υπολογισμός της ραδιενέργειάς του δείγματος ή της ειδικής ραδιενέργειας, η οποία είναι στην πραγματικότητα ραδιενέργεια του δείγματος ανηγμένη σε κάποια μονάδα (όγκος, μάζα κλπ). Το τελικό αποτέλεσμα της ανιχνευτικής διάταξης είναι το γ-φάσμα, δηλαδή τα καταγεγραμμένα γεγονότα σε κάθε κανάλι του πολυκαναλικού αναλυτή. Επίσης, έχει περιγραφεί ο τρόπος με τον οποίο κατασκευάζονται οι καμπύλες  $E = f(ch)$ ,  $FWHM = f(ch)$  και  $\epsilon = f(E)$ . Στόχος αυτής της Παραγραφού είναι να περιγράψει πως με χρήση αυτών των δεδομένων γίνονται οι υπολογισμοί της ραδιενέργειας και να περιγράψει αυτή τη διαδικασία, όπως εφαρμόστηκε στα πλαίσια της ΔΕ.

Με τον όρο ανάλυση ενός γ-φάσματος εννοείται η επεξεργασία των δεδομένων του πολυκαναλικού αναλυτή, με σκοπό τον ποσοτικό και ποιοτικό προσδιορισμό των ραδιενεργών ισοτόπων ενός δείγματος. Η ανάλυση του φάσματος γίνεται υπολογιστικά με κατάλληλο κώδικα, του οποίου ο σκοπός είναι ο εντοπισμός των φωτοκορυφών και της ενέργειας, στην οποία εντοπίζονται, η εκτίμηση της επιφάνειας της κάθε φωτοκορυφής και ο υπολογισμός της αβεβαιότητας της φωτοκορυφής. Στο ΕΠΤ-ΕΜΠ η ανάλυση του φάσματος γίνεται από τον κώδικα SPUNAL, ο οποίος έχει γραφεί εξ' ολοκλήρου στο ΕΠΤ-ΕΜΠ. Ο κώδικας αυτός έχει αξιολογηθεί και έχει συγκριθεί με άλλους εμπορικούς κώδικες, ώστε να διαπιστωθεί ότι παρέχει αξιόπιστα αποτελέσματα (Δ.Δ. Κ.Καρφόπουλου, 2012). Ο κώδικας SPUNAL διαθέτει το πρόγραμμα gamma, το οποίο είναι υπεύθυνο για την ανάλυση του φάσματος. Το πρόγραμμα ξεκινάει με τον εντοπισμό των απλών φωτοκορυφών του φάσματος, δηλαδή των φωτοκορυφών, οι οποίες είναι απολύτως διακριτές από παραπλήσιες και από το υπόστρωμα και υπολογίζει την επιφάνεια των φωτοκορυφών αυτών και την αβεβαιότητά τους. Στη συνέχεια, το πρόγραμμα συνεχίζει με τις πολλαπλές φωτοκορυφές. Όταν το πρόγραμμα τελειώνει με τον υπολογισμό των επιφανειών και των αβεβαιότητων όλων των φωτοκορυφών περνάει στον υπολογισμό των ενεργειών, στις οποίες εντοπίζεται κάθε φωτοκορυφή. Για να γίνει αυτός ο υπολογισμός είναι απαραίτητες οι καμπύλες ενεργειακής βαθμονόμησης, οι οποίες είναι αποθηκευμένες στον κώδικα. Ο κώδικας SPUNAL διαθέτει ενσωματωμένες βιβλιοθήκες ισοτόπων, ώστε αφού εντοπιστεί η ενέργεια της κάθε φωτοκορυφής να αντιστοιχίζεται με πιθανά ραδιενεργά ισότοπα. Τελικά, ο κώδικας επιστρέφει την τιμή της επιφάνειας κάθε φωτοκορυφής συνοδευόμενη από την αβεβαιότητα, την ενέργεια και το κανάλι στο οποίο αυτή εμφανίζεται και ένα πιθανό ραδιενεργό ισότοπο για τη

φωτοκορυφή αυτή. Γνωρίζοντας, λοιπόν, την καμπύλη της βαθμονόμησης για τη συγκεκριμένη γεωμετρία καθώς και το χρόνο της μέτρησης είναι δυνατόν να υπολογίσουμε τη ραδιενέργεια με την αντίστοιχη αβεβαιότητα μέσω της Σχέσης 4.3.

$$R = \frac{\text{counts}}{\epsilon \cdot \Delta t \cdot \text{yield}} \quad (4.3)$$

Για τους υπολογισμούς που έγιναν στη  $\Delta E$  για τα δείγματα ξηρής απόθεσης χρησιμοποιήθηκαν οι καμπύλες βαθμονόμησης του ανιχνευτή XtRa για τη γεωμετρία AlCap.

Τέλος, αφού έχει υπολογιστεί η ραδιενέργεια του κάθε ισότοπου, πρέπει αυτή η ραδιενέργεια να αναχθεί στη χρονική στιγμή που συλλέχθηκε το δείγμα, μέσω της Σχέσης 4.4. Γίνεται, δηλαδή, μία αναγωγή των διασπάσεων, οι οποίες συνέβησαν κατά τη διάρκεια της επεξεργασίας του δείγματος (μέχρι την τοποθέτησή του στον ανιχνευτή) και της μέτρησης. Σε αυτό το σημείο πρέπει να ειπωθεί ότι υπάρχουν κώδικες  $\gamma$ -φασματοσκοπικής ανάλυσης, οι οποίοι εκτελούν την αναγωγή αυτή. Στο ΕΠΤ-ΕΜΠ δε γίνεται αυτό και η διόρθωση των διασπάσεων γίνεται στο τέλος μέσω της Σχέσης 4.4, όπου  $R$  η ραδιενέργεια η οποία υπολογίστηκε από τη Σχέση 4.3,  $\lambda$  η σταθερά διάσπασης του υπό εξέταση ισότοπου και  $\Delta t$  το χρονικό διάστημα από τη συλλογή του δείγματος έως την εξαγωγή του από τη μετρητική διάταξη.

$$R = R_0 e^{-\lambda \Delta t} \quad (4.4)$$

## Κεφάλαιο 5

# Σχεδιασμός πειραματικής διαδικασίας για τη συλλογή και γ-φασματοσκοπική ανάλυση δειγμάτων ξηρής απόθεσης

### 5.1 Αρχικός σχεδιασμός της πειραματικής διαδικασίας

#### 5.1.1 Εισαγωγή

Όπως ειπώθηκε στην Παράγραφο 3.3.2, η ξηρή εναπόθεση είναι μία συνεχής διεργασία, με την οποία αποτίθεται ραδιενέργεια από την ατμόσφαιρα στην επιφάνεια της Γης. Στα πλαίσια της ΔΕ, έγινε συλλογή δειγμάτων ξηρής απόθεσης και επεξεργασία τους, με σκοπό τον υπολογισμό της συγκέντρωσης των φυσικών και τεχνητών ισοτόπων, τα οποία περιέχονται στα δείγματα αυτά. Για να συλλεχθούν αυτά τα δείγματα έπρεπε προηγουμένως να σχεδιαστεί μία πειραματική διαδικασία. Από τη βιβλιογραφική ανασκόπηση, η οποία παρουσιάστηκε στην Παράγραφο 3.4, φαίνεται πως υπάρχει αρκετή εμπειρία διεθνώς στη συλλογή δειγμάτων μεικτής απόθεσης, όμως η βιβλιογραφία υστερεί στη συλλογή δειγμάτων αποκλειστικά ξηρής απόθε-



σης αν και έχουν αναπτυχθεί κάποιες μέθοδοι συλλογής. Σκοπός, του κεφαλαίου αυτού είναι να γίνει μία αξιολόγηση των μεθόδων αυτών, να συγκριθούν με κάποιες μεθόδους, οι οποίες ήδη χρησιμοποιούνται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ και τελικά να επιλεγεί ή να διαμορφωθεί η κατάλληλη μέθοδος για τη συλλογή δειγμάτων ξηρής απόθεσης.

### 5.1.2 Συλλογή δειγμάτων υγρής ή μεικτής απόθεσης στο ΕΠΤ-ΕΜΠ

Στο ΕΠΤ-ΕΜΠ δεν έχει ξαναγίνει στο παρελθόν δειγματοληψία αποκλειστικά ξηρής απόθεσης, όμως υπάρχει εμπειρία σε δειγματοληψίες είτε υγρής, είτε μεικτής (επαλληλία ξηρής και υγρής) απόθεσης. Συγκεκριμένα, το ΕΠΤ-ΕΜΠ διαθέτει ορθογώνιους πλαστικούς συλλέκτες, οι οποίοι τοποθετούνται στο δώμα του κτιρίου και συλλέγεται το νερό από ένα περιστατικό βροχόπτωσης ή για μία χρονική περίοδο. Στην περίπτωση της μίας βροχόπτωσης μπορεί να θεωρηθεί ότι η διαδικασία της ξηρής απόθεσης είναι αμελητέα, άρα πρόκειται για δειγματοληψία υγρής απόθεσης. Στην περίπτωση κατά την οποία οι συλλέκτες τοποθετούνται στο δώμα για ορισμένο χρονικό διάστημα, κατά το οποίο υπάρχουν περιστατικά βροχόπτωσης (ή άλλης κατακρήμνισης), τότε το δείγμα θεωρείται ότι είναι μεικτής απόθεσης. Ο σκοπός της συλλογής νερού από κατακρήμνισεις στο ΕΠΤ-ΕΜΠ είναι το νερό αυτό να αναλυθεί, ώστε να υπολογιστεί η ραδιενέργειά του. Για την αύξηση της απόδοσης της ανίχνευσης και ταυτόχρονα τη μείωση της αβεβαιότητας έχουν δοκιμαστεί στο ΕΠΤ-ΕΜΠ αρκετές μέθοδοι επεξεργασίας του δείγματος. Η αναφορά στις μεθόδους αυτές, αλλά και γενικότερα στον τρόπο ανάλυσης των δειγμάτων υγρής ή μεικτής απόθεσης, γίνεται επειδή σε αυτές βασίστηκε ο σχεδιασμός της δειγματοληψίας ξηρής απόθεσης. Σε αυτό το σημείο, πρέπει να έχει γίνει ήδη κατανοητό πως η αναφορά σε ραδιενέργεια δειγμάτων υγρής ή μεικτής απόθεσης οφείλεται στα ραδιενεργά ισότοπα, τα οποία υπάρχουν στο αερόλυμα της ατμόσφαιρας.

Ο απλούστερος και πιο άμεσος τρόπος ανάλυσης δειγμάτων υγρής απόθεσης είναι η απευθείας μέτρηση του υγρού δείγματος. Κατά τη μέθοδο αυτή όλο ή ένα κλάσμα (ανάλογα την ποσότητα) του συλλεγμένου νερού τοποθετείται σε κατάλληλο δοχείο και αναλύεται στον ανιχνευτή. Η μέθοδος αυτή προσφέρει αμεσότητα και ταχύτητα, αφού δεν απαιτείται καμία επεξεργασία, όμως η αβεβαιότητα των μετρήσεων είναι μεγάλη. Το γεγονός αυτό οφείλεται στην αβεβαιότητα της γεωμετρίας του δείγματος. Το νερό μπορεί να εισέρχεται σε κατάλληλο δοχείο, όμως τα σωματίδια του αεροζόλ, στα οποία βρίσκονται τα ραδιενεργά ισότοπα ενδεχομένως δημιουργούν ίζημα, εισάγοντας ανομοιομορφία στο δείγμα. Μία άλλη μέθοδος επεξεργασίας

είναι το φιλτράρισμα του νερού, με σκοπό τη συγκράτηση των σωματιδίων από το φίλτρο. Στη μέθοδο αυτή αναλύεται το φίλτρο νερού και το φιλτραρισμένο νερό, το οποίο εξάτμιζεται σε θερμοκρασία περί των 80°C, ώστε ο όγκος του να μειωθεί, ώστε να χωράει σε δοχείο τυποποιημένης γεωμετρίας. Ύστερα, από δοκιμές της συγκεκριμένης μεθόδου στο ΕΠΤ-ΕΜΠ προέκυψε το συμπέρασμα, ότι παρ' όλο το μέτριο, αλλά αποδεκτό επίπεδο αβεβαιότητας της μέτρησης, η συγκεκριμένη μέθοδος υποεκτιμά τα επίπεδα ραδιενέργειας των δειγμάτων.

Στη βιβλιογραφία συναντάται πολύ συχνά η μέθοδος της πλήρους εξάτμισης του δείγματος, με σκοπό να συλλεχθεί το ίζημα των σωματιδίων και να σχηματισθεί με αυτό μία πηγή επίπεδης γεωμετρίας. Βασική προϋπόθεση της μεθόδου αυτής είναι η εξάτμιση να γίνει σε χαμηλή θερμοκρασία, ώστε να αποφευχθεί η επαναιώρηση των σωματιδίων. Το ΕΠΤ-ΕΜΠ, διαθέτει λουτρό ρυθμιζόμενης θερμοκρασίας, το οποίο χρησιμοποιείται για την εφαρμογή αυτής της διαδικασίας. Με τη μέθοδο αυτή υπήρξε βελτίωση στην απόδοση και στα επίπεδα ανίχνευσης, όχι όμως ιδιαίτερη πρόοδος στις αβεβαιότητες των μετρήσεων. Μάλιστα, στη βιβλιογραφία αναφέρεται πως με τη μέθοδο της εξάτμισης μπορεί να χαθεί μέχρι και το 65% της ραδιενέργειας του δείγματος (Jungck et al., 2009).

Συνήθης τακτική για τη συλλογή στοιχείων από υγρά δείγματα είναι η χρήση ρητίνων, οι οποίες δεσμεύουν τα ιόντα των χημικών ενώσεων (Krämer et al., 1996). Ανάλογα τον τύπο των ιόντων, τα οποία δεσμεύονται από τις ρητίνες (θετικά ή αρνητικά), αυτές διακρίνονται σε ρητίνες ανιόντων και ρητίνες κατιόντων. Οι ρητίνες έχουν χρησιμοποιηθεί και στο παρελθόν για ραδιοβιολογικές αναλύσεις, δηλαδή για συλλογή ιόντων από υγρό δείγμα, με σκοπό τη ραδιοβιολογική τους μελέτη (Grömping et al., 1997; Komura et al., 2007; Akata et al., 2008; Jungck et al., 2009). Μάλιστα, έχουν βρει και ευρεία εφαρμογή στην απορύπναση των πυρηνικών αποβλήτων από πυρηνικούς αντιδραστήρες (Magnusson et al., 2008; Choi et al., 2020).

Με αφορμή προηγούμενες έρευνες, στις οποίες έχουν χρησιμοποιηθεί ρητίνες για ανάλυση της ραδιενέργειας περιβάλλοντος, ξεκίνησε στο ΕΠΤ-ΕΜΠ η χρήση ρητίνης κατιόντων για την επεξεργασία δειγμάτων υγρής ή μεικτής απόθεσης. Η μέθοδος του ΕΠΤ-ΕΜΠ προσομοιάζει πεισσότερο την μέθοδο των Komura et al. (2007), όπου η ρητίνη αναμειγνύεται και αναδεύεται στο δείγμα. Στις υπόλοιπες μελέτες το δείγμα διαπερνάει στήλες ρητίνης. Η μέθοδος με τη ρητίνη αποδείχθηκε πως έχει τη μεγαλύτερη απόδοση και τη μικρότερη αβεβαιότητα στα τελικά αποτελέσματα σε σχέση με τις προηγούμενες μεθόδους, οι οποίες δοκιμάστηκαν και χρησιμοποιήθηκαν στο ΕΠΤ-ΕΜΠ.

