

ΕΘΝΙΚΟ ΜΕΤΣΟΒΙΟ ΠΟΛΥΕΧΝΕΙΟ ΣΧΟΛΗ ΜΗΧΑΝΟΛΟΓΩΝ ΜΗΧΑΝΙΚΩΝ ΤΟΜΕΑΣ ΠΥΡΗΝΙΚΗΣ ΤΕΧΝΟΛΟΓΙΑΣ

Διερεύνηση της διακύμανσης της ενεργότητας και κατανομής μεγέθους ραδιενεργών ιχνηθετών στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα

Διδακτορική Διατριβή

Δαλάκα Αικατερίνης

Διπλωματούχου Μηχανολόγου Μηχανικού, Ε.Μ.Π.

Επιβλέπων καθηγητής: Μάριος Ι. Αναγνωστάκης Καθηγητής Ε.Μ.Π.

Αθήνα, Φεβρουάριος 2023



ΕΘΝΙΚΟ ΜΕΤΣΟΒΙΟ ΠΟΛΥΕΧΝΕΙΟ ΣΧΟΛΗ ΜΗΧΑΝΟΛΟΓΩΝ ΜΗΧΑΝΙΚΩΝ ΤΟΜΕΑΣ ΠΥΡΗΝΙΚΗΣ ΤΕΧΝΟΛΟΓΙΑΣ

Διερεύνηση της διακύμανσης της ενεργότητας και κατανομής μεγέθους ραδιενεργών ιχνηθετών στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα

Διδακτορική Διατριβή

Δαλάκα Αικατερίνης

Διπλωματούχου Μηχανολόγου Μηχανικού, Ε.Μ.Π.

Τριμελής Συμβουλευτική Επιτροπή	Επταμελής Εξεταστική Επιτροπή
1. Μ.Ι. Αναγνωστάκης Καθηγητης Ε.Μ.Π. (Επιβλέπων)	1. Μ.Ι. Αναγνωστάκης Καθηγητης Ε.Μ.Π. (Επιβλέπων)
2. Κ. Ελευθεριάδης Ερευνητής Α', ΕΚΕΦΕ - "ΔΗΜΟΚΡΙΤΟΣ"	2. Κ. Ελευθεριάδης Ερευνητής Α', ΕΚΕΦΕ - "ΔΗΜΟΚΡΙΤΟΣ"
3. Ν.Π. Πετρόπουλος Επ. Καθηγητής Ε.Μ.Π.	3. Ν.Π. Πετρόπουλος Επ. Καθηγητής Ε.Μ.Π.
	4. Ιωαννίδου Αλεξάνδρα Καθηγήτρια ΑΠΘ
	5. Κλούβας Αλέξανδρος Καθηγητής ΑΠΘ
	6. Ρούνη Παναγιώτα Λέκτορας ΕΜΠ
	7. Σταματελάτος Ίων Ερευνητής Α', ΕΚΕΦΕ - "ΔΗΜΟΚΡΙΤΟΣ"

Αθήνα, Φεβρουάριος 2023

«Η Έγκριση της διδακτορικής διατριβής από την ανώτατη σχολή Μηχανολόγων Μηχανικών του Εθνικού Μετσοβίου Πολυτεχνείου δεν υποδηλώνει αποδοχή των γνωμών του συγγραφέα (Ν. 5343/1932, Άρθρο 202)»

Πρόλογος

Η παρούσα Διδακτορική Διατριβή βασίζεται στην ανάλυση περιβαλλοντικών δειγμάτων και συγκεκριμένα δειγμάτων ατμοσφαιρικού αερολύματος όπως αυτά συλλέχθηκαν από τον σταθμό μέτρησης ποιότητας ατμοσφαιρικού αερολύματος του Εργαστηρίου Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος», με στόχο τον προσδιορισμό των περιεχόμενων σε αυτά ραδιενεργών ισοτόπων. Για τον προσδιορισμό των ραδιενεργών ισοτόπων εφαρμόσθηκαν φασματοσκοπικές τεχνικές – κυρίως τεχνικές γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης.