### 5.1.3 Αρχικός σχεδιασμός της δειγματοληψίας ξηρής Απόθεσης

Παρόλη την εμπειρία του ΕΠΤ-ΕΜΠ σε αναλύσεις περιβαλλοντικών δειγμάτων και ειδικότερα σε αναλύσεις δειγμάτων υγρής και μεικτής απόθεσης, δδεν είχε γίνει απόπειρα στο παρελθόν για δειγματοληψία αποκλειστικά ξηρής απόθεσης. Έπρεπε, λοιπόν, με βασικό άξονα την εμπειρία του ΕΠΤ-ΕΜΠ και τη βιβλιογραφική ανασκόπηση, να καταστρωθεί μία αποδοτική και επαναλήψιμη διαδικασία για τη δειγματοληψία ξηρής απόθεσης.

Στην Παράγραφο 3.4, έγινε μία σύγκριση μεταξύ των πειραματικών διαδικασιών, οι οποίες υπάρχουν στη βιβλιογραφία και αφορούν την ανάλυση δειγμάτων ξηρής απόθεσης. Από τη σύγκριση αυτή είναι φανερό ότι παρά τις όποιες διαφορές των μεθόδων, υπάρχουν ορισμένα κοινά στοιχεία μεταξύ τους, τα οποία υιοθετήθηκαν και στην παρούσα μέθοδο δειγματοληψίας. Πιο συγκεκριμένα, για να γίνει η δειγματοληψία απαιτείται μία επίπεδη επιφάνεια, η οποία πρέπει να αφευθεί εκτεθειμένη στην ατμόσφαιρα για κάποιο συγκεκριμένο χρονικό διάστημα. Το ΕΠΤ-ΕΜΠ διαθέτει επίπεδους ορθογωνικούς συλλέκτες συνολικής επιφάνειας  $0.55m^2$ , ο οποίοι χρησιμοποιούνται για τη συλλογή δειγμάτων υγρής και μεικτής απόθεσης. Αποφασίστηκε, λοιπόν, η δειγματοληψία της ξηρής απόθεσης να γίνει με τη χρήση αυτών των συλλεκτών στην οροφή του κτιρίου.

Σε δεύτερη φάση έπρεπε να αποφασιστεί, ο τρόπος με τον οποίο θα συλλεχθεί το δείγμα από την επιφάνεια των συλλεκτών. Σε αυτό το σημείο πρέπει να τονιστεί ότι στην περίπτωση της ξηρής απόθεσης το δείγμα είναι απλά σκόνη πάνω στην επιφάνεια των συλλεκτών χωρίς υγρή συνιστώσα. Με τη φράση, λοιπόν, "συλλογή του δείγματος" εννοείται απομάκρυνση της σκόνης από την επιφάνεια των συλλεκτών όσο γίνεται πιο αποδοτικά. Το πρώτο στάδιο συλλογής του δείγματος είναι κοινό μεταξύ των προηγούμενων μελετών και πρόκειται για την σχολαστική πλύση των συλλεκτών με ελαφρύ διάλυμα οξέος και απιονισμένο νερό. Η χρήση του οξέως γίνεται, όπως έχει προαναφερθεί, για να πλυθεί αποδοτικά η επιφάνεια των συλλεκτών και να αποφευχθεί η προσρόφηση των σωματιδίων στα τοιχώματα οποιουδήποτε δοχείου, στο οποίο μεταφέρεται το δείγμα.

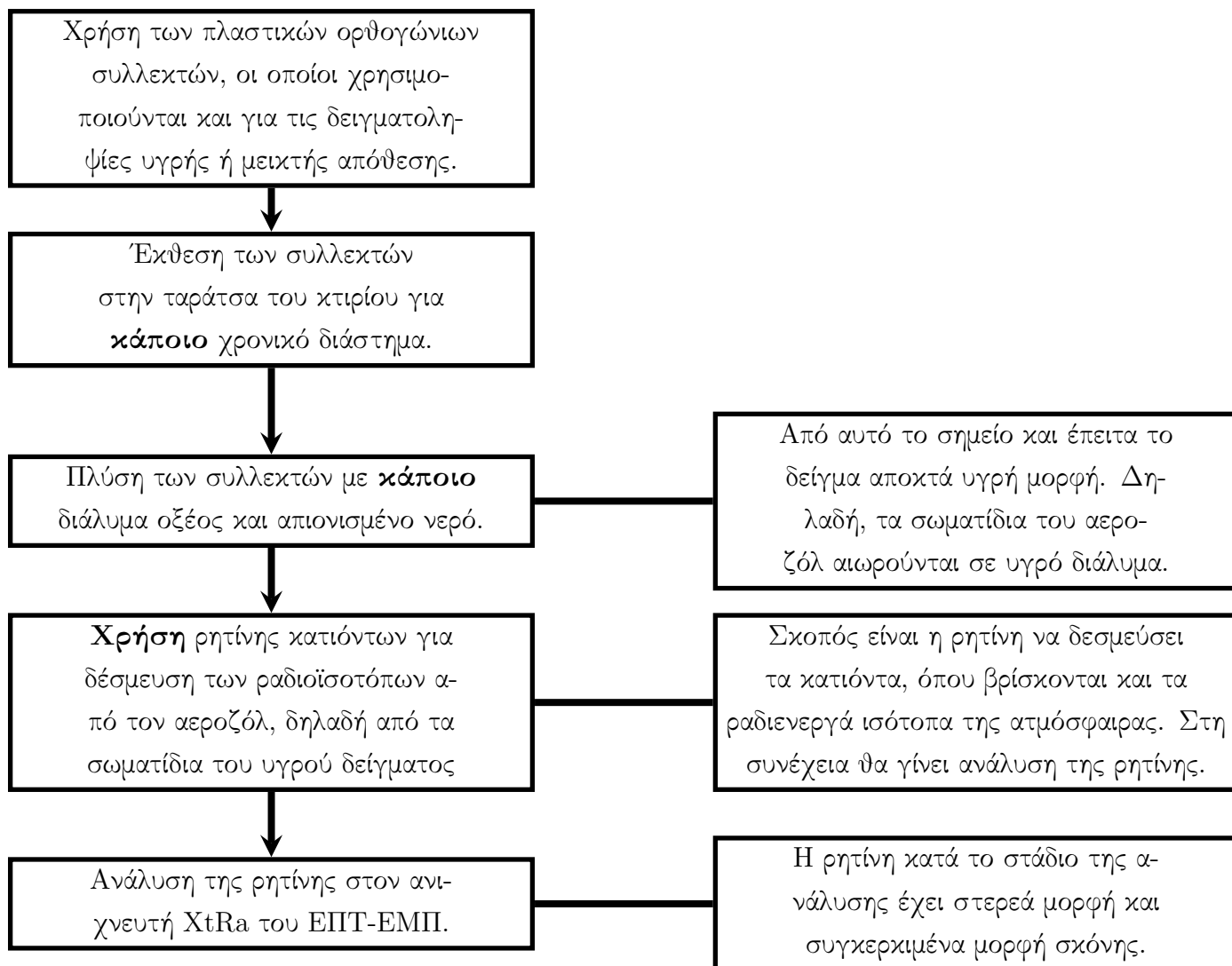
Από τη στιγμή της πλύσης των συλλεκτών το ξηρό, αρχικά, δείγμα έχει αποκτήσει υγρή μορφή. Τα σωματίδια του αερολύματος, δηλαδή η σκόνη, η οποία ξεπλύθηκε από τους συλλέκτες, αιωρείται πλέον στο όξινο διάλυμα. Με λίγα λόγια, σε αυτό το σημείο το δείγμα μοιάζει πολύ με δείγμα μεικτής ή υγρής απόθεσης. Όπως αναλύθηκε και στην Παράγραφο 5.1.2, το ΕΠΤ-ΕΜΠ έχει μεγάλη εμπειρία στη συλλογή και την ανάλυση τέτοιου είδους δειγμάτων. Συγκεκριμένα,

έχει αποδειχθεί πως η αποδοτικότερη μέθοδος για την απομόνωση του ατμοσφαιρικού αερολύματος, το οποίο περιέχεται σε αυτά τα δείγματα είναι η μέθοδος, η οποία βασίζεται στη χρήση ρητίνης κατιόντων. Για το λόγο αυτό επιλέχθηκε να χρησιμοποιηθεί αυτή η μέθοδος και για τη συλλογή των δειγμάτων ξηρής απόθεσης. Προφανώς, η μέθοδος δε μπορεί να χρησιμοποιηθεί αυτούσια, αφού πρόκειται για διαφορετική πειραματική διαδικασία, όμως η βασική αρχή είναι η ίδια. Συνεπώς, είναι εύκολο να γίνει μία μετατροπή-προσαρμογή της μεθόδου αυτής, ώστε να χρησιμοποιείται για τη δειγματοληψία ξηρής απόθεσης.

Στο Σχήμα 5.1 γίνεται μία σύνοψη του αρχικού σχεδιασμού της πειραματικής διαδικασίας, όπως αυτός παρουσιάστηκε παραπάνω. Οι αρχικές αυτές αποφάσεις μπορεί να φαίνονται απλές, όμως, στην πραγματικότητα ήταν αποτέλεσμα κριτικής και πολλών συζητήσεων πάνω στις τεχνικές των προηγούμενων ερευνών. Πιο συγκεκριμένα, υπήρξαν αρκετές συζητήσεις για την επιφάνεια συλλογής, η οποία έπρεπε να χρησιμοποιηθεί. Σε πολλές προηγούμενες έρευνες έχουν χρησιμοποιηθεί μεταλλικές πλάκες επιφάνειας  $1m^2$  ως επιφάνειες συλλογής ξηρής απόθεσης. Η μεγάλη αυτή επιφάνεια συλλογής συνεπάγεται και μεγαλύτερη συγκέντρωση σωματιδίων πάνω σε αυτή, όμως ο χειρισμός και η συλλογή του δείγματος από αυτή είναι μία αρκετά δύσκολη "δοκιμασία", εξ' αιτίας του μεγάλου μεγέθους της.

Για να υπάρξει ένα κριτήριο επιλογής της απαιτούμενης επιφάνειας αποφασίστηκε να υπολογιστούν τα κατώτερα όρια ανίχνευσης για ορισμένα ραδιενεργά ισότοπα, τα οποία θεωρήθηκε πιο πιθανό να ανιχνευτούν. Γενικά, σύμφωνα με τη βιβλιογραφική ανασκόπηση, τα ραδιενεργά ισότοπα του ατμοσφαιρικού αερολύματος, τα οποία ανιχνεύονται σε αντίστοιχες έρευνες είναι τα:  $^7Be$ ,  $^{210}Pb$ ,  $^{40}K$ ,  $^{137}Cs$ . Όπως έχει προαναφερθεί, το ισότοπο το οποίο αναφέρεται συχνότερα στις αντίστοιχες μελέτες είναι το  $^7Be$ . Ένα άλλο ισότοπο, το οποίο αναφέρεται είναι ο  $^{210}Pb$ , ενώ κρίθηκε από την εμπειρία του ΕΠΤ-ΕΜΠ, ότι εξ' αιτίας της δράσης του φαινομένου της επαναίωσης έχει μεγάλη πιθανότητα εμφάνισης στο δείγμα ξηρής απόθεσης. Τέλος, υπάρχουν δύο ακόμα ισότοπα τα οποία θεωρήθηκαν ανιχνεύσιμα, αν και με μικρότερη πιθανότητα, ιδίως στην περίπτωση μεταφοράς σκόνης από τη Σαχάρα ( $^{137}Cs$ ) ή σε περίπτωση πυρκαγιάς ( $^{40}K$ ). Λαμβάνοντας υπόψη τα παραπάνω υπολογίστηκε το κατώτερο επίπεδο ανίχνευσης για το  $^{210}Pb$  που είναι και ο δυσκολότερος να ανιχνευθεί στην ξηρή απόθεση. Το αποτέλεσμα του υπολογισμού ήταν  $0.05Bq/kg$ .

Για να είναι λοιπόν ανιχνευσιμη η ποσότητα του  $^{210}Pb$  σε ένα δείγμα μετρήσεις θα πρέπει να έχει ρυθμιστεί κατάλληλα η επιφάνεια δειγματοληψίας και η διάρκεια δειγματοληψίας. Συνεπώς, τον υπολογισμό της απαραίτητης επιφάνειας συλλογής κρίθηκε σκόπιμη η δοκιμαστική χρήση των συλλεκτών του ΕΠΤ-ΕΜΠ, τουλάχιστον δοκιμαστικά για την πρώτη δειγματοληψία.



Σχήμα 5.1: Αρχικός σχεδιασμός της συλλογής και ανάλυσης δειγμάτων ξηρής απόθεσης.

## 5.2 Πρώτη δειγματοληψία ξηρής απόθεσης

Στο Σχήμα 5.1 όπου περιγράφεται ο αρχικός σχεδιασμός της πειραματικής διαδικασίας δεν έχουν δοθεί απαντήσεις σε πρακτικά ερωτήματα της διαδικασίας, όπως το κατά πόσον οι συλλέκτες είναι κατάλληλοι για τη δειγματοληψία, το χρονικό διάστημα που θα διαρκέσει η δειγματοληψία, το μέγεθος της επιφάνειας δειγματοληψίας και η ακριβής διαδικασία συλλογής του δείγματος. Η πρώτη δειγματοληψία ήταν δοκιμαστική, με σκοπό να δοθούν απαντήσεις στα ερωτήματα αυτά, αλλά και να εξαχθεί ένα αρχικό συμπέρασμα για τις συγκεντρώσεις, οι οποίες αναμένονται από τα δείγματα ξηρής απόθεσης με τη χρήση των συγκεκριμένων συλλεκτών και για ορισμένο χρονικό διάστημα συλλογής.

### 5.2.1 Συλλογή και επεξεργασία του δείγματος

Σύμφωνα με τη βιβλιογραφική ανασκόπηση η οποία προηγήθηκε αλλά και από την εμπειρία του ΕΠΤ-ΕΜΠ στον τομέα του σχεδιασμού πειραματικών μεθόδων για την ανάλυση περιβαλλοντικών δειγμάτων, για το σχεδιασμό της πειραματικής διαδικασίας ήταν απαραίτητο σε πρώτο στάδιο να επιλεγθούν οι παρακάτω παράγοντες:

- Η διάρκεια συλλογής του δείγματος, δηλαδή ο χρόνος έκθεσης των συλλεκτών σε ανοικτό χώρο.
- Η επιφάνεια συλλογής.
- Ο τρόπος, με τον οποίο θα γινόταν η πλύση της επιφάνειας των συλλεκτών.
- Επιλογή και παρασκευή του διαλύματος οξέος και της αντίστοιχης μοριακότητας, με το οποίο θα γίνονταν οι πλύσεις.
- Επιλογή της ποσότητας ρητίνης, η οποία θα αναδευόταν στο μείγμα.
- Τρόπος ξήρανσης της ρητίνης.

Η πρώτη απόφαση, η οποία έπρεπε να ληφθεί, ήταν η επιλογή ενός κατάλληλου χρονικού διαστήματος έκθεσης των συλλεκτών στην ατμόσφαιρα. Στη βιβλιογραφική ανασκόπηση φαίνεται ότι το μικρότερο διάστημα δειγματοληψίας ήταν 5 ημέρες (Conaway et al., 2013), ενώ το συνηθέστερο διάστημα ήταν 7 ημέρες. Επιπλέον, οι περισσότερες επιφάνειες συλλογής, οι

οποίες έχουν χρησιμοποιηθεί στη βιβλιογραφία, είναι μεγαλύτερες από την επιφάνεια της υπό ανάπτυξη πειραματικής διαδικασίας. Με αξιολόγηση των παραπάνω δεδομένων αποφασίστηκε το χρονικό διάστημα της πρώτης δειγματοληψίας να είναι 14 μέρες, με σκοπό να αποθεθεί αρκετή ποσότητα σωματιδίων πάνω στην επιφάνεια, ώστε η ανίχνευση ραδιενεργών ισοτόπων να είναι όσο το δυνατόν πιθανότερη. Η εξασφάλιση της ανίχνευσης ραδιενεργών ισοτόπων στο δείγμα ήταν αρκετά σημαντική σε αυτό το στάδιο του σχεδιασμού, επειδή σε περίπτωση μη-ανίχνευσης σωματιδίων, η διαδικασία θα έπρεπε να επαναληφθεί είτε για μεγαλύτερο χρονικό διάστημα είτε σε μεγαλύτερη επιφάνεια συλλογής.