Από τα αποτελέσματα των αναλύσεων προέκυψαν σημαντικά συμπεράσματα σχετικά με την κατανομή των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος, με την προτίμηση ισοτόπων στο να επικάθονται σε ορισμένο εύρος μεγεθών αιωρούμενων σωματιδίων αλλά και με την κίνηση αερίων μαζών. Ακόμα, μελετήθηκε η επίδραση διάφορων περιβαλλοντικών παραμέτρων (θερμοκρασία, σχετική υγρασία, ατμοσφαιρική πίεση κλπ) στα σωματίδια του ατμοσφαιρικού αερολύματος. Τέλος μελετήθηκαν και τα ισότοπα τα οποία εκπέμπονται στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα στις περιπτώσεις καύσης βιομάζας και μεταφοράς αφρικανικής σκόνης και εξετάσθηκε το ενδεχόμενο ύπαρξης ισοτόπωνιχνηθετών τέτοιου είδους διεργασιών. Παράλληλα υπό μορφή ανάλυσης συγκεκριμένων περιπτώσεων μελετήθηκαν και οι εκπομπές ισοτόπων που σχετίζονται με ραδιολογικά ατυχήματα και δοκιμάσθηκε να ερμηνευτεί η όποια διακύμανση εμφανίστηκε στις συγκεντρώσεις τους.

Η παρούσα Διδακτορική Διατριβή (Δ.Δ.) εκπονήθηκε στο Εργαστήριο Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος του Ινστιτούτου Πυρηνικών & Ραδιολογικών Επιστημών & Τεχνολογίας, Ενέργειας & Ασφάλειας¹ του Ε.Κ.Ε.Φ.Ε. «Δημόκριτος», σε συνεργασία με τον Τομέα Πυρηνικής Τεχνολογίας του Εθνικού Μετσοβίου Πολυτεχνείου.

Θα ήθελα, με την ολοκλήρωση της διατριβής αυτής να εκφράσω τις θερμότερες ευχαριστίες μου στους επιβλέποντες καθηγητές μου και συγκεκριμένα:

Στον Καθηγητή κ. **Μ.Ι. Αναγνωστάκη**, για την διαρκή καθοδήγησή του και τις πολύτιμες συμβουλές του καθ' όλη τη διάρκεια εκπόνησης της διατριβής.

Στον Επίκουρο Καθηγητή κ. **Ν.Π. Πετρόπουλο**, για τη υποστήριξή του καθ' όλη την διάρκεια της έρευνάς μου.

Ιδιαίτερες ευχαριστίες θα ήθελα να εκφράσω προς τον ερευνητή του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος» **Δρ. Κ. Ελευθεριάδη** για την βοήθεια του στη σχεδίαση της ερευνητικής εργασίας, τη συνεχή καθοδήγηση του, την εμπιστοσύνη του προς το πρόσωπο μου και κυρίως για την συμπαράστασή του τόσο σε ερευνητικό όσο και σε προσωπικό επίπεδο.

Για την εκπόνηση της παρούσας Δ.Δ. έλαβα οικονομική ενίσχυση για τέσσερα έτη από τον Ε.Λ.Κ.Ε. Ε.Μ.Π. υπό μορφή υποτροφίας. Ευχαριστώ τα μέλη της τριμελούς συμβουλευτικής επιτροπής που εισηγήθηκαν θετικά και που μου παρείχαν τις απαιτούμενες υποδομές για τις ανάγκες της παρούσας Διδακτορικής Διατριβής.

Να ευχαριστήσω επίσης θερμά και όλα τα μέλη της επταμελούς εξεταστικής επιτροπής, για την αποδοχή τους να συμμετάσχουν σε αυτήν, για τις εύστοχες παρατηρήσεις τους και τις πολύτιμες συμβουλές τους.

¹ IПРЕТЕА

Ξεχωριστά αισθάνομαι την ανάγκη να ευχαριστήσω τους Δρ. Βασιλάτου, Δρ. Κουμπούρα, την υποψήφια διδάκτορα κ. Μαυροκεφάλου και την Δρ. Γκίνη, για τη βοήθειά τους τόσο σε επιστημονικό επίπεδο όσο και την υποστήριξη.

Θερμά ευχαριστώ τον Δρ. Μανούσακα και την Δρ. Καλογρίδη για την υποστήριξή τους στις αγωνίες μου που μοιραστήκαμε κατά τη διάρκεια εκπόνησης της διατριβής.

Επίσης, θα ήθελα να ευχαριστήσω συνολικά όλα τα μέλη του Εργαστηρίου Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος για τη βοήθεια τους και το ευχάριστο κλίμα συνεργασίας όλα αυτά τα χρόνια.

Ξεχωριστά θα ήθελα να ευχαριστήσω και όλα τα μέλη του τομέα Πυρηνικής Τεχνολογίας του Ε.Μ.Π. για την άριστη συνεργασία όποτε ζητήθηκε και για το υπέροχο κλίμα.