Κατά την πρώτη δοκιμαστική δειγματοληψία τοποθετήθηκαν οι συλλέκτες στο δώμα του ΕΠΤ-ΕΜΠ για συνολικό χρονικό διάστημα 14 ημερών, κατά τη διάρκεια των οποίων δεν υπήρχαν κατακρημνίσεις. Καθ' όλη τη διάρκεια των ημερών αυτών υπήρχε εποπτεία στις προγνώσεις καιρού και σε περίπτωση πιθανότητας βροχόπτωσης οι συλλέκτες απομακρύνονταν από την οροφή και τοποθετούνταν σε κλειστό χώρο. Όταν συμπληρώθηκαν 14 ημέρες δειγματοληψίας, οι συλλέκτες μεταφέρθηκαν από το δώμα στο εργαστήριο, με σκοπό τη συλλογή του δείγματος. Πριν από τη συλλογή ήταν απαραίτητη η απομάκρυνση των μεγάλων σωματιδίων, τα οποία είχαν αποθεθεί πάνω στους συλλέκτες από τον αέρα. Τα σωματίδια αυτά, ήταν κυρίως μικρές πέτρες και φυτική ύλη τα οποία δεν μπορούν να θεωρηθούν αερόλυμα. Η ποσότητα των σωματιδίων, όπως φαίνεται και στο Σχήμα 5.2 ήταν μικρή, οπότε, δεδομένης και της προέλευσής τους, η ανάλυσή τους κρίθηκε άσκοπη.

Το πρώτο βήμα για τη συλλογή του δείγματος ήταν οι πλύσεις με διάλυμα οξέως. Γι' αυτό το λόγο, παρασκευάστηκαν 500ml  $\text{HNO}_3$ , μοριακότητας 0.15M. Η επιλογή του  $\text{HNO}_3$  έγινε επειδή η διαδικασία με τη ρητίνη έχει τυποποιηθεί στο ΕΠΤ-ΕΜΠ με χρήση  $\text{HNO}_3$ . Στη βιβλιογραφία υπήρχαν αναφορές, στις οποίες γίνονταν πλύσεις των συλλεκτών με διαλύματα  $\text{HNO}_3$  διαφόρων συγκεντρώσεων και μοριακότητων. Από αυτά επιλέχθηκε το διάλυμα με τη χαμηλότερη μοριακότητα (0.15 M), επειδή κρίθηκε με βάση την προηγούμενη εμπειρία πως δε θα υπήρχε διαφορά στην απομάκρυνση σωματιδίων με τη χρήση ισχυρότερου οξέος. Η παρασκευή του διαλύματος οξέος έγινε με προσθήκη 5.7g διαλύματος  $\text{HNO}_3$  περιεκτικότητας 65% σε 500ml απιονισμένο νερό.

Με χρήση πιπέτας έγινε καλό πλύσιμο και των τριών συλλεκτών. Η ποσότητα οξέος, η οποία χρησιμοποιήθηκε για κάθε συλλέκτη φαίνεται στο Σχήμα 5.3α, όπου διακρίνονται και τα στερεά σωματίδια. Για το πλύσιμο χρησιμοποιήθηκαν συνολικά περίπου 400ml από το οξύ, το οποίο παρασκευάστηκε. Τα 100ml, τα οποία παρέμειναν, αραιώθηκαν σε 400ml απιονισμένο νερό και χρησιμοποιήθηκαν για περαιτέρω πλύση των τριών συλλεκτών. Τέλος, οι συλλέκτες πλύθηκαν και με απιονισμένο νερό. Από αυτές τις τρεις πλύσεις (διάλυμα οξέος, αραιωμένο διάλυμα οξέος



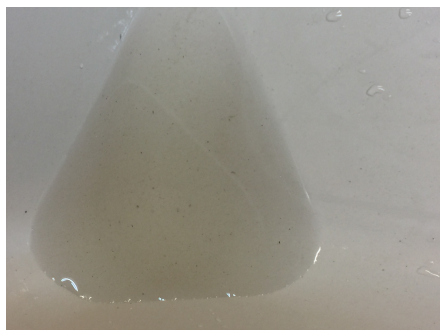
Σχήμα 5.2: Τα μεγαλύτερα σωματίδια, τα οποία κατέληξαν στους συλλέκτες από τον αέρα. Τα σωματίδια αυτά συλλέχθηκαν με τσιμπηδάκι πριν από την πλύση των συλλεκτών.

και απιονισμένο νερό) συλλέχθηκε υγρό δείγμα συνολικού όγκου περίπου 3l, το οποίο φαίνεται στο Σχήμα 5.3β. Το pH του δείγματος προέκυψε περίπου 1.5, το οποίο θεωρήθηκε χαμηλό. Συνεπώς κρίθηκε σκόπιμο να αυξηθεί κυρίως για να μην προκαλέσει βλάβη στη ρητίνη. Για την αύξηση του pH χρησιμοποιήθηκε 7.5N NH<sub>3</sub> ώστε το pH να γίνει περίπου 4.

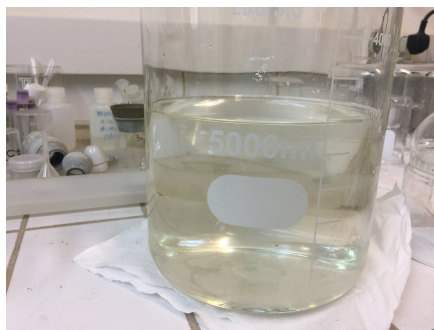
Στη συνέχεια διαλύθηκαν 10.8g ρητίνης κατιόντων Dowex 50WX8 hydrogen form σε 150ml απιονισμένο νερό. Για τη διάλυση της ρητίνης στο νερό χρειάστηκε ανάδευση διάρκειας 15 λεπτών. Το διάλυμα της ρητίνης αναδεύτηκε με το υγρό δείγμα για δύο ώρες με μαγνητικό αναδευτήρα, χωρίς θέρμανση. Μετά το τέλος της ανάδευσης το δείγμα αφαιρέθηκε για περίπου 8 ώρες, ώστε να σχηματιστεί ίζημα. Ακολούθησε το φιλτράρισμα του δείγματος μέσα από φίλτρα Whatman 42 90mm DIA. Η αρχική εκτίμηση, η οποία βασίστηκε στην εμπειρία πάνω στην ανάλυση δειγμάτων υγρής εναπόθεσης, ήταν ότι το φιλτράρισμα θα διαρκέσει 3.5 με 5 ώρες. Εξ' αιτίας, όμως, των πολλών αιωρούμενων σωματιδίων, τα οποία υπήρχαν στο δείγμα, το φιλτράρισμα ολοκληρώθηκε σε δύο ημέρες. Κατά το τέλος του φιλτραρίσματος, συλλέχθηκε σε ένα πλαστικό δίσκο το ίζημα της ρητίνης, το οποίο είχε δημιουργηθεί. Το ίζημα αφέθηκε προστατευμένο για ξήρανση σε θερμοκρασία περιβάλλοντος, μια διαδικασία που διήρκεσε τέσσερις ημέρες. Η διαδικασία έως αυτό το σημείο φαίνεται στο Σχήμα 5.4.

Το τελευταίο στάδιο της προετοιμασίας του δείγματος ήταν η μεταφορά του στη γεωμετρία





(α') Πλύση του συλλέκτη με το διάλυμα οξέος, που παρασκευάστηκε.

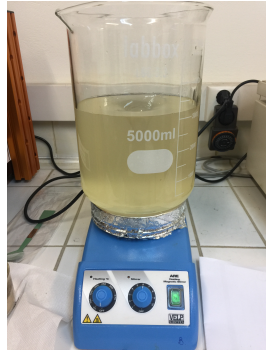


(β') Συνολικό δείγμα οξέος και απιονισμένου νερού, με τα οποία πλύθηκαν οι συλλέκτες

Σχήμα 5.3: Πλύση των συλλεκτών με διάλυμα νιτρικού οξέος και απιονισμένο νερό.

ανίχνευσης. Η τελική μορφή του ιζήματος ρητίνης (μετά την ξήρανση) φαίνεται στα Σχήματα 5.6α και 5.6β. Η μορφή αυτή δεν παρουσιάζει καμία διαφορά, μακροσκοπικά, από το αντίστοιχο στάδιο της διαδικασίας προετοιμασίας δειγμάτων υγρής ή μεικτής απόθεσης, όπως γίνεται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ. Συνεπώς, η επιλογή της γεωμετρίας, με την οποία θα τοποθετηθεί στο δείγμα στον ανιχνευτή, επιλέχθηκε να είναι ακριβώς η ίδια με αυτή των δειγμάτων υγρής ή μεικτής απόθεσης, διότι η γεωμετρία αυτή έχει προκύψει από μια διαδικασία πειραματικής βελτιστοποίησης. Για την προετοιμασία του δείγματος της γεωμετρίας που επιλέχθηκε, το ίζημα ρητίνης, αφού ανακατεύτηκε με σκοπό να εξασφαλισθεί η ομοιομορφία του, μεταφέρθηκε σε μεταλλικό δισκίο, με τη βοήθεια του οποίου ζυγίστηκε σε ζυγό ακριβείας και το καθαρό βάρος του δείγματος (7.6545g). Το μεταλλικό δισκίο καλύφθηκε με απλή μεμβράνη του εμπορίου, ώστε το δείγμα να διατηρηθεί σε αυτή τη γεωμετρία και να μην υπάρξουν διαρροές, κατά τη διάρκεια τη ανίχνευσης. Η προετοιμασία της γεωμετρίας φαίνεται στο Σχήμα 5.6. Τέλος, το συσκευασμένο δείγμα τοποθετήθηκε για ανίχνευση στον ανιχνευτή XtRa του ΕΠΤ-ΕΜΠ για επαρκές χρονικό διάστημα, ώστε να επιτευχθεί καλή στατιστική.

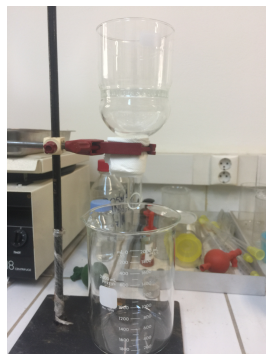
Πέραν του μεταλλικού δισκίου με το ίζημα ρητίνης, έπρεπε να ανιχνευθούν το φίλτρο, μέσω του οποίου φιλτραΟι δύο αυτές αναλύσεις γίνονται για να ελεγχθεί η αποτελεσματικότητα της χρήσης της ρητίνης. Αν σε μία από τις δύο αυτές αναλύσεις ανιχνευτεί κάποιο ραδιενεργό ισότοπο, τότε συνεπάγεται πως η ρητίνη δεν κατάφερε να δεσμεύσει όλα τα ραδιενεργά σωματίδια του δείγματος. Το φίλτρο τοποθετήθηκε σε πλαστική θήκη και αναλύθηκε στον ανιχνευτή XtRa, ενώ το φιλτραρισμένο νερό τοποθετήθηκε σε δοχείο Marinelli και αναλύθηκε στον ανιχνευτή HPGe.



(α') Ανάδευση της ρητίνης στο δείγμα.



(β') Το ίζημα ρητίνης.



(γ') Η διαδικασία του φιλτραρίσματος.

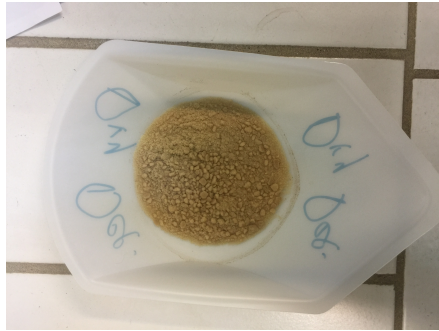


(δ') Το ίζημα ρητίνης, το οποίο συλλέχθηκε μετά το πέρας του φιλτραρίσματος.

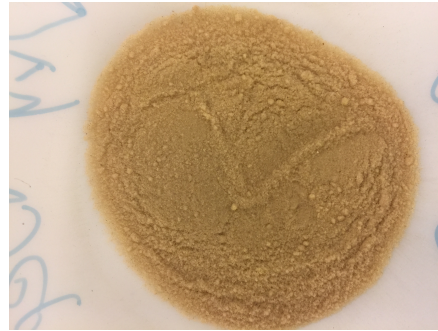
Σχήμα 5.4: Διαδικασία ανάδευσης της ρητίνης, φιλτραρίσματος και συλλογής του ιζήματος ρητίνης.



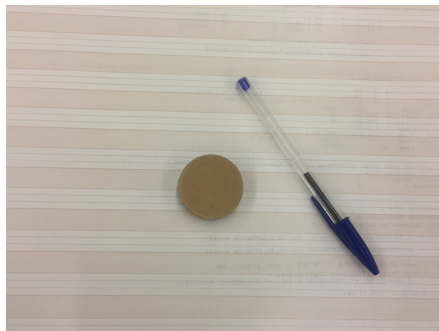
Σχήμα 5.5: Το φίλτρο, το οποίο χρησιμοποιήθηκε για το φιλτράρισμα του δείγματος. Συσκευάστηκε σε πλαστική μεμβράνη.



(α) Το ίζημα ρητίνης. Σε αυτή τη φωτογραφία φαίνονται και τα στερεά σωματίδια, τα οποία έχουν κολλήσει στο πλαστικό πιάτο



(β) Το ίζημα ρητίνης, πριν μεταφερθεί στο μεταλλικό δισκίο.



(γ) Η Γεωμετρία του δείγματος πριν την προστασία του με διαφανή μεμβράνη.



(δ) Η τελική γεωμετρία του δείγματος.

Σχήμα 5.6: Διαδικασία συλλογής και συσκευασίας του ιζήματος ρητίνης.

## 5.2.2 Αποτελέσματα και παρατηρήσεις

Από την ανάλυση του δείγματος προέκυψαν ενθαρρυντικά αποτελέσματα, αφού στο δείγμα της ρητίνης ανιχνεύτηκαν τα ισότοπα  $^7\text{Be}$  και  $^{210}\text{Pb}$  με ικανοποιητικά αβεβαιότητα. Επιπλέον, στο φίλτρο και στο φιλτραρισμένο νερό δεν ανιχνεύτηκε κανένα από τα παραπάνω ισότοπα, γεγονός το οποίο σημαίνει πως η δέσμευση σωματιδίων από τη ρητίνη ήταν αποδοτική. Οι συγκεντρώσεις ραδιενέργειας των δειγμάτων ανηγμένες ανά βδομάδα συλλογής δείγματος και διορθωμένες για την ημέρα έναρξης της δειγματοληψίας είναι:

- $2.15 \pm 0.07 \text{ Bqm}^{-2}\text{week}^{-1}$  για το  $^7\text{Be}$  και
- $19 \pm 2 \text{ mBqm}^{-2}\text{week}^{-1}$  για τον  $^{210}\text{Pb}$ .

Από τις τιμές της ραδιενέργειας και τα αντίστοιχα σφάλματα φαίνεται πως το χρονικό διάστημα συλλογής (14 ημέρες) είναι αρκετό, ώστε να προκύψουν ικανοποιητικά αποτελέσματα κατά την ανάλυση.

Πρώτα απ' όλα, παρατηρήθηκε ότι ο χρόνος που απαιτείται για την προετοιμασία του δείγματος είναι πολύ μεγάλος. Συγκεκριμένα, το φιλτράρισμα διήρκτησε τρεις ημέρες, ενώ η ξήρανση της ρητίνης τέσσερις. Οι δύο αυτοί χρόνοι κρίθηκε ότι μπορούν να βελτιωθούν αν στη ρητίνη αφαιρεθεί λιγότερη ποσότητα υγρασίας, και αν αφαιρεθεί το δείγμα περισσότερο χρόνο για να σχηματιστεί το ίζημα, ώστε στη συνέχεια να φιλτραρισθεί πιο εύκολα. Έτσι, στόχος της επόμενης δειγματοληψίας ήταν η ξήρανση της ρητίνης να διαρκέσει μία με δύο ημέρες, ενώ το φιλτράρισμα έως δύο ημέρες.

Μία άλλη παρατήρηση που έγινε κατά την προετοιμασία της γεωμετρίας ήταν ότι το δείγμα είχε μεγάλο όγκο. Η παρατήρηση αυτή προέκυψε, αρχικά, επειδή υπήρξε δυσκολία κατά την πλήρωση του μεταλλικού δισκίου και στη συνέχεια επαληθεύτηκε με τη ζύγιση του δείγματος. Συγκεκριμένα, το δείγμα είχε μάζα  $7.6545\text{g}$ , η οποία ήταν μεγαλύτερη από τις συνήθεις μάζες των δειγμάτων υγρής ή μεικτής απόθεσης ( $6.5$  έως  $7.0 \text{ g}$ ). Δεδομένης της δυσκολίας, που συναντήθηκε κατά την πλήρωση του δισκίου, αποφασίστηκε στην επόμενη δειγματοληψία να χρησιμοποιηθεί λιγότερη μάζα ρητίνης ( $10 - 10.5\text{g}$ ). Σε αυτό το σημείο πρέπει να σημειωθεί ότι η ρητίνη διατηρείται στο δοχείο σε ποσοστό υγρασίας  $50\%$ , γι' αυτό αρχικά το βάρος της είναι μεγαλύτερο και στη συνέχεια, όταν η υγρασία εξισώνεται με αυτή του περιβάλλοντος, μειώνεται και το βάρος.

Η επόμενη παρατήρηση έχει να κάνει με τα σωματίδια που δεν ήταν εύκολο να απομακρυνθούν από τον πλαστικό δίσκο, όπως φαίνεται και στο Σχήμα 5.6α. λύση, η οποία προτάθηκε ώστε να

αποφευχθεί στο μέλλον αυτό το φαινόμενο είναι η χρήση κάποιου άλλου δοχείου, για παράδειγμα γυάλινου, για την ξήρανση της ρητίνης.

Κατά τη συλλογή του δείγματος από την επιφάνεια των συλλεκτών υπήρξε μία μεγάλη διαφορά στη διαδικασία σε σύγκριση με τη διαδικασία συλλογής δειγμάτων υγρής ή μεικτής απόθεσης. Μετά το πέρας της πλύσης των συλλεκτών μετρήθηκε το pH του υγρού δείγματος με ειδικό χαρτί, το οποίο έδειξε  $pH < 1.5$ . Σε συλλογές δειγμάτων υγρής ή μεικτής απόθεσης το pH στην αντίστοιχη φάση της διαδικασίας προκύπτει μεταξύ 5 και 5.5. Η διαφορά αυτή οφείλεται στη χρήση ισχυρότερου οξέος για την πλύση των συλλεκτών στην περίπτωση της ξηρής απόθεσης. Το ισχυρότερο οξύ είναι απαραίτητο στην περίπτωση αυτή, επειδή το δείγμα είναι σε μορφή σκόνης πάνω στους συλλέκτες, άρα η συλλογή είναι πιο δύσκολη, ενώ παράλληλα ευνοείται η προσρόφηση στα τοιχώματα.

Εξαιτίας του διαφορετικού pH η χρήση της ρητίνης κρίθηκε ανασφαλής, όσον αφορά την απόδοσή της σε τόσο χαμηλό επίπεδο pH, αφού η δράση της έχει ελεγχθεί και επιβεβαιωθεί στο ΕΠΤ-ΕΜΠ μόνο για pH μεταξύ 5.0 και 5.5. Για να ρυθμιστεί το pH σε αυτό το επίπεδο χρησιμοποιήθηκε 7.5N διάλυμα  $NH_3$ . Δε λήφθηκε ακριβής μέτρηση για την ποσότητα βασικού διαλύματος  $NH_3$ , που χρησιμοποιήθηκε, όμως εμπειρικά αναφέρεται πως ήταν μεταξύ 15 και 25 ml. Έτσι, το pH του τελικού υγρού δείγματος ρυθμίστηκε μεταξύ 3.5 και 4.0. Η χρήση βασικού διαλύματος ήταν ο μοναδικός αστάθμητος παράγοντας της προετοιμασίας του δείγματος έως εκείνη τη στιγμή, επειδή δεν έχει ξαναγίνει κάτι αντίστοιχο στο ΕΠΤ-ΕΜΠ κατά τη διαδικασία προετοιμασίας δείγματος με χρήση ρητίνης κατιόντων. Για το λόγο αυτό προτάθηκε η χρήση νιτρικού οξέος μοριακότητας 0.1M στην επόμενη δειγματοληψία. Μάλιστα, στην επόμενη δειγματοληψία κρίθηκε προτιμότερο να γίνει πρώτα η πλύση του δειγματολήπτη με απιονισμένο νερό και στη συνέχεια με διάλυμα οξέος.

Συνοψίζοντας λοιπόν, από την πρώτη δειγματοληψία προέκυψαν ήδη κάποιες τροποποιήσεις, οι οποίες πρέπει να εφαρμοστούν ώστε να δημιουργηθεί μία διαδικασία για τα δείγματα ξηρής απόθεσης. Επιπλέον, είναι προφανές πως με τη δειγματοληψία αυτή προέκυψαν και πολλές πρακτικές λεπτομέρειες της διαδικασίας, καθώς και πολλές προτάσεις και διορθώσεις για αλλαγές σε αυτές τις λεπτομέρειες κατά την επόμενη δειγματοληψία. Ο Πίνακας 5.1 είναι η τροποποίηση του αρχικού σχεδιασμού της πειραματικής διαδικασίας, ο οποίος παρουσιάστηκε στο Σχήμα 5.1, με στόχο να συμπεριληφθούν οι πρακτικές λεπτομέρειες της διαδικασίας και οι προτάσεις για διόρθωσή τους στις επόμενες δειγματοληψίες. Ο Πίνακας 5.1 παρουσιάζει, δηλαδή, την πειραματική διαδικασία, η οποία πρέπει να ακολουθηθεί στην επόμενη δειγματοληψία.

Πίνακας 5.1: Διαδικασία για την ανάλυση δειγμάτων ξηρής απόθεσης, όπως αυτή προέκυψε από την πρώτη δειγματοληψία και τις μετέπειτα διορθώσεις. Πρόκειται για τροποποίηση του αρχικού σχεδιασμού της πειραματικής διαδικασίας του Σχήματος 5.1.

<b>Βήμα</b>	<b>Περιγραφή</b>
1	Απομάκρυνση των μεγαλύτερων σωματιδίων, τα οποία έχουν αποθεθεί στους συλλέκτες.
2	Πλύση των συλλεκτών με 1.5L απιονισμένο νερό.
3	Πλύση των συλλεκτών με 500 ml διάλυμα νιτρικού οξέος μοριακότητας 0.1M.
4	Πλύση των συλλεκτών με απιονισμένο νερό.
5	Ρύθμιση του pH με διάλυμα αμμωνίας κανονικότητας 7.5N.
6	Ανάδευση 10.0-10.5 g ρητίνης σε 150ml απιονισμένο νερό για 15min.
7	Ανάδευση της ρητίνης στο δείγμα για δύο ώρες.
8	Αναμονή μία ημέρα για το σχηματισμό ιζήματος στο δείγμα.
9	Φιλτράρισμα με φίλτρο Whatman 90mm.
10	Αναμονή 1-2 ημέρες για ξήρανση του δείγματος σε συνθήκες περιβάλλοντος.
11	Ζύγιση του ιζήματος και του φιλτραρισμένου νερού.
12	Συσκευασία του δείγματος σε δισκίο αλουμινίου.
13	Συσκευασία του φίλτρου σε μεμβράνη.
14	Συσκευασία του φιλτραρισμένου νερού σε δοχείο Marinelli.

### 5.2.3 Δεύτερη ανάλυση του πρώτου δείγματος

Όπως έχει ήδη αναφερθεί, κατά την πρώτη δειγματοληψία ανιχνεύτηκαν τα ραδιενεργά ισότοπα  ${}^7\text{Be}$  και  ${}^{210}\text{Pb}$  μόνο στο ίζημα ρητίνης. Δεν ανιχνεύτηκε ραδιενέργεια ούτε στο φίλτρο ούτε στο φιλτραρισμένο νερό, δηλαδή η ραδιενέργεια στα δύο αυτά δείγματα ήταν χαμηλότερη από το κατώτερο όριο ανίχνευσης των διατάξεων. Κρίθηκε σκόπιμο, λοιπόν, να αναλυθεί στον ανιχνευτή XtRa του ΕΠΤ-ΕΜΠ το φίλτρο σε συνδυασμό με το ίζημα ρητίνης, ώστε να διαπιστωθεί εάν η ραδιενέργεια του φίλτρου (εάν υπάρχει αλλά δεν έχει ανιχνευθεί διότι βρίσκεται κάτω από τα όρια ανίχνευσης) είναι αρκετή, ώστε να αυξηθεί η ραδιενέργεια του δείγματος (ίζημα ρητίνης). Έτσι, τοποθετήθηκε το φίλτρο στον ανιχνευτή και πάνω σε αυτό τοποθετήθηκε το μεταλλικό δισκίο, στο οποίο περιέχεται το ίζημα ρητίνης.

Για την ανάλυση δεν έγινε βαθμονόμηση της γεωμετρίας φίλτρου-μεταλλικού δισκίου, επειδή θεωρήθηκε ότι το φίλτρο είναι αρκετά λεπτό, ώστε να μην επηρεάσει σημαντικά τη μέτρηση. Μάλιστα, κατά τη δεύτερη αυτή ανάλυση, το φάσμα συλλέχθηκε για τριπλάσιο χρόνο σε σχέση με την πρώτη ανάλυση. Συνεπώς μετά από στατιστική ανάλυση των αποτελεσμάτων μπορεί να εξαχθεί και συμπέρασμα για το αν ο χρόνος συλλογής του φάσματος, ο οποίος χρησιμοποιήθηκε, οδηγεί σε ικανοποιητική στατιστική.

Από την ανάλυση του φάσματος με τον κώδικα SPUNAL υπολογίστηκε ότι η ειδική ραδιενέργεια του δείγματος είναι  $2.08 \pm 0.05 \text{ Bqm}^{-2}\text{week}^{-1}$  σε  ${}^7\text{Be}$  και  $19 \pm 2 \text{ mBqm}^{-2}\text{week}^{-1}$  σε  ${}^{210}\text{Pb}$ . Με μία πρώτη ματιά, τα αποτελέσματα φαίνονται να είναι ενθαρρυντικά, αφού οι τιμές αυτές είναι μικρότερες από αυτές της πρώτης ανάλυσης του δείγματος. Δεν υπάρχει, δηλαδή, ραδιενέργεια στο φίλτρο, η οποία κατά την ταυτόχρονη ανάλυση με το δείγμα ρητίνης να αυξάνει τη ραδιενέργεια. Βέβαια, ο μοναδικός τρόπος για να κριθεί εάν υπάρχει στατιστικά σημαντική διαφορά είναι με το στατιστικό τεστ, που ακολουθεί.

Η σύγκριση δύο διαφορετικών μετρήσεων μπορεί να γίνει με το παραμετρικό στατιστικό  $U$ -test. Η προϋπόθεση ισχύος του τεστ αυτού είναι οι μετρήσεις να αναφέρονται σε δείγματα, τα οποία να έχουν συλλεχθεί και επεξεργαστεί με τον ίδιο ακριβώς τρόπο. Σε αυτή την περίπτωση οι μετρήσεις, αφορούν στο ίδιο δείγμα, οπότε ισχύει η προϋπόθεση του τεστ. Το τεστ γίνεται με βάση την τιμή της παραμέτρου  $U_{\text{score}}$ , η οποία υπολογίζεται από τη Σχέση 5.1, για κάθε ζεύγος μεγεθών το οποίο συγκρίνεται. Στη σχέση αυτή οι μεταβλητές  $Val_1$  και  $Val_2$  είναι οι τιμές, οι οποίες συγκρίνονται και οι μεταβλητές  $Unc_1$  και  $Unc_2$  είναι οι αντίστοιχες αβεβαιότητες (1σ) των τιμών αυτών.



$$U_{\text{score}} = \frac{|Val_1 - Val_2|}{\sqrt{Unc_1^2 + Unc_2^2}} \quad (5.1)$$

Οι τιμές  $Val_1$  και  $Val_2$  μπορούν να θεωρηθούν στατιστικώς ίσες σε επίπεδο εμπιστοσύνης 95% αν η τιμή της παραμέτρου  $U_{\text{score}}$  είναι μικρότερη από 1.64 (Fajgeli A., 2007). Για τις τιμές των συγκεντρώσεων των ισοτόπων  ${}^7\text{Be}$  και  ${}^{210}\text{Pb}$  από τις δύο αναλύσεις του πρώτου δείγματος υπολογίστηκαν  $U_{\text{score}} = 0.40$  για το  ${}^7\text{Be}$  και  $U_{\text{score}} = 0.11$  για τον  ${}^{210}\text{Pb}$ . Οι δύο τιμές της παραμέτρου  $U_{\text{score}}$  είναι μικρότερες από 1.64, άρα τα αποτελέσματα της δεύτερης ανάλυσης μπορούν να θεωρηθούν στατιστικώς ίσα με αυτά της πρώτης. Το συμπέρασμα του στατιστικού αυτού τεστ είναι:

1. Στο φίλτρο δεν υπάρχουν αρκετά δεσμευμένα σωματίδια, ώστε να αυξήσουν τη συγκέντρωση του δείγματος σε  ${}^7\text{Be}$  και  ${}^{210}\text{Pb}$ .
2. Ο χρόνος συλλογής του πρώτου φάσματος είναι αρκετός, ώστε να δημιουργηθεί καλή στατιστική. Η παρατήρηση αυτή δε θα μπορούσε να γίνει εάν δεν ίσχυε η πρώτη.

## 5.3 Επόμενες δειγματοληψίες ξηρής απόθεσης

### 5.3.1 Παρατηρήσεις και τυποποίηση της πειραματικής διαδικασίας

Το αποτέλεσμα της πρώτης δειγματοληψίας ήταν η διατύπωση της πειραματικής διαδικασίας, η οποία παρουσιάζεται στον Πίνακα 5.1. Αν και η διαδικασία περιέχει περισσότερες λεπτομέρειες από τον αρχικό σχεδιασμό, ο οποίος παρουσιάστηκε στο Σχήμα 5.1, δεν είναι σε καμία περίπτωση μία τυποποιημένη πειραματική διαδικασία. Σκοπός, λοιπόν, των επόμενων δειγματοληψιών ήταν η τυποποίηση της διαδικασίας και η αξιολόγηση των αποτελεσμάτων. Με τον όρο τυποποίηση της πειραματικής διαδικασίας εννοείται να διατυπωθεί διαδικασία, όπως αυτή του Πίνακα 5.1, στην οποία θα αναγράφονται ακριβώς τα βήματα και οι ποσότητες των διαλυμάτων και των ενώσεων, που χρησιμοποιούνται. Έτσι, όταν ακολουθείται η διαδικασία αυτή, θα είναι γνωστή η αξιοπιστία της, τα σφάλματά της και τα επίπεδα των αποτελεσμάτων.