Ξεχωριστά ένα ιδιαίτερο ευχαριστώ οφείλω στους υποψήφιους διδάκτορες του τομέα Πυρηνικής Τεχνολογίας του ΕΜΠ Ηλέκτρα Πουλοπούλου και Ιάσονα Μήτσιο για τις υπέροχες στιγμές αλληλοσυμπαράστασης που μοιραστήκαμε.

Τέλος, ένα μεγάλο ευχαριστώ το οφείλω στην οικογένειά μου, στους γονείς, τα αδέλφια και τον σύζυγό μου, που ήταν πάντα δίπλα μου σε όλες τις επιλογές μου, στηρίζοντάς με σε κάθε μου βήμα. Τίποτε δεν θα ήταν εφικτό χωρίς την διαρκή τους παρουσία στη ζωή μου...

Αθήνα, Φεβρουάριος 2023

Δαλάκα Αικατερίνη

Περιεχομενα

Κεφάλαιο 1 Κεφάλαιο 2 Ιδιότητες, φυσική και κινητική του αερολύματος – αρχές δειγματοληψίας αερολυμάτων 2.1 Εισαγωγή......2.1 2.2 Βασικοί ορισμοί σχετικοί με το ατμοσφαιρικό αερόλυμα 2.2.1 Γενικά για το αερόλυμα......2.1 2.2.2 Φυσικές ιδιότητες των Αιωρούμενων Σωματιδίων......2.5 2.2.3 Επιπτώσεις Αιωρούμενων Σωματιδίων στο περιβάλλον και στην υγεία του ανθρώπου.....2.11 2.2.3.1 Επιπτώσεις Αιωρούμενων Σωματιδίων στην υγεία του ανθρώπου......2.12 2.2.3.2 Επιπτώσεις Αιωρούμενων Σωματιδίων στο περιβάλλον......2.12 2.3 Κατανομές μεγεθών των Αιωρούμενων Σωματιδίων......2.13 2.3.2 Λογαριθμοκανονική κατανομή μεγεθών των Αιωρούμενων Σωματιδίων.....2.15 2.4 Ιδιότητες και κινητική του ατμοσφαιρικού αερολύματος......2.15 2.4.1 Αριθμός Reynolds......2.16 2.4.3 Αριθμός Stokes......2.18 2.4.4 Το φαινόμενο Kelvin......2.19 2.4.5 Δυνάμεις εντός του αερολύματος......2.19 2.4.5.2 Δυνάμεις αποκόλλησης.....2.20

2.4.5.3 Οπισθέλκουσα – drag force2.20
2.4.6 Αναπήδηση σωματιδίων (bouncing effect)2.21
2.4.7 Κίνηση σωματιδίων μέσα σε αέρια2.21
2.4.7.1 Κίνηση λόγω διάχυσης (κίνηση Brown)
2.4.7.2 Ταχύτητα κατακρήμνισης2.22
2.5 Αρχές δειγματοληψίας ατμοσφαιρικού αερολύματος2.23
2.5.1 Δειγματολήπτες ατμοσφαιρικού αερολύματος
2.5.2 Φίλτρα συλλογής ΑΣ2.32
2.5.2.1 Κατηγοριοποίηση φίλτρων βάσει του υλικού και του τρόπου κατασκευής τους2.32
2.5.2.2 Κατηγοριοποίηση φίλτρων βάσει του μεγέθους της ίνας2.33
2.5.2.3 Κατηγοριοποίηση φίλτρων βάσει του πορώδους τους2.35
2.5.3 Τελική επιλογή φίλτρου2.36
2.5.4 Συνοψίζοντας2.37

Μεθοδολογία δειγματοληψίας και ανάλυσης δειγμάτων ραδιενεργού ατμοσφαιρικού αερολύματος

3.1 Εισαγωγή3.1
 3.2 Ο σταθμός μέτρησης ποιότητας ατμοσφαιρικού αερολύματος Εργαστηρίου Ραδιενέργειας περιβάλλοντος – ΕΚΕΦΕ – «Δ»
3.3 Δειγματολήπτες πρόσκρουσης πολλαπλών σταδίων (Cascade Impactors)3.2
3.3.1 Ο δειγματολήπτης πρόσκρουσης υψηλού όγκου Andersen high volume series GS23103.4
3.4 Προετοιμασία φίλτρων για δειγματοληψία3.7
3.5 Πρωτόκολλα δειγματοληψίας3.10
3.6 Συλλογή φίλτρων και προετοιμασία δειγμάτων για ανάλυση3.11
3.7 Ισότοπα ενδιαφέροντος3.13
3.7.1 Το ισότοπο κοσμικής προέλευσης ⁷ Be3.13