Για να γίνει η τυποποίηση απαιτείται ο έλεγχος και η αξιολόγηση του κάθε βήματος της διαδικασίας. Έχουν ήδη διατυπωθεί κάποιες παρατηρήσεις και προτάσεις για βελτίωση, οι οποίες

αποτελούν τη βάση για τη διόρθωση της πειραματικής διαδικασίας. Σύμφωνα με αυτές τις παρατηρήσεις, τα βήματα της πειραματικής διαδικασίας, τα οποία πρέπει να ελεγχθούν ή/και να διορθωθούν είναι:

1. Ο χρόνος συλλογής του δείγματος, δηλαδή ο χρόνος έκθεσης των συλλεκτών στην οροφή του ΕΠΤ-ΕΜΠ.
2. Ο χρόνος προετοιμασίας του δείγματος, ο οποίος απαρτίζεται από:
  - το χρόνο ξήρανσης της ρητίνης.
  - το χρόνο φιλτραρίσματος.
3. Η μάζα της ρητίνης, η οποία αναδεύεται στο δείγμα.
4. Η τελική μάζα του δείγματος.
5. Η μοριακότητα του διαλύματος  $\text{HNO}_3$ , το οποίο χρησιμοποιείται για την πλύση των συλλεκτών.
6. Ο όγκος του διαλύματος  $\text{NH}_3$  (κανονικότητας 7.5N), ο οποίος χρησιμοποιείται για τη ρύθμιση του pH.

Στον Πίνακα 5.2 παρουσιάζονται τα παραπάνω ποσοτικά στοιχεία, όπως εφαρμόστηκαν στις τρεις πρώτες δειγματοληψίες, με σκοπό να διορθωθεί περαιτέρω η πειραματική διαδικασία. Η γραμμή με τίτλο 'Σχηματισμός Ιζήματος' αναφέρεται στο χρόνο, κατά τον οποίο το δείγμα αφέθηκε ελεύθερο, ώστε να σχηματισθεί ίζημα, ενώ στη γραμμή με τίτλο 'Φιλτράρισμα' αναγράφεται ο χρόνος, που διήρκησε το φιλτράρισμα του κάθε δείγματος. Δίπλα από κάθε αριθμό της στήλης με τίτλο 'Χρόνος Συλλογής' αναγράφεται ένας αριθμός μέσα σε παρένθεση. Ο αριθμός αυτός είναι το χρονικό διάστημα (σε ημέρες), κατά το οποίο διακόπηκε η δειγματοληψία. Τέλος, πρέπει να τονισθεί και σε αυτό το σημείο ότι στην πρώτη δειγματοληψία οι συλλέκτες πλύθηκαν πρώτα με το διάλυμα οξέος και έπειτα με απιονισμένο νερό, ενώ στην τελευταία έγινε το αντίστροφο. Δηλαδή, πρώτα έγινε πλύση με απιονισμένο νερό και στη συνέχεια με το διάλυμα οξέος.

Από τον Πίνακα 5.2 μπορούν να γίνουν πολλές αξιοσημείωτες παρατηρήσεις. Πρώτα απ' όλα φαίνεται, πως δεν μπορεί να καθοριστεί ένα συγκεκριμένο χρονικό διάστημα, το οποίο απαιτείται για την ξήρανση της ρητίνης, επειδή εξαρτάται πολύ από τους περιβαλλοντικούς παράγοντες και συγκεκριμένα από την υγρασία και τη θερμοκρασία του χώρου, στον οποίο αφήνεται να ξηρανθεί. Επίσης, εξαρτάται και από το διάλυμα, το οποίο αφήνεται να ξηρανθεί. Αν σε αυτό το διάλυμα

Πίνακας 5.2: Τιμές των διαφόρων παραμέτρων, οι οποίες χρησιμοποιήθηκαν στις τρεις πρώτες δειγματοληψίες ξηρής απόθεσης.

Δείγμα	DR001	DR002	DR003
Χρόνος Συλλογής (d)	14 (3)	35 (5)	22 (0)
Σχηματισμός Ιζήματος (d)	0.5	1.5	3
Φιλτράρισμα (d)	3	2	4 hrs
Ξήρανση Ρητίνης (d)	4	2	3
Μάζα Ρητίνης (g)	10.80	10.20	10.86
Μάζα Δείγματος (g)	7.65	6.45	6.90
Μοριακότητα διαλύματος HNO <sub>3</sub> (M)	0.15	0.10	0.10
Όγκος Απιονισμένου Νερού (L)	2.5	2.2	2.3
Όγκος Διαλύματος Οξέος (L)	0.5	0.5	0.5
Όγκος NH <sub>3</sub> (g)	> 15	15	15
Συνολικός Όγκος του Δείγματος (L)	3.2	2.9	3.0
pH Δείγματος	3.5-4.0	4.5-5.0	5.0-5.5

περιέχεται μεγάλη ποσότητα υγρού, όπως έγινε στην πρώτη δειγματοληψία (Σχήμα 5.4δ), τότε, προφανώς απαιτείται περισσότερος χρόνος για την ξήρανση.

Μία σημαντική παρατήρηση στον Πίνακα 5.2 αφορά τη σημαντική επίδραση του χρόνου σχηματισμού ιζήματος, στο χρόνο φιλτραρίσματος. Συγκεκριμένα, κατά την τρίτη δειγματοληψία το δείγμα αφέθηκε 3 μέρες, ώστε να σχηματιστεί ιζημα. Όπως φαίνεται και στην αντίστοιχη γραμμή του Πίνακα 5.2, το διάστημα αυτό ήταν διπλάσιο σε σχέση με την προηγούμενη δειγματοληψία. Το αποτέλεσμα του παραπάνω χρόνου ήταν ότι το φιλτράρισμα ολοκληρώθηκε σε 4 ώρες, ενώ στις προηγούμενες δειγματοληψίες χρειάστηκαν παραπάνω από δύο μέρες. Ο επιπλέον χρόνος, ο οποίος διατέθηκε για το σχηματισμό ιζήματος, οδήγησε σε αποδοτικότερο σχηματισμό ιζήματος, δηλαδή περισσότερα αιωρούμενα σωματίδια του δείγματος συμπεριλήφθηκαν στο ιζημα. Συνεπώς, κατά το φιλτράρισμα το διάλυμα, το οποίο διαπερνούσε το φίλτρο περιείχε λιγότερα σωματίδια, άρα διαπερνούσε πιο εύκολα-γρήγορα το φίλτρο. Η παρατήρηση αυτή είναι πολύ σημαντική, επειδή μειώνει σημαντικά το χρόνο ενασχόλησης με το δείγμα. Με λίγα λόγια αν το δείγμα αφευθεί για δύο ή τρεις ημέρες ελεύθερο για να σχηματιστεί το ιζημα, τότε το φιλτράρισμα θα ολοκληρωθεί μέσα στην επόμενη ημέρα. Έτσι η ανθρώπινη ενασχόληση, η οποία απαιτείται για το φιλτράρισμα περιορίζεται σε κάποιες ώρες, σε αντίθεση με τις δύο

πρώτες δειγματοληψίες, κατά τις οποίες απαιτούταν ανθρώπινη παρουσία για παραπάνω από δύο ημέρες.

Καθώς το αερόλυμα της ατμόσφαιρας μπορεί να προέρχεται από πολλές διαφορετικές πηγές, η σύσταση των αιωρούμενων σωματιδίων, τα οποία αποτίθενται στους συλλέκτες παρουσιάζει μεγάλη κύμανση. Επίσης, ο χρόνος παραμονής των σωματιδίων στην ατμόσφαιρα και η ταχύτητα απόθεσής τους εξαρτώνται από πολλούς παράγοντες. Συνέπεια των δύο αυτών παρατηρήσεων είναι η αδυναμία να διατυπωθεί ένα στενό ποσοτικό όριο για τη μάζα της ρητίνης, η οποία πρέπει να χρησιμοποιηθεί κατά την προετοιμασία του δείγματος. Συγκεκριμένα, στον Πίνακα 5.2 φαίνεται ότι στο τρίτο δείγμα χρησιμοποιήθηκε σχεδόν ίση ποσότητα ρητίνης με αυτή που χρησιμοποιήθηκε στο πρώτο, αλλά η μάζα του τρίτου δείγματος ήταν σχεδόν 0.7 g μικρότερη από αυτή του πρώτου. Σε αυτό το σημείο πρέπει να τονισθεί πως η μάζα της ρητίνης, η οποία αναγράφεται στον Πίνακα 5.2 είναι μαζί με την υγρασία της. Ύστερα από μετρήσεις, οι οποίες έχουν γίνει στο ΕΠΤ-ΕΜΠ, έχει διαπιστωθεί πως η σχετική υγρασία της ρητίνης κατιόντων Dowex 50WX8 hydrogen form είναι περίπου 50%, δηλαδή η καθαρή μάζα της (ξηρής) ρητίνης είναι περίπου η μισή από αυτή, που αναγράφεται στο παρόν κείμενο έως τώρα.

Συνοψίζοντας, στον Πίνακα 5.2 παρουσιάζονται τα ποσοτικά στοιχεία των τριών δειγματοληψιών, οι οποίες έγιναν στα πλαίσια της παρούσας ΔΕ. Από τα στοιχεία αυτά και λαμβάνοντας υπόψη και τις παραπάνω παρατηρήσεις είναι πλέον δυνατό να διατυπωθεί η τυποποιημένη διαδικασία συλλογής και επεξεργασίας δειγμάτων ξηρής απόθεσης. Η διαδικασία αυτή παρουσιάζεται στον Πίνακα 5.3. Σε αυτό το σημείο πρέπει να τονισθεί πως η διαδικασία εφαρμόστηκε και τυποποιήθηκε με χρήση του διαθέσιμου εξοπλισμού του ΕΠΤ-ΕΜΠ. Συνεπώς, οι ποσότητες, οι οποίες αναγράφονται στον Πίνακα 5.3 αφορούν στη ρητίνη κατιόντων Dowex 50WX8 hydrogen form και για επιφάνεια συλλογής πλαστικό/ά δοχείο/α συνολικού εμβαδού περίπου 0.55  $m^2$ , όσο δηλαδή η συνολική επιφάνεια των τριών πλαστικών συλλεκτών του ΕΠΤ-ΕΜΠ, οι οποίοι χρησιμοποιήθηκαν. Σε περίπτωση χρήσης μεγαλύτερης επιφάνειας απαιτείται και ανάλογη αύξηση των ποσοτήτων, οι οποίες αναγράφονται. Στην τελευταία στήλη του Πίνακα 5.3 παρουσιάζεται, ενδεικτικά, ο χρόνος, ο οποίος απαιτείται για τη διεκπεραίωση κάθε βήματος. Συνολικά, φαίνεται ότι για τη συλλογή ενός δείγματος ξηρής απόθεσης απαιτείται χρονικό διάστημα περίπου μίας εβδομάδας. Τέλος, πρέπει να τονισθεί πως το ελάχιστο διάστημα έκθεσης των συλλεκτών στην οροφή, ήταν για 14 ημέρες, δηλαδή η διαδικασία δεν έχει ελεγχθεί για μικρότερα διαστήματα έκθεσης μέχρι στιγμής.

Πίνακας 5.3: Τυποποιημένη διαδικασία συλλογής δειγμάτων ξηρής απόθεσης στο ΕΠΤ-ΕΜΠ. Οι ποσότητες αναφέρονται σε επιφάνεια συλλογής περίπου  $0.55 \text{ m}^2$ , η οποία αντιστοιχεί σε 3 ορθογώνιους συλλέκτες του ΕΠΤ-ΕΜΠ. Η ρητίνη είναι Dowex 50WX8 hydrogen form .

Διαδικασία	Βήμα	Περιγραφή	Χρόνος
Συλλογή Δείγματος από την επιφάνεια των συλλεκτών- Δημιουργία υγρού δείγματος	1	Απομάκρυνση των μεγαλύτερων σωματιδίων, τα οποία έχουν αποτεθεί πάνω στους συλλέκτες.	3 ώρες
	2	Πλύση με 1.5L απιονισμένο νερό. (500ml ανά συλλέκτη)	
	3	Πλύση με 500 ml διάλυμα νιτρικού οξέος μοριακότητας 0.1M.	
	4	Πλύση με απιονισμένο νερό μέχρι ο συνολικός όγκος να γίνει περίπου 3L.	
	5	Ρύθμιση του pH περίπου στο 5 με ανάμειξη 15ml διαλύματος αμμωνίας κανονικότητας 7.5N.	
Συλλογή των κατιόντων με χρήση ρητίνης κατιόντων	6	Ανάμειξη 5.5g (ξηρής) ρητίνης σε 150 ml απιονισμένο νερό και ανάδευση για 15min	2 ώρες
	7	Ανάμειξη της ρητίνης στο δείγμα και ανάδευση για 2 ώρες με μαγνητικό αναδευτήρα.	2-3 μέρες
Φιλτράρισμα του Δείγματος	8	Σχηματισμός ιζήματος στο μείγμα σε συνθήκες περιβάλλοντος.	4 ώρες
	9	Φιλτράρισμα με φίλτρο Whatman διαμέτρου 90mm .	2-3 μέρες
Συσκευασία του Δείγματος για γ-Φασματοσκοπική Ανάλυση	10	Ξήρανση του ιζήματος σε συνθήκες περιβάλλοντος.	1 ώρα
	11	Ζύγιση του ιζήματος και του φιλτραρισμένου νερού.	
	12	Συσκευασία του ιζήματος στο δισκίο αλουμινίου.	
	13	Συσκευασία του φίλτρου με μεμβράνη.	
	14	Συσκευασία του φιλτραρισμένου νερού σε δοχείο Marinelli.	

Πίνακας 5.4: Αποτελέσματα ραδιενέργειας  ${}^7\text{Be}$  και  ${}^{210}\text{Pb}$  σε  $\text{Bqweek}^{-1}\text{m}^{-2}$  στα τρία δείγματα ξηρής απόθεσης.

Δείγμα	Έναρξη	${}^7\text{Be}$	${}^{210}\text{Pb}$	Χρόνος Συλλογής ( <i>days</i> )
DR001	24/06/19	$2.15 \pm 0.07$	$19 \cdot 10^{-3} \pm 2 \cdot 10^{-3}$	14
DR002	19/07/19	$1.10 \pm 0.04$	$6 \cdot 10^{-3} \pm 1 \cdot 10^{-3}$	35
DR003	28/08/19	$0.38 \pm 0.05$	$5 \cdot 10^{-3} \pm 1 \cdot 10^{-3}$	22

### 5.3.2 Αποτελέσματα ανάλυσης, σχολιασμός και προτάσεις

Στον Πίνακα 5.4 παρουσιάζονται οι τιμές ραδιενέργειας σε  $\text{Bqweek}^{-1}\text{m}^{-2}$  για τα τρία δείγματα ξηρής απόθεσης, τα οποία συλλέχθηκαν με σκοπό το σχεδιασμό και την τυποποίηση της πειραματικής μεθόδου για τη δειγματοληψία ξηρής απόθεσης. Από τον Πίνακα αυτόν φαίνεται ότι και στα τρία δείγματα ανιχνεύτηκε τόσο το ισότοπο  ${}^7\text{Be}$  όσο και το  ${}^{210}\text{Pb}$ , επαληθεύοντας με αυτόν τον τρόπο τις αρχικές εκτιμήσεις, οι οποίες έγιναν κατά το σχεδιασμό.