3	3.7.1.1 Παραγωγή του ισοτόπου ⁷ Be								3.13
3 8	3.7.1.2 διεργασι	Χρήση ών	του	ισοτόπου	⁷ Be	ως	ιχνηθέτη	ατμοσ	φαιρικών 3.14
e e	3.7.1.3 Χ ΑΣ και έκ	ρήση του πλυσης τ	ισοτό ης ατμ	που ⁷ Be σε όσφαιρας	μελέτ	ες υγι	ρής εναπόθ	εσης ατ	ιόπλυσης 3.15
3	3.7.1.4 Ν στα διάφ	Λελέτη τι ορα κλάα	ης κατα σματα τ	ανομής μεγ του ατμοσφ	έθους αιρικο	ΑΣ με ύ αερ	έσω της κα ολύματος	τανομήα	ς του ⁷ Be 3.16
3 8	3.5.1.5 Χρήση του ισοτόπου ⁷ Βe ως ιχνηθέτη στη μελέτη της επογ διακύμανσης ατμοσφαιρικών μεταβλητών								εποχικής 3.16
: 8	3.7.1.6 δραστηρ	Χρήση ιότητας	του	ισοτόπου	⁷ Be	ως	ιχνηθέτη	της	ηλιακής 3.18
E	3.7.1.7 Χ _Ι κατακόρι	ρήση του υφων ενο	ισοτό ιλλαγώ	που ⁷ Be ως νν στα ατμοσ	ιχνηθέ σφαιρι	έτη τη κά στι	ς κίνησης ο ρώματα	ιερίων μ	ιαζών και 3.20
3	3.7.1.8 Σι	υσχέτιση	του ισ	οτόπου ⁷ Be	με άλλ	ια ισό	τοπα		3.22
3.8 γ- φασματοσ	σκοπική ο	ανάλυση ά	δειγμά	των αερολύ	ματος				3.25

Προσδιορισμός ραδιενεργών ισοτόπων στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα

4.1 Εισαγωγή4.1
4.2 Η μέθοδος της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης4.1
4.2.1 Φασματοσκοπία ακτίνων-γ4.1
4.2.2 Ανιχνευτική διάταξη γ-φασματοσκοπίας4.2
4.3 Ανιχνευτικές διατάξεις που χρησιμοποιήθηκαν στη Διατριβή4.4
4.3.1 Ανιχνευτικές διατάξεις Εργαστηρίου Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος»4.4
4.3.1.1 Διάταξη ανιχνευτή HPGe σχετικής απόδοσης 91.5% του Ε.Ρ.Π. «Δ» 4.4
4.3.1.2 Διάταξη ανιχνευτή HPGe σχετικής απόδοσης 29.5% του Ε.Ρ.Π «Δ»4.4
4.3.1.3 Διάταξη ανιχνευτή υπερκάθαρου γερμανίου τύπου φρέατος (Well- type HPGe) σχετικής απόδοσης 20% του Ε.Ρ.Π«Δ»Δ
4.3.2 Ανιχνευτικές διατάξεις του Εργαστηρίου Πυρηνικής Τεχνολογίας του Εθνικού Μετσοβίου Πολυτεχνείου4.6

4.3.2.1 Διάταξη ανιχνευτή HPGe σχετικής απόδοσης 40% του Ε.Π.Τ Ε.Μ.Π4.6
4.3.2.2 Διάταξη ανιχνευτή HPGe σχετικής απόδοσης 33.8% του Ε.Π.Τ Ε.Μ.Π4.7
4.4 Βαθμονόμηση ανιχνευτών γερμανίου4.8
4.4.1 Ενεργειακή Βαθμονόμηση4.8
4.4.2 Βαθμονόμηση ενεργειακής διακριτικής ικανότητας της ανιχνευτικής διάταξης4.9
4.4.3 Βαθμονόμηση απόδοσης της ανιχνευτικής διάταξης
4.5 Προσδιορισμός καμπύλης βαθμονόμησης απόδοσης μέσω προσομοίωσης4.15
4.5.1 Μέθοδος προσομοίωσης με τεχνικές Monte Carlo
4.5.2 Ο κώδικας PENELOPE 20114.17
4.5.3 Αρχεία εισόδου κώδικα ΡΕΝΜΑΙΝ4.19
4.5.3.1 Αρχείο τύπου .in4.19
4.5.3.2 Αρχείο τύπου .geo4.19
4.5.3.3 Αρχείο τύπου .mat4.20
4.5.4 Γραφικά προγράμματα GVIEW2D και GVIEW3D4.20
4.5.5 Εικονικοί ανιχνευτές στον κώδικα PENMAIN4.21
4.5.6 Αρχεία εξόδου κώδικα PENMAIN4.22
4.5.7 Υπολογισμός της απόδοσης φωτοκορυφής μέσω προσομοίωσης με τον κώδικα PENMAIN4.23
4.5.7.1 Υπολογισμός της απόδοσης φωτοκορυφής
4.5.7.2 Υπολογισμός της ολικής απόδοσης του ανιχνευτή4.25
4.7 Στατιστική επεξεργασία και προσδιορισμός των επιπέδων ανίχνευσης μίας γ- φασματοσκοπικής ανιχνευτικής διάταξης4.25
4.7.1 Υπολογισμός αβεβαιοτήτων4.26
4.7.2 Στατιστικός έλεγχος, U-test4.27
4.7.3 Κατώτερα όρια ανίχνευσης μίας διάταξης4.27
4.7.4 Ελάχιστη ανιχνεύσιμη ραδιενέργεια4.29