Τα δύο αυτά ισότοπα έχουν ανιχνευτεί και από άλλους ερευνητές, όπως έχει ήδη παρουσιαστεί στους Πίνακες 3.3,3.4. Μάλιστα, αν οι τιμές των Πινάκων αυτών αναχθούν στη μονάδα μέτρησης  $\text{Bqweek}^{-1}\text{m}^{-2}$  διαπιστώνεται ικανοποιητική σύγκλιση -ίδια τάξη μεγέθους- με τα αποτελέσματα του Πίνακα 5.4, γεγονός, το οποίο αποτελεί ενθαρρυντική παρατήρηση για την επιτυχία και την αξιοπιστία της πειραματικής διαδικασίας που σχεδιάστηκε. Επιπλέον, τα αποτελέσματα φαίνεται να έχουν μία συνέπεια μεταξύ τους τουλάχιστον ως προς τα ισότοπα, τα οποία ανιχνεύονται και ως προς την τάξη μεγέθους των μετρήσεων.

Το αντικείμενο της παρούσας ΔΕ ήταν αποκλειστικά ο σχεδιασμός της πειραματικής διαδικασίας, με σκοπό την ανάλυση και την αναπαραγωγή αξιόπιστων αποτελεσμάτων. Από την ανάλυση των δειγμάτων φαίνεται ότι αυτός ο σκοπός επιτεύχθηκε, με αποτέλεσμα να υπάρχει πλέον μία τυποποιημένη διαδικασία, με την οποία μπορούν να γίνουν δειγματοληψίες ξηρής απόθεσης στο ΕΠΤ-ΕΜΠ, με τελικό σκοπό την δημιουργία ενός πλήρους συστήματος παρακολούθησης της ατμοσφαιρικής ραδιενέργειας, το οποίο θα αποτελείται από μετρήσεις αέρα, ξηρής και υγρής απόθεσης.

Με τη δειγματοληψία ξηρής απόθεσης, μπορεί πλέον να διερευνηθεί η συσχέτιση μεταξύ των μετρήσεων στον αέρα, με τις υγρές και ξηρές κατακρημνίσεις και τις ατμοσφαιρικές συνθήκες, όπως υγρασία, θερμοκρασία, ύψος βροχής κλπ.

## Κεφάλαιο 6

# Συνοπτική παρουσίαση της διπλωματικής εργασίας

Στόχος της παρούσας Διπλωματικής Εργασίας ήταν η ανάπτυξη μίας τυποποιημένης μεθοδολογίας για τη συλλογή δειγμάτων ξηρής απόθεσης και την ανίχνευση ραδιενεργών ισότοπων στα δείγματα αυτά. Όπως έγινε σαφές στο Κεφάλαιο 2, στον ατμοσφαιρικό αέρα, ανιχνεύονται πολλά ραδιενεργά ισότοπα, τα οποία διαφέρουν ως προς την προέλευση και τη συγκέντρωση. Τα ισότοπα  ${}^7\text{Be}$  και  ${}^{210}\text{Pb}$  είναι αυτά με τις υψηλότερες συγκεντρώσεις ραδιενέργειας στην ατμόσφαιρα, με τις τιμές της να ποικίλουν ανάλογα το υψόμετρο, το γεωγραφικό πλάτος και άλλες παραμέτρους.

Τα ραδιενεργά ισότοπα, τα οποία ανιχνεύονται στην ατμόσφαιρα, εντοπίζονται κυρίως στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα, εξ' αιτίας φαινομένων ιονισμού, στα ίδια τα ισότοπα και στον ατμοσφαιρικό αέρα, όπως αναλύεται στο Κεφάλαιο 3. Συνεπώς, τα ραδιενεργά ισότοπα συμμετέχουν στις ίδιες διεργασίες, στις οποίες συμμετέχει και το ατμοσφαιρικό αερόλυμα, οπότε καταλήγουν στην επιφάνεια της Γης μέσω των διεργασιών της υγρής και της ξηρής απόθεσης του αερολύματος. Ο όρος υγρή απόθεση αναφέρεται στην απομάκρυνση του ατμοσφαιρικού αερολύματος μόνο μέσω των υγρών κατακρημνήσεων (βροχή, χιόνι), οι οποίες συμπαρασύρουν τα σωματίδια, ενώ ο όρος ξηρή απόθεση αναφέρεται στη συνεχή απομάκρυνση των σωματιδίων κυρίως μέσω της βαρύτητας και είναι και ο μηχανισμός, ο οποίος απασχόλησε την παρούσα ΔΕ.

Στη βιβλιογραφία αναφέρονται δειγματοληψίες και αναλύσεις σε δείγματα υγρής απόθεσης, από τις οποίες έχουν εντοπιστεί ραδιενεργά ισότοπα με πρωταγωνιστές -σε όρους συγκέντρωσης ραδιενέργειας- τα ισότοπα  ${}^7\text{Be}$ ,  ${}^{210}\text{Pb}$ ,  ${}^{137}\text{Cs}$ . Στο ΕΠΤ-ΕΜΠ έχουν γίνει αντίστοιχα πειράματα, από τα οποία έχει προκύψει μία τυποποιημένη μεθοδολογία για τη συλλογή και φασματοσκοπική ανάλυση δειγμάτων υγρής απόθεσης με χρήση ρητίνης κατιόντων. Τα αντίστοιχα

πειράματα, τα οποία έχουν γίνει για την ξηρή απόθεση είναι αρκετά περιορισμένα, όπως φάνηκε και από τη βιβλιογραφική ανασκόπηση, που παρουσιάζεται στο Κεφάλαιο 3. Στα πειράματα αυτά, τα ραδιενεργά ισότοπα με το μεγαλύτερο ενδιαφέρον είναι και πάλι τα  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ , όπως φαίνεται και από τα αποτελέσματα που παρουσιάζονται στους Πίνακες 3.3, 3.4

Σύμφωνα, λοιπόν, με τα παραπάνω αποτελέσματα ο σχεδιασμός της πειραματικής διαδικασίας προσαπολίστηκε στην προσαρμογή της πειραματικής μεθόδου, η οποία χρησιμοποιείται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ για τα δείγματα υγρής απόθεσης. Συγκεκριμένα η πειραματική διαδικασία έπρεπε να πληροί τις παρακάτω απαιτήσεις:

- Κατάλληλη προσαρμογή της μεθόδου επεξεργασίας δειγμάτων υγρής απόθεσης, ώστε να διατηρηθούν τα πλεονεκτήματα της ήδη δοκιμασμένης μεθόδου.
- Επαναληψιμότητα της διαδικασίας, τα αποτελέσματα να είναι αξιόπιστα.
- Κατά το δυνατόν χαμηλές αβεβαιότητες στις συγκεντρώσεις ραδιενέργειας των ισωτόπων  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ .
- Μικρός χρόνος απασχόλησης προσωπικού κατά τη διάρκεια της δειγματοληψίας και αντίστοιχα μικρός απαιτούμενος χρόνος για την επεξεργασία του δείγματος, ώστε να είναι εφικτή ακόμα και η συνεχής παρακολούθηση της ραδιενέργειας των ξηρής ατμοσφαιρικής απόθεσης στο ΕΠΤ-ΕΜΠ.

Με γνώμονα τα παραπάνω έγιναν τρεις δειγματοληψίες ξηρής απόθεσης, με χρήση τριών ορθογωνίων πλαστικών συλλεκτών συνολικής επιφάνειας  $0.55\text{m}^2$ , με διαφορετικό χρόνο έκθεσης. Στους συλλέκτες έγιναν πλύσεις με διάλυμα νιτρικού οξέος και απιονισμένο νερό και στη συνέχεια έγινε ανάμειξη του υγρού δείγματος με ρητίνη κατιόντων Dowex 50WX8 hydrogen form, το οποίο φιλτραρίστηκε. Τέλος, το ίζημα που προέκυψε αφαιρέθηκε για φυσική ξήρανση σε θερμοκρασία περιβάλλοντος και στη συνέχεια συσκευάστηκε στη βαθμονομημένη γεωμετρία AlCap του ΕΠΤ-ΕΜΠ, ώστε να αναλυθεί με τη μέθοδο της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης στον ανιχνευτή XtRa.

Κατά την επεξεργασία των δειγμάτων έγιναν αλλαγές στις παραμέτρους επεξεργασίας με την κυριότερη να αφορά την ποσότητα της χρησιμοποιούμενης ρητίνης, η οποία μειώθηκε κατά  $0.5\text{g}$  σε σχέση με την ποσότητα, η οποία χρησιμοποιείται στις δειγματοληψίες υγρής απόθεσης. Αντίστοιχα, κρίθηκε σκόπιμη η μείωση της μοριακότητας του διαλύματος νιτρικού οξέος σε  $0.1\text{M}$ , από  $0.15\text{M}$ , ώστε το  $pH$  του τελικού διαλύματος να ρυθμίζεται ευκολότερα στα όρια  $4.5 - 5.5$ . Οι αλλαγές των παραμέτρων παρουσιάστηκαν αναλυτικά στον Πίνακα 5.2.



Σε κάθε περίπτωση, μετά την προτεοιμασία του δείγματος ακολούθησε γ-φασματοσκοπική ανάλυση, αναλύθηκε το γ-φάσμα με τον κώδικα SPUNAL και υπολογίστηκαν οι τιμές συγκέντρωσης ραδιενέργειας, οι οποίες παρουσιάζονται στον Πίνακα 5.4. Τα αποτελέσματα αυτά φαίνονται -κατ' αρχήν- να είναι αξιόπιστα-ρεαλιστικά, αφού τα αποτελέσματα εμφανίζονται σε ίδια τάξη μεγέθους με σφάλμα, της τάξης 3% έως 13% . Στο τελευταίο (τρίτο) δείγμα εμφανίζεται μία μείωση της συγκέντρωσης σε σχέση με τα υπόλοιπα δύο, κάτι το οποίο όμως θα μπορούσε κάλλιστα να οφείλεται στη φυσική κύμανση των ισοτόπων στην ατμόσφαιρα. για την οποία δεν μπορεί να δοθεί κάποια εξήγηση με ένα τόσο μικρό αριθμό δειγμάτων, επειδή δεν επαρκούν για τη δημιουργία συσχετίσεων με περιβαλλοντικούς παράγοντες. Για το λόγο αυτό προτάθηκε και στην Παράγραφο 5.3.2 η συνέχεια των δειγματοληψιών με συστηματικό τρόπο, ώστε να παρουσιαστούν οι διακυμάνσεις στις συγκεντρώσεις ραδιενέργειας ως συνάρτηση περιβαλλοντικών παραγόντων όπως η θερμοκρασία, η σχετική υγρασία και η ηλιακή δραστηριότητα. Για να ενισχυθεί ο ισχυρισμός για την αξιοπιστία της διαδικασίας αναφέρεται ότι το δείγμα νερού, το οποίο προέκυψε από το φιλτράρισμα του δείγματος, καθώς και το φίλτρο, το οποίο χρησιμοποιήθηκε αναλύθηκαν ανεξάρτητα με γ-φασματοσκοπική ανάλυση. Από την ανάλυση αυτή φάνηκε ότι δεν υπάρχει συγκέντρωση  $^7\text{Be}$  στο δείγμα, ενώ η συγκέντρωση  $^{210}\text{Pb}$  δεν ξεπέρασε τα όρια του υποστρώματος.

Όσον αφορά τη μελλοντική συνέχιση της εργασίας αυτής, οπωσδήποτε έχει μεγάλη σημασία η μέθοδος που αναπτύχθηκε να εφαρμοσθεί συστηματικά προκειμένου να αποκτηθεί όγκος μερήσεων ξηρής απόθεσης, σε συνδυασμό με παράλληλες μετρήσεις υγρής απόθεσης και μετρήσεις της συγκέντρωσης των ίδιων ισοτόπων στον αέρα ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ ). Οι προηγούμενες, διαφορετικού τύπου μετρήσεις, θα μπορούσαν, σε συνδυασμό με μετεωρολογικές παραμέτρους, και άλλα φαινόμενα, όπως η κίνηση αερίων μαζών αφρικανικής προέλευσης, οι δασικές πυρκαγιές κλπ, να οδηγήσουν σε συσχετίσεις μεταξύ των μεγεθών, η να τροφοδοτήσουν μοντέλα διασποράς και απόθεσης των ισοτόπων ή του αερολύματος γενικότερα στο έδαφος.

# Βιβλιογραφία

- Akata, Naofumi et al. (2008). “Total deposition velocities and scavenging ratios of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  at Rokkasho, Japan”. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 277.2, pp. 347–355. ISSN: 02365731. DOI: 10.1007/s10967-007-7095-1.
- Al-jubeh, Wal et al. (2012). “Radioiodine I-131 for diagnosing and treatment of thyroid diseases”. In: June 2012.
- Almayahi, B. A. et al. (2013). “In situ soil  $^{222}\text{Rn}$  and  $^{220}\text{Rn}$  and their relationship with meteorological parameters in tropical Northern Peninsular Malaysia”. In: *Radiation Physics and Chemistry* 90, pp. 11–20. ISSN: 0969806X. DOI: 10.1016/j.radphyschem.2013.04.028. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.radphyschem.2013.04.028>.
- Amiro, B. D. et al. (1996). “Burning radionuclide question: What happens to iodine, cesium and chlorine in biomass fires?” In: *Science of the Total Environment* 187.2, pp. 93–103. ISSN: 00489697. DOI: 10.1016/0048-9697(96)05125-X.
- Ammann, M. et al. (2007). *Model Validation and Assessment Effectiveness*. Tech. rep., p. 440.
- Anagnostakis, M.J. et al. (1996). “Natural radioactivity mapping of Greek surface soils”. In: *Environment International* 22. The Natural Radiation Environment VI, pp. 3–8. ISSN: 0160-4120. DOI: [https://doi.org/10.1016/S0160-4120\(96\)00085-2](https://doi.org/10.1016/S0160-4120(96)00085-2). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0160412096000852>.
- Anand, S. J.S. and C. Rangarajan (1990). “Studies on the activity ratios of polonium-210 to lead-210 and their dry-deposition velocities at Bombay in India”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 11.3, pp. 235–250. ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/0265-931X(90)90017-P.
- Arnold, Frank (2008). “Atmospheric ions and aerosol formation”. In: *Space Science Reviews* 137.1-4, pp. 225–239. ISSN: 00386308. DOI: 10.1007/s11214-008-9390-8.
- ASTM International (2011). “Standard Test Methods for Pore Size Characteristics of Membrane Filters by Bubble Point and Mean Flow Pore Test”. In: *Astm*. Vol. 03. Reapproved 2011, pp. 1–7. DOI: 10.1520/F0316-03R11.2.