Βαθμονόμηση απόδοσης των γ-φασματοσκοπικών διατάξεων
5.1 Εισαγωγή
5.2 Προσδιορισμός της απόδοσης φωτοκορυφής μέσω προσομοίωσης
5.2.1 Προσδιορισμός του γεωμετρικού μοντέλου της γ-ανιχνευτικής διάταξης
5.3 Βαθμονόμηση της απόδοσης ανιχνευτών υπερκάθαρου γερμανίου με χρήση τεχνικών Monte Carlo και τον κώδικα PENELOPE5.5
5.3.1 Βαθμονόμηση των ανιχνευτών ΗΡGe του ΕΡΠ-«Δ»
5.3.1.1 Βαθμονόμηση του ανιχνευτή HPGe του ΕΡΠ-«Δ», με σχετική απόδοση 91.5%5.5
5.3.1.1.1 Αρχικές διαστάσεις του ανιχνευτή HPGe(α)5.6
5.3.1.1.2 Εκτίμηση του γεωμετρικού μοντέλου με πηγή όγκου5.7
5.3.1.1.3 Καμπύλες βαθμονόμησης απόδοσης του ανιχνευτή5.9
5.3.1.1.4 Συντελεστές διόρθωσης για το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης5.13
5.3.1.1.5 Υπολογισμός συντελεστών διόρθωσης για το φαινόμενοτης πραγματικής σύμπτωσης
5.3.1.1.6 Προσδιορισμός καμπύλης απόδοσης για τις γεωμετρίες ανάλυσης φίλτρων5.16
5.3.1.2 Βαθμονόμηση ανιχνευτή HPGe του ΕΡΠ - «Δ», με σχετική απόδοση 29.5%
5.3.1.2.1 Εκτίμηση των διαστάσεων του ανιχνευτή HPGe (β)5.19
5.3.1.2.2 Εκτίμηση του γεωμετρικού μοντέλου του ανιχνευτή με πηγή όγκου5.21
5.3.1.2.3 Καμπύλες Βαθμονόμησης απόδοσης του ανιχνευτή5.23
5.3.1.2.4 Βαθμονόμηση απόδοσης του ανιχνευτή HPGe (β) για τις γεωμετρίες φίλτρου5.25
5.3.1.3 Βαθμονόμηση ανιχνευτή τύπου φρέατος (Well-type) HPGe του ΕΡΠ - «Δ»
5.3.1.3.1 Εκτίμηση γεωμετρικού μοντέλου με χρήση πηγών όγκου
5.3.1.3.2 Προσδιορισμός τελικών διαστάσεων ανιχνευτή5.35
5.3.1.3.3 Βαθμονόμηση απόδοσης ανιχνευτή – καμπύλες βαθμονόμησης5.37

Κεφάλαιο 6

Συσχέτιση της ενεργότητας ραδιενεργών ισοτόπων του ατμοσφαιρικού αερολύματος με μετεωρολογικές παραμέτρους και άλλα φαινόμενα

6.1 Εισαγωγή6.1
6.2 Ανάλυση κύμανσης της ενεργότητας του ⁷ Be6.2
6.2.1 Εποχική κύμανση της ενεργότητας του ⁷ Be6.2
6.2.2 Κύμανση της ενεργότητας του ⁷ Βε συναρτήσει μετεωρολογικών παραμέτρων 6.4
6.2.3 Μελέτη της κατανομής μεγεθών σωματιδίων ατμοσφαιρικού αερολύματος6.10
6.2.4 Εκτίμηση του χρόνου παραμονής των ΑΣ στον αέρα μέσω της μελέτης των ατμοσφαιρικών συγκεντρώσεων του ισοτόπου ⁷ Be
6.2.5 Εποχική κύμανση της ενεργότητας ⁷ Be και της κατανομής μεγεθών ΑΣ6.13
6.2.6 Συνδυαστική ανάλυση της ενεργοτητας ⁷ Be και της Περιεκτικότητας των ΑΣ σε νερό6.16
6.3 Ανάλυση της κύμανσης της ενεργότητας ισοτόπων που συνδέονται με φαινόμενα καύσης βιομάζας6.17
6.4 Ανίχνευση ραδιενεργών ισοτόπων που σχετίζονται με ραδιολογικά ατυχήματα6.26
6.4.1 Ανάλυση δειγμάτων όπου ανιχνεύεται ¹³¹ Ι6.26
6.4.2 Ανάλυση δειγμάτων όπου ανιχνεύεται ¹⁰⁶ Ru6.31
6.5 Μελέτη της μεταφοράς αερίων μαζών με συνδυασμένη χρήση περισσότερων ραδιενεργών ιχνηθετών6.36
6.5.1 Αποτελέσματα μετρήσεων6.39
6.5.1.1 Ενεργότητα των ²¹⁰ Ρb και U κατά τη διάρκεια επεισοδίων μεταφοράς αφρικανικής σκόνης6.39
6.5.1.2 Ενεργότητα των ²¹⁰ Ρb και U σε δείγματα που δεν έχουν επηρεασθεί από φαινόμενα μεταφοράς αφρικανικής σκόνης
6.5.1.3 Ενεργότητα ραδιενεργών ιχνηθετών κατά τη διάρκεια επεισοδίων που έχουν να κάνουν με καύση βιομάζας

6.5.1.4	Συμπεράσματα	από	τις	μετρήσεις	ενεργότητας	των	²¹⁰ Po	και
²¹⁰ Pb							e	5.46

Επίλογος

7.1 Συνοπτική παρουσίαση της Διδακτορικής Διατριβής	7.1
7.2 Επιτεύγματα και σημεία πρωτοτυπίας της παρούσας Δ.Δ	7.6
7.3 Ιδέες για μελλοντική έρευνα	7.7
7.4 Δημοσιεύσεις – Ανακοινώσεις σε συνέδρια	7.8

Βιβλιογραφία

Παράρτημα

Παράρτημα Α

Βαθμονόμηση	δειγματολήπτη	πρόσκρουσης	υψηλού	όγκου	Andersen	high		
volume series GS2310								

Παράρτημα Β

Τυπικά αρχεία κώδικα PENELOPE 2011Π.	1.9
--------------------------------------	-----

Παράρτημα Γ

Πιστοποιητικά	ανιχνευτικών	διατάξεων	και	πηγών
βαθμονόμησης	••••••		•••••	П.22

Παράρτημα Δ

Φαινόμενο Πρανματικής Σύμπτωσης	П.32
+ attopero par hattaal) = opertao	

Παράρτημα Ε

Hyspiit

Παράρτημα ΣΤ

Τεχνική αντιστροφής κατανομής μεγεθών για τα στάδια του δειγματολήπτη Andersen GS2310 με χρήση του κώδικα Micron.....Π.49

Παράρτημα Ζ

Συγκεντρώσεις του ισοτόπου ¹⁰⁶ Ru από σταθμούς της Γαλλίας (IRSN information
report, 2017)	П.58

Εισαγωγή

Η παρούσα Διδακτορική Διατριβή (Δ.Δ.) εκπονήθηκε στο Εργαστήριο Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος του Εθνικού Κέντρου Φυσικών Ερευνών «ΔΗΜΟΚΡΙΤΟΣ» (ΕΡΠ) σε συνεργασία με το Εργαστήριο Πυρηνικής Τεχνολογίας του Εθνικού Μετσοβίου Πολυτεχνείου (ΕΠΤ- ΕΜΠ). Αντικείμενο της Δ.Δ. ήταν τη διερεύνηση της διακύμανσης της ενεργότητας (ειδικής ραδιενέργειας) και της κατανομής μεγέθους ραδιενεργών ιχνηθετών στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα και η συσχέτιση της διακύμανσης αυτής με διάφορα φαινόμενα, τόσο φυσικά όσο και ανθρωπογενούς προέλευσης, στην ατμόσφαιρα.