- Attallah, M. and Nasser Awwad (Jan. 2012). “Environmental Radioactivity of TE-NORM Waste Produced from Petroleum Industry in Egypt: Review on Characterization and Treatment”. In:
- Azahra, M. et al. (2003). “Seasonal  $^7\text{Be}$  concentrations in near-surface air of Granada (Spain) in the period 1993–2001”. In: *Applied Radiation and Isotopes* 59.2, pp. 159–164. ISSN: 0969-8043. DOI: [https://doi.org/10.1016/S0969-8043\(03\)00154-4](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(03)00154-4). URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0969804303001544>.
- Baklanov, A. and J. H. Sørensen (2001). “Parameterisation of radionuclide deposition in atmospheric long-range transport modelling”. In: *Physics and Chemistry of the Earth, Part B: Hydrology, Oceans and Atmosphere* 26.10, pp. 787–799. ISSN: 14641909. DOI: 10.1016/S1464-1909(01)00087-9.
- Baskaran, M. (2011). “Po-210 and Pb-210 as atmospheric tracers and global atmospheric Pb-210 fallout: A Review”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 102.5, pp. 500–513. ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2010.10.007. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2010.10.007>.
- Baskaran, M. et al. (1993). “Atmospheric depositional fluxes of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  at Galveston and College Station, Texas”. In: *Journal of Geophysical Research* 98.D11, p. 20555. ISSN: 0148-0227. DOI: 10.1029/93jd02182.
- Bazilevskaya, G. A. et al. (2008). “Cosmic ray induced ion production in the atmosphere”. In: *Space Science Reviews* 137.1-4, pp. 149–173. ISSN: 00386308. DOI: 10.1007/s11214-008-9339-y.
- Beer, Jürg (2009). “Cosmogenic Radionuclides”. In: *Encyclopedia of Paleoclimatology and Ancient Environments*. Ed. by Vivien Gornitz. Dordrecht: Springer Netherlands, pp. 211–213. ISBN: 978-1-4020-4411-3. DOI: 10.1007/978-1-4020-4411-3\_50. URL: [https://doi.org/10.1007/978-1-4020-4411-3\\_50](https://doi.org/10.1007/978-1-4020-4411-3_50).
- Bhandari, N. et al. (1970). “Vertical structure of the troposphere as revealed by radioactive tracer studies”. In: *Journal of Geophysical Research* 75.15, pp. 2974–2980. DOI: 10.1029/jc075i015p02974.
- Błażej, Sylwia and Jerzy W. Mietelski (2014). “Cosmogenic  $^{22}\text{Na}$ ,  $^7\text{Be}$  and terrestrial  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$  radionuclides in ground level air samples collected weekly in Kraków (Poland) over years 2003-2006”. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 300.2, pp. 747–756. ISSN: 15882780. DOI: 10.1007/s10967-014-3049-6.

- Bourcier, L. et al. (2010). “Experimental evidence of biomass burning as a source of atmospheric  $^{137}\text{Cs}$ , puy de Dôme (1465 m a.s.l.), France”. In: *Atmospheric Environment* 44.19, pp. 2280–2286. ISSN: 13522310. DOI: 10.1016/j.atmosenv.2010.04.017.
- Brown, D.A. et al. (2018). “ENDF/B-VIII.0: The 8th Major Release of the Nuclear Reaction Data Library with CIELO-project Cross Sections, New Standards and Thermal Scattering Data”. In: *Nuclear Data Sheets* 148. Special Issue on Nuclear Reaction Data, pp. 1–142. ISSN: 0090-3752. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nds.2018.02.001>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0090375218300206>.
- Brown’, Louis et al. (1989). “Atmospheric deposition of  $^7\text{Be}$  and  $^9\text{Be}$ ”. In: *Geochimica et Cosmochimica Acta* 53, pp. 135–142. URL: [https://ac.els-cdn.com/0016703789902809/1-s2.0-0016703789902809-main.pdf?\\_tid=6f535146-b40f-4f2f-8aab-f89aba7c9c17&acdnat=1549018447\\_01d7185d3a5ac3ddf1a7280a45a7ef7c](https://ac.els-cdn.com/0016703789902809/1-s2.0-0016703789902809-main.pdf?_tid=6f535146-b40f-4f2f-8aab-f89aba7c9c17&acdnat=1549018447_01d7185d3a5ac3ddf1a7280a45a7ef7c).
- Butler, G. (1980). In: *Radioactivity in the Canadian Environment. NRCC No. 18134*. cited By 2, p. 129.
- Caggiano, R. et al. (2015). “Assessment of atmospheric trace element concentrations by lichen-bag near an oil/gas pre-treatment plant in the Agri Valley (southern Italy)”. In: *Natural Hazards and Earth System Sciences* 15.2, pp. 325–333. DOI: 10.5194/nhess-15-325-2015. URL: <https://nhess.copernicus.org/articles/15/325/2015/>.
- Cambray, R.S. et al. (1987). “Observations on radioactivity from the Chernobyl accident”. In: *Nuclear Energy* 26.2. cited By 155, pp. 77–101. URL: <https://www.scopus.com/inward/record.uri?eid=2-s2.0-0023328633&partnerID=40&md5=dd96184e92623a5d140825c4a983059e>.
- Cannizzaro, F et al. (2004). “Concentration measurements of  $^7\text{Be}$  at ground level air at Palermo, Italy—comparison with solar activity over a period of 21 years”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 72.3, pp. 259–271. ISSN: 0265-931X. DOI: [https://doi.org/10.1016/S0265-931X\(03\)00177-2](https://doi.org/10.1016/S0265-931X(03)00177-2). URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0265931X03001772>.
- Chamberlain, A. C. (1991). *Radioactive Aerosols*. Cambridge Series in Chemical Engineering. Cambridge University Press. DOI: 10.1017/CB09780511524820.
- Chino, Masamichi et al. (2011). “Preliminary Estimation of Release Amounts of  $^{131}\text{I}$  and  $^{137}\text{Cs}$  Accidentally Discharged from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant into the Atmosphere”. In: *Journal of Nuclear Science and Technology* 48.7, pp. 1129–1134. ISSN: 0022-3131. DOI: 10.3327/jnst.48.1129.
- Choi, Woo Nyun et al. (2020). “Radiological assessment on spent resin treatment facility and transportation for radioactive waste disposal”. In: *Progress in Nuclear Energy* 118. July

- 2019, p. 103125. ISSN: 01491970. DOI: 10.1016/j.pnucene.2019.103125. URL: <https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2019.103125>.
- Cocks, J. F.C. et al. (1999). “Spectroscopy of Rn, Ra and Th isotopes using multi-nucleon transfer reactions”. In: *Nuclear Physics A* 645.1, pp. 61–91. ISSN: 03759474. DOI: 10.1016/S0375-9474(98)00586-7.
- Conaway, Christopher H. et al. (2013). “Short-term variability of <sup>7</sup>Be atmospheric deposition and watershed response in a Pacific coastal stream, Monterey Bay, California, USA”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 120, pp. 94–103. ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2013.02.004. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2013.02.004>.
- Cooke, D. J. et al. (1991). “On cosmic-ray cut-off terminology”. In: *Il Nuovo Cimento C* 14.3, pp. 213–234. ISSN: 03905551. DOI: 10.1007/BF02509357.
- Cooper, C. David (2007). “Air Pollution Control Methods”. In: *Kirk-Othmer Encyclopedia of Chemical Technology*. American Cancer Society. ISBN: 9780471238966. DOI: 10.1002/0471238961.01091803181503.a01.pub2. eprint: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/0471238961.01091803181503.a01.pub2>. URL: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/0471238961.01091803181503.a01.pub2>.
- Courtier, Jane et al. (2017). “<sup>7</sup>Be and <sup>210</sup>Pb wet/dry deposition in Melbourne, Australia and the development of deployable units for radiological emergency monitoring”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 178-179, pp. 419–425. ISSN: 0265-931X. DOI: 10.1016/J.JENVRAD.2017.07.004.
- Crouch, E. A.C. (1977). “Fission-product yields from neutron-induced fission”. In: *Atomic Data and Nuclear Data Tables* 19.5, pp. 417–532. ISSN: 10902090. DOI: 10.1016/0092-640X(77)90023-7.
- Doering, Che and Riaz Akber (2008). “Beryllium-7 in near-surface air and deposition at Brisbane, Australia”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 99.3, pp. 461–467. ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2007.08.017.
- Dreicer, Mona (Dec. 1988). “Transport of <sup>131</sup>I through the grass-cow-milk pathway at a northeast US dairy following the chernobyl accident”. In: *Journal of Environmental Radioactivity - J ENVIRON RADIOACT* 7, pp. 201–207. DOI: 10.1016/0265-931X(88)90027-6.
- Dueñas, C. et al. (2011). “Gross alpha, gross beta activities and gamma emitting radionuclides composition of rainwater samples and deposition to ground”. In: *Atmospheric Envi-*

- ronment* 45.4, pp. 1015–1024. ISSN: 13522310. DOI: 10.1016/j.atmosenv.2010.10.045. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2010.10.045>.
- Dutkiewicz, V. A. and L. Husain (1985). “Stratospheric and tropospheric components of <sup>7</sup>Be in surface air.” In: *Journal of Geophysical Research* 90.D3, pp. 5783–5788. ISSN: 01480227. DOI: 10.1029/JD090iD03p05783.
- Erickson, Mitchell D and Nancy A Chieco (1997). *THE PROCEDURES MANUAL OF THE ENVIRONMENTAL MEASUREMENTS LABORATORY*.
- Fajgeli A. Belli M., Sansone U. (2007). *Combining and Reporting Analytical Results*. RSC Publishing.
- Filizok, Işık and Aysun Uğur Görgün (2019). “Atmospheric depositional characteristics of <sup>210</sup>Po, <sup>210</sup>Pb and some trace elements in İzmir, Turkey”. In: *Chemosphere* 220, pp. 468–475. ISSN: 18791298. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2018.12.150.
- Gaber, H. et al. (2017). “Seismological investigation of September 09 2016, North Korea underground nuclear test”. In: *NRIAG Journal of Astronomy and Geophysics* 6.2, pp. 278–286. ISSN: 2090-9977. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nrjag.2017.09.002>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S2090997717300809>.
- Gäggeler, H. W. (2015). “Radioactivity in the Atmosphere”. In: *Radiochimica Acta* 70-71.s1. ISSN: 0033-8230. DOI: 10.1524/ract.1995.7071.special-issue.345.
- Griender, P. K. F. (2001). *Cosmic rays at earth: Researcher’s reference, manual and data book*. Amsterdam: Elsevier. ISBN: 9780444507105.
- Grömping, A. H J et al. (1997). “Wet deposition in Germany: Long-term trends and the contribution of heavy metals”. In: *Chemosphere* 34.9-10, pp. 2227–2236. ISSN: 00456535. DOI: 10.1016/S0045-6535(97)00080-5.
- Hamill, P. et al. (1982). “An analysis of various nucleation mechanisms for sulfate particles in the stratosphere”. In: *Journal of Aerosol Science* 13.6, pp. 561–585. ISSN: 00218502. DOI: 10.1016/0021-8502(82)90021-0.
- Hasegawa, H. et al. (2007). “Mechanism of <sup>7</sup>Be scavenging from the atmosphere through precipitation in relation to seasonal variations in Rokkasho Village, Aomori Prefecture, Japan”. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 273.1, pp. 171–175. ISSN: 02365731. DOI: 10.1007/s10967-007-0731-y.
- Hernández, F. et al. (2005). “Influence of major African dust intrusions on the <sup>137</sup>Cs and <sup>40</sup>K activities in the lower atmosphere at the Island of Tenerife”. In: *Atmospheric Environment* 39.22, pp. 4111–4118. ISSN: 13522310. DOI: 10.1016/j.atmosenv.2005.03.032.

- HIDY, GEORGE M. (1984). "CHAPTER 2 - THE DYNAMICS OF SMALL PARTICLES". In: *Aerosols*. Ed. by GEORGE M. HIDY. Academic Press, pp. 17–56. ISBN: 978-0-12-347260-1. DOI: <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-347260-1.50008-8>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/B9780123472601500088>.
- IAEA *Safety Glossary* (2007). Non-serial Publications. Vienna: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. ISBN: 92-0-100707-8. URL: <https://www.iaea.org/publications/7648/iaea-safety-glossary>.
- Ioannidou, A. and C. Papastefanou (2006). "Precipitation scavenging of  $^7\text{Be}$  and  $^{137}\text{Cs}$  radionuclides in air". In: *Journal of Environmental Radioactivity* 85.1, pp. 121–136. ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2005.06.005.
- Ioannidou, A. et al. (2005). "Temporal changes of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  concentrations in surface air at temperate latitudes ( $40^\circ\text{N}$ )". In: *Applied Radiation and Isotopes* 63.2, pp. 277–284. ISSN: 0969-8043. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2005.03.010>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0969804305001156>.
- Ioannidou, Alexandra and Jussi Paatero (2014). "Activity size distribution and residence time of  $^7\text{Be}$  aerosols in the Arctic atmosphere". In: *Atmospheric Environment* 88, pp. 99–106. ISSN: 13522310. DOI: 10.1016/j.atmosenv.2013.12.046. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.12.046>.
- Israël, H and G W. Israël (Mar. 2010). "A new method of continuous measurements of Radon and Thoron in the atmosphere". In: *Tellus* 18, pp. 557–561. DOI: 10.1111/j.2153-3490.1966.tb00269.x.
- Jacobi, W. and K. André (2012). "The vertical distribution of radon  $^{222}$ , radon  $^{220}$  and their decay products in the atmosphere". In: *Journal of Geophysical Research* 68.13, pp. 3799–3814. DOI: 10.1029/jz068i013p03799.
- Jungck, Matthias H.A. et al. (2009). "Determination of radionuclide levels in rainwater using ion exchange resin and  $\gamma$ -spectrometry". In: *Journal of Environmental Radioactivity* 100.4, pp. 361–365. ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2009.01.006. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2009.01.006>.
- Karangelos, D.J. et al. (2004). "Radiological characteristics and investigation of the radioactive equilibrium in the ashes produced in lignite-fired power plants". In: *Journal of Environmental Radioactivity* 77.3, pp. 233–246. ISSN: 0265-931X. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2004.03.009>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0265931X04001080>.

- Karlsson, L. et al. (2008). “Using  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{40}\text{K}$  to identify natural Saharan dust contributions to PM<sub>10</sub> concentrations and air quality impairment in the Canary Islands”. In: *Atmospheric Environment* 42.30, pp. 7034–7042. ISSN: 13522310. DOI: 10.1016/j.atmosenv.2008.06.016.
- Kazil, J. et al. (2006). “Aerosol nucleation over oceans and the role of galactic cosmic rays”. In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 6.12, pp. 4905–4924. ISSN: 16807324. DOI: 10.5194/acp-6-4905-2006.
- Kim, K.J. et al. (2016). “Monitoring  $^7\text{Be}$  and tritium in rainwater in Daejeon, Korea and its significance”. In: *Applied Radiation and Isotopes* 109. Proceedings of the 20th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications 8–11 June 2015, Vienna, Austria, pp. 470–473. ISSN: 0969-8043. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2015.11.094>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S096980431530316X>.
- Koch, D. M. et al. (1996). “Vertical transport of tropospheric aerosols as indicated by  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in a chemical tracer model”. In: *J. Geophys. Res.* 101, pp. 18651–18666. DOI: 10.1029/96JD01176.
- Komura, K. et al. (2007). “Measurements of short-lived cosmic-ray-produced radionuclides in rainwater”. In: *Journal of Environmental Radioactivity*. ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2007.01.022.
- Kotalczyk, Gregor et al. (2019). “Monte Carlo simulations of homogeneous nucleation and particle growth in the presence of background particles”. In: *Tellus, Series B: Chemical and Physical Meteorology* 71.1, pp. 1–10. ISSN: 16000889. DOI: 10.1080/16000889.2018.1554415. URL: <https://doi.org/10.1080/16000889.2018.1554415>.
- Krämer, Martina et al. (1996). “A method to determine rainwater solutes from pH and conductivity measurements”. In: *Atmospheric Environment* 30.19, pp. 3291–3300. ISSN: 13522310. DOI: 10.1016/1352-2310(96)00070-2.
- Krien, K. et al. (1970). “Experimental investigation of the decay  $^{223}\text{Ra}$  to  $^{219}\text{Rn}$ ”. In: *Nuclear Physics, Section A* 141.1, pp. 75–96. ISSN: 03759474. DOI: 10.1016/0375-9474(70)90296-4.
- Kritz, Mark A. et al. (2008). “Air mass origins and troposphere-to-stratosphere exchange associated with mid-latitude cyclogenesis and tropopause folding inferred from  $^7\text{Be}$  measurements”. In: *Journal of Geophysical Research* 96.D9, p. 17405. ISSN: 0148-0227. DOI: 10.1029/91jd01358.