Στο περιβάλλον υπάρχει πλήθος ραδιενεργών ισοτόπων, τόσο φυσικής όσο και τεχνητής προέλευσης. Ανάλογα με την φύση τους, τα ισότοπα αυτά ενδέχεται να εκπέμπουν ακτινοβολία σωματιδιακή (α ή β) ή/και ηλεκτρομαγνητική (-γ ή και -X). Η δειγματοληψία αέρα με χρήση της κατάλληλης κάθε φορά τεχνικής και η εν συνεχεία ανάλυση με τεχνικές γ-φασματοσκοπίας, είναι μία από τις ευρέως χρησιμοποιούμενες μη καταστρεπτικές μεθόδους για την ανίχνευση και τον προσδιορισμό της ενεργότητας των ραδιενεργών ισοτόπων που βρίσκονται στην ατμόσφαιρα. Οι τιμές της ενεργότητας των ραδιενεργών ισοτόπων που ανιχνεύονται στην ατμόσφαιρα ποικίλουν, από πολύ χαμηλές (μBq·m⁻³) μέχρι και μετρίως υψηλές (Bq·m⁻³), γεγονός που τους προσδίδει και διαφορετική ραδιοβιολογική σημασία. Ανεξάρτητα από αυτό όμως από τη ραδιοβιολογική τους σημασία, η ανίχνευσή τους έχει ιδιαίτερη σημασία για μία σειρά από εφαρμογές. Μία από αυτές τις εφαρμογές που αφορά και τη συγκεκριμένη Δ.Δ. είναι η χρήση των ραδιενεργών ισοτόπων (φυσικής ή τεχνητής προέλευσης) του ατμοσφαιρικού αερολύματος ως ιχνηθέτες (tracers) σε διάφορες περιβαλλοντικές διεργασίες.

Στο **2**° **Κεφάλαιο** της Δ.Δ. παρουσιάζονται οι ιδιότητες, η φυσική και κινητική των αερολυμάτων και οι βασικές αρχές δειγματοληψίας τους, καθώς και τα χρησιμοποιούμενα μέσα (δειγματολήπτες, φίλτρα κλπ). Δίνονται βασικοί ορισμοί οι οποίοι αφορούν το ατμοσφαιρικό αερόλυμα, τα Αιωρούμενα Σωματίδια (ΑΣ), ενώ γίνεται και ταξινόμησή τους ανάλογα το μέγεθος και τη φύση τους. Παρουσιάζονται χαρακτηριστικά μεγέθη και ιδιότητες των ΑΣ, όπως η φυσική, αεροδυναμική και η ισοδύναμη κατά Stokes διάμετρος και η σημασία τους στη συμπεριφορά των σωματιδίων. Περιγράφονται οι φυσικοί νόμοι λκαι δίνονται οι βασικές εξισώσεις που διέπουν τη συμπεριφορά των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος, και παρουσιάζεται η μεθοδολογία μέσω τις οποίας, με βάση τις ιδιότητες των ΑΣ, μπορούν να πραγματοποιηθούν μελέτες κατανομής τους, μελέτες της κίνησης αερίων μαζών και μελέτες διάφορων ατμοσφαιρικών διεργασιών που μπορούν να έχουν επιπτώσεις στην υγεία του ανθρώπου αλλά και στο περιβάλλον.

Πέρα από τις εξισώσεις που αφορούν τα ΑΣ, στο 2° Κεφάλαιο μελετάται και η κινητική του ατμοσφαιρικού αερολύματος, που έχει ιδιαίτερη σημασία κατά τη δειγματοληψία του, κάτι που αποτελεί σημαντικό τμήμα της παρούσα Δ.Δ. Δίνονται βασικές πληροφορίες αναφορικά με τις αρχές δειγματοληψίας και τους δειγματολήπτες ατμοσφαιρικού αερολύματος, αλλά και των διαθέσιμων φίλτρων αέρα πάνω στα οποία συλλέγονται τα ΑΣ, και παρουσιάζονται οι αιτίες που μπορούν να δημιουργήσουν δυσκολίες ή και να εισάγουν σφάλματα κατά τη διαδικασία συλλογής αερολύματος. Ιδιαίτερη έμφαση δίνεται στους αδρανειακούς δειγματολήπτες πολλαπλών σταδίων, όπως αυτός ο οποίος χρησιμοποιείται στη παρούσα Δ.Δ. Το κεφάλαιο αυτό κλείνει με ορισμένους βασικούς κανόνες οι οποίοι πρέπει να εφαρμόζονται σε κάθε δειγματοληψία ατμοσφαιρικού αερολύματος. Οι κανόνες αυτοί έχουν να κάνουν με το εύρος μεγεθών των σωματιδίων τα οποία πρόκειται να συλλεχθούν, τη ροή, την κατεύθυνση και άλλες παραμέτρους της δειγματοληψίας.

Στο **3° Κεφάλαιο** της Δ.Δ. παρουσιάζονται οι αρχές δειγματοληψίας και ανάλυσης δειγμάτων όπως και η μεθοδολογία η οποία χρησιμοποιήθηκε στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. Αναλύεται η λειτουργία του αδρανειακού δειγματολήπτη πολλαπλών σταδίων και γίνεται λόγος για τις φυσικές αρχές που τη διέπουν. Δίνονται οι βασικοί ορισμοί που αφορούν στους δειγματολήπτες υψηλού και χαμηλού όγκου και οι λόγοι για τους οποίους ο χρήστης μπορεί να επιλέξει τον έναν ή τον άλλον δειγματολήπτη, ανάλογα με το αντικείμενο της μελέτης του. Γίνεται επίσης λόγος και για τα βασικά μεγέθη που καθοδηγούν τον ερευνητή στην επιλογή του κατάλληλου δειγματολήπτης, όπως είναι η αεροδυναμική διάμετρος αποκοπής σωματιδίων ανά στάδιο και η καμπύλη απόδοσης συλλογής ενός δειγματολήπτη.

Στη συνέχεια, στο Κεφάλαιο αυτό παρουσιάζεται ο εξοπλισμός δειγματοληψίας που χρησιμοποιήθηκε (δειγματολήπτης – φίλτρα) και αναλύονται οι λόγοι για τους οποίους δειγματολήπτης και φίλτρα κρίθηκαν κατάλληλα, βάσει του αντικειμενικού σκοπού της Δ.Δ. Επισημαίνεται ότι στα πλαίσια της Δ.Δ. εφαρμόσθηκαν δύο πρωτόκολλα δειγματοληψίας, ένα για τη συνολική συλλογή του αερολύματος και ένα για τη συλλογή και κοκκομετρική ανάλυση του αερολύματος. Στο Κεφάλαιο αυτό παρατίθενται και αναλύονται τα πρωτόκολλα δειγματοληψίας που χρησιμοποιήθηκαν στα πλαίσια της Δ.Δ. και η διαδικασία συλλογής και προετοιμασίας των φίλτρων, τόσο για τη δειγματοληψία αερολύματος, όσο και για τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση που ακολουθεί. Ακολουθεί μία παρουσίαση των ραδιενεργών ισοτόπων του ατμοσφαιρικού αερολύματος τα οποία παρουσιάζουν ενδιαφέρον στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. Το κεφάλαιο κλείνει με μία βιβλιογραφική ανασκόπηση αναφορικά με το ισότοπο ⁷Be το οποίο χρησιμοποιείται ως ένας από τους βασικούς ιχνηθέτες στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. για τη μελέτη της κίνησης των αερίων μαζών, των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος και της ρύπανσης στην ατμόσφαιρα.

Στο 4° Κεφάλαιο γίνεται λόγος για τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση των δειγμάτων που έγινε στα πλαίσια της Δ.Δ. με σκοπό την ανίχνευση και τον προσδιορισμό των ραδιενεργών ισοτόπων που χρησιμοποιούνται ως ιχνηθέτες. Γίνεται μια εκτενής βιβλιογραφική αναφορά για την γ-φαρματοσκοπική ανάλυση με ανιχνευτές γερμανίου, ιδιαίτερα για τις διατάξεις υπέρ-καθαρού γερμανίου (High Purity Germanium – HPGe) όπως αυτοί που χρησιμοποιήθηκαν στα πλαίσια της Δ.Δ. Παρουσιάζονται εκτενώς και με λεπτομέρεια οι ανιχνευτικές διατάξεις οι οποίες χρησιμοποιήθηκαν και οι οποίες είναι εγκατεστημένες τόσο στο ΕΡΠ, όσο και στο ΕΠΤ-ΕΜΠ. Συγκεκριμένα, πρόκειται για τέσσερις ανιχνευτικές διατάξεις, εκ των οποίων οι τρεις βασίζονται σε ομοαξονικούς ανιχνευτές HPGe και η σε ανιχνευτή τύπου φρέατος (well type detector). Δίνονται οι βασικοί ορισμοί της απόδοσης των ανιχνευτικών διατάξεων και παρουσιάζεται η μεθοδολογία