- Laakso, L. et al. (2004). “Kinetic nucleation and ions in boreal particle formation events”. In: *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions* 4.4, pp. 3911–3945. DOI: 10.5194/acpd-4-3911-2004.
- Laguionie, Philippe et al. (2014). “Simultaneous quantification of the contributions of dry, washout and rainout deposition to the total deposition of particle-bound  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  on an urban catchment area on a monthly scale”. In: *Journal of Aerosol Science* 77, pp. 67–84. ISSN: 18791964. DOI: 10.1016/j.jaerosci.2014.07.008. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jaerosci.2014.07.008>.
- Lal, D. et al. (1958). “On the production of radioisotopes in the atmosphere by cosmic radiation and their application to meteorology”. In: *Journal of Atmospheric and Terrestrial Physics* 12.4, pp. 306–328. ISSN: 00219169. DOI: 10.1016/0021-9169(58)90062-X.
- Le Roux, G. et al. (2016). “Chapter 3 - Inorganic Chemistry in the Mountain Critical Zone: Are the Mountain Water Towers of Contemporary Society Under Threat by Trace Contaminants?” In: *Mountain Ice and Water*. Ed. by Gregory B. Greenwood and J.F. Shroder. Vol. 21. Developments in Earth Surface Processes. Elsevier, pp. 131–154. DOI: <https://doi.org/10.1016/B978-0-444-63787-1.00003-2>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/B9780444637871000032>.
- Leppänen, Ari-Pekka et al. (2008). “Observations Of Cosmogenic [ $^7\text{Be}$ ] and [ $^{22}\text{Na}$ ] In Aerosol Samples in Northern Finland”. In: *AIP Conference Proceedings*. Vol. 1034. AIP, pp. 112–115. DOI: 10.1063/1.2991187. URL: <http://aip.scitation.org/doi/abs/10.1063/1.2991187>.
- Lindsley, William G (2016). *Filter Pore Size and Aerosol Sample Collection*.
- Lozano, R. L. et al. (2011). “Depositional fluxes and concentrations of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in bulk precipitation and aerosols at the interface of Atlantic and Mediterranean coasts in Spain”. In: *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 116.18, pp. 1–14. ISSN: 01480227. DOI: 10.1029/2011JD015675.
- Magnusson, Å et al. (2008). “ $^{14}\text{C}$  in spent ion-exchange resins and process water from nuclear reactors: A method for quantitative determination of organic and inorganic fractions”. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 275.2, pp. 261–273. ISSN: 02365731. DOI: 10.1007/s10967-007-7035-0.
- Malmqvist, Lennart et al. (1989). “Radon migration through soil and bedrock”. In: *Geoexploration* 26.2, pp. 135–144. ISSN: 00167142. DOI: 10.1016/0016-7142(89)90058-6.
- Marzo, Giuseppe A. (2014). “Atmospheric transport and deposition of radionuclides released after the Fukushima Dai-chi accident and resulting effective dose”. In: *Atmospheric En-*

- Environment* 94, pp. 709–722. ISSN: 1352-2310. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.06.009>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1352231014004555>.
- McHargue, L. R. and P. E. Damon (1991). “The global beryllium 10 cycle”. In: *Reviews of Geophysics* 29.2, pp. 141–158. ISSN: 19449208. DOI: 10.1029/91RG00072.
- McNeary, D. and M. Baskaran (2003). “Depositional characteristics of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in southeastern Michigan”. In: *Journal of Geophysical Research* 108.D7, pp. 1–15. ISSN: 0148-0227. DOI: 10.1029/2002jd003021.
- Mei, C. C. (2002). “2.7 Aerosols and coagulation”. In: *Notes on Advanced Environmental Fluid Mechanics*, pp. 1–8.
- Nachab, A. and Ph Hubert (2012). “ $^{210}\text{Pb}$  activity by detection of bremsstrahlung in  $^{210}\text{Bi}$   $\beta$ -decay”. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 274, pp. 188–190. ISSN: 0168583X. DOI: 10.1016/j.nimb.2011.11.020. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2011.11.020>.
- Nations, United (2011). *Sources and Effects of Ionizing Radiation: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: UNSCEAR 2008 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes*. United Nations.
- Olawoyin, Richard et al. (2018). “Index analysis and human health risk model application for evaluating ambient air-heavy metal contamination in Chemical Valley Sarnia”. In: *Ecotoxicology and Environmental Safety* 148, pp. 72–81. ISSN: 0147-6513. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2017.09.069>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0147651317306693>.
- Owens, Alan (1989). “A COMPARISON OF EMPIRICAL AND SEMIEMPIRICAL EFFICIENCY CALCULATIONS FOR Ge DETECTORS”. In: 274, pp. 297–304.
- Paliouris, G. et al. (1995). “Fire as an agent in redistributing fallout  $^{137}\text{Cs}$  in the Canadian boreal forest”. In: *Science of the Total Environment* 160-161.C, pp. 153–166. ISSN: 00489697. DOI: 10.1016/0048-9697(95)04353-3.
- Papandreou, Sotiria M.A. et al. (2011). “Monitoring of  $^7\text{Be}$  atmospheric activity concentration using short term measurements”. In: *Nuclear Technology and Radiation Protection* 26.2, pp. 101–109. ISSN: 14513994. DOI: 10.2298/NTRP1102101P.
- Papastefanou, C. (2011). *Radioactive Aerosols. Radioactivity in the Environment*. Elsevier Science. ISBN: 9780080555980. URL: <https://books.google.gr/books?id=kKtr7CH9kvMC>.

- Papastefanou, C. and A. Ioannidou (1995). “Aerodynamic size association of  $^7\text{Be}$  in ambient aerosols”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 26.3, pp. 273–282. ISSN: 0265-931X. DOI: [https://doi.org/10.1016/0265-931X\(94\)00011-K](https://doi.org/10.1016/0265-931X(94)00011-K). URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0265931X9400011K>.
- Persson, Bertil R.R. and Elis Holm (2014). “ $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ , and  $^{210}\text{Po}$  in the surface air from the Arctic to Antarctica”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 138, pp. 364–374. ISSN: 18791700. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2014.01.008. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2014.01.008>.
- Petropoulos, N.P et al. (2001). “Geographical mapping and associated fractal analysis of the long-lived Chernobyl fallout radionuclides in Greece”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 53.1, pp. 59–66. ISSN: 0265-931X. DOI: [https://doi.org/10.1016/S0265-931X\(00\)00111-9](https://doi.org/10.1016/S0265-931X(00)00111-9). URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0265931X00001119>.
- Pham, Mai K. et al. (2013). “Dry and wet deposition of  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in Monaco air during 1998-2010: Seasonal variations of deposition fluxes”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 120, pp. 45–57. ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2012.12.007. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2012.12.007>.
- Phillips, Tony et al. (2016). “Space Weather Ballooning”. In: *Space Weather* 14.10, pp. 697–703. ISSN: 15427390. DOI: 10.1002/2016SW001410.
- Pröhl, Gerhard et al. (2012). “Chapter 7 - Radiological Consequences Modelling”. In: *Tropical Radioecology*. Ed. by John R. Twining. Vol. 18. Radioactivity in the Environment. Elsevier, pp. 281–342. DOI: <https://doi.org/10.1016/B978-0-08-045016-2.00007-2>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/B9780080450162000072>.
- Raisbeck, G. M. et al. (1981). “Cosmogenic  $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$  as a probe of atmospheric transport processes”. In: *Geophysical Research Letters* 8.9, pp. 1015–1018. DOI: 10.1029/GL008i009p01015. eprint: <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1029/GL008i009p01015>. URL: <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/GL008i009p01015>.
- Roupsard, Pierre and Pôle RadioProtection-ENVironnement (2013). “Etude phénoménologique du dépôt sec d’aérosols en milieu urbain”. PhD thesis. Ph. D Thesis. University of Rouen.
- Saha, Gopal B. (2006). “Gas-Filled Detectors”. In: *Physics and Radiobiology of Nuclear Medicine*. New York, NY: Springer New York, pp. 71–80. ISBN: 978-0-387-36281-6. DOI:

- 10.1007/978-0-387-36281-6\_7. URL: [https://doi.org/10.1007/978-0-387-36281-6\\_7](https://doi.org/10.1007/978-0-387-36281-6_7).
- Savva, M. I. et al. (2018). “Determination of  $^7\text{Be}$  and  $^{22}\text{Na}$  activity in air and rainwater samples by gamma-ray spectrometry”. In: *Applied Radiation and Isotopes* 134. March 2017, pp. 466–469. ISSN: 18729800. DOI: 10.1016/j.apradiso.2017.07.015. URL: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2017.07.015>.
- Savva, Marilia and Marios Anagnostakis (2016). “Experimentally validated Monte Carlo simulation of an XtRa-NaI(Tl) Compton Suppression System response”. In: *Applied Radiation and Isotopes* 109. Proceedings of the 20th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications 8–11 June 2015, Vienna, Austria, pp. 555–557. ISSN: 0969-8043. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2015.11.046>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S096980431530261X>.
- Savva, M.I. et al. (2014). “Installation and performance testing of an XtRa – NaI(Tl) Compton Suppression System at the NED-NTUA”. In: *Applied Radiation and Isotopes* 87. Proceedings of the 19th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications 17–21 June 2013, Antwerp, Belgium, pp. 361–364. ISSN: 0969-8043. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.11.056>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0969804313005022>.
- Schery, S. D. and S. Huang (2004). “An estimate of the global distribution of radon emissions from the ocean”. In: *Geophysical Research Letters* 31.19, pp. 1–4. ISSN: 00948276. DOI: 10.1029/2004GL021051.
- “Scintillation Spectrometry” (2008). In: *Practical Gamma-Ray Spectrometry*. John Wiley & Sons, Ltd. Chap. 10, pp. 205–219. ISBN: 9780470861981. DOI: 10.1002/9780470861981.ch10. eprint: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/9780470861981.ch10>. URL: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/9780470861981.ch10>.
- Singh, Jag J. et al. (1998). “Nuclear Instruments and Methods in Physics Research”. In: 279, pp. 537–545. ISSN: 0168583X. DOI: 10.1016/j.nimb.2011.03.010.
- Smith, D.W. and G.C. Bowes (1974). “LOSS OF SOME ELEMENTS IN FLY ASH DURING OLD-FIELD BURNS IN SOUTHERN ONTARIO”. In:
- Štok, Marko et al. (2016). “ $^{210}\text{Bi}$  - from interference to advantage in  $^{210}\text{Pb}$  determination with liquid scintillation counter”. In: *Applied Radiation and Isotopes* 109, pp. 296–300. ISSN: 18729800. DOI: 10.1016/j.apradiso.2015.12.049.
- Svensmark, Henrik et al. (2007). “Experimental evidence for the role of ions in particle nucleation under atmospheric conditions”. In: *Proceedings of the Royal Society A: Math-*

- ematical, Physical and Engineering Sciences* 463.2078, pp. 385–396. ISSN: 14712946. DOI: 10.1098/rspa.2006.1773.
- Sýkora, I. and P.P. Povinec (2020). “Natural and anthropogenic radionuclides on aerosols in Bratislava air”. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 325.1. cited By 2, pp. 245–252. DOI: 10.1007/s10967-020-07219-0. URL: <https://www.scopus.com/inward/record.uri?eid=2-s2.0-85085322135&doi=10.1007%2fs10967-020-07219-0&partnerID=40&md5=bc3e8e8cb2e384d034f0c1243f36c768>.
- Tanner, AB (1964). “Radon migration in the ground, a review, the natural radiation environment”. In: *Symposium Proceedings (Chicago, Ill: University of Chicago Press)*.
- Turekian, Karl K. and J. Laurence Kulp (1956). “The geochemistry of strontium”. In: *Geochimica et Cosmochimica Acta* 10.5-6, pp. 245–296. ISSN: 00167037. DOI: 10.1016/0016-7037(56)90015-1.
- Ukaegbu, Ikechukwu and Kelum Gamage (May 2018). “A Model for Remote Depth Estimation of Buried Radioactive Wastes Using CdZnTe Detector”. In: *Sensors* 18, p. 1612. DOI: 10.3390/s18051612.
- UNSCEAR (2000). *Sources and Effects of Ionizing Radiation*. Tech. rep. 1, p. 659.
- Vargas, A. et al. (2016). “Dry deposition velocity of <sup>137</sup>Cs and <sup>134</sup>Cs in Spain after the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant accident”. In: *Applied Radiation and Isotopes* 109, pp. 441–443. ISSN: 18729800. DOI: 10.1016/j.apradiso.2015.11.079. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2015.11.079>.
- Velinov, P. I.Y. et al. (2009). “Model for induced ionization by galactic cosmic rays in the Earth atmosphere and ionosphere”. In: *Advances in Space Research* 44.9, pp. 1002–1007. ISSN: 02731177. DOI: 10.1016/j.asr.2009.06.006. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.asr.2009.06.006>.
- Vohra, K. G. et al. (1966). “A study of the mechanism of formation of radon daughter aerosols”. In: *Tellus* 18.2-3, pp. 672–678. ISSN: 0040-2826. DOI: 10.3402/tellusa.v18i2-3.9200.
- Wagner, P. E. (1982). “Aerosol Growth by Condensation”. In: *Aerosol Microphysics II: Chemical Physics of Microparticles*. Ed. by William H. Marlow. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, pp. 129–178. ISBN: 978-3-642-81805-9. DOI: 10.1007/978-3-642-81805-9\_5. URL: [https://doi.org/10.1007/978-3-642-81805-9\\_5](https://doi.org/10.1007/978-3-642-81805-9_5).
- Walton, G. N. (1961). “Nuclear fission”. In: *Q. Rev. Chem. Soc.* 15 (1), pp. 71–98. DOI: 10.1039/QR9611500071. URL: <http://dx.doi.org/10.1039/QR9611500071>.

- Whitby, Evan R. and Peter H. McMurry (1997). “Modal aerosol dynamics modeling”. In: *Aerosol Science and Technology* 27.6, pp. 673–688. ISSN: 15217388. DOI: 10.1080/02786829708965504.
- Yang, Jinmin et al. (2019). “Modeling of radon exhalation from soil influenced by environmental parameters”. In: *Science of the Total Environment* 656, pp. 1304–1311. ISSN: 18791026. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2018.11.464. URL: <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.11.464>.
- Young, J. A. et al. (2008). “Cosmogenic radionuclide production rates in the atmosphere”. In: *Journal of Geophysical Research* 75.12, pp. 2385–2390. DOI: 10.1029/jc075i012p02385.
- Zafeiris, Anna and Tamás Vicsek (2003). “Observations and Measurements”. In: *Encyclopedia of Atmospheric Sciences*. Vol. 1, p. 53. ISBN: 9780123822253. DOI: 10.1007/978-3-319-70483-8\_3. URL: [http://link.springer.com/10.1007/978-3-319-70483-8\\_{\\_}3](http://link.springer.com/10.1007/978-3-319-70483-8_{_}3).
- Zhang, Weihua et al. (2014). “A gamma-gamma coincidence/anticoincidence spectrometer for low-level cosmogenic  $^{22}\text{Na}/^{7}\text{Be}$  activity ratio measurement”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 130, pp. 1–6. ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2013.12.018. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2013.12.018>.
- Zhang, Weihua et al. (2018). “The development of a digital gamma-gamma coincidence/anticoincidence spectrometer and its applications to monitor low-level atmospheric  $^{22}\text{Na}/^{7}\text{Be}$  activity ratios in Resolute Bay, Canada”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 192. July, pp. 434–439. ISSN: 18791700. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2018.07.022. URL: <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.07.022>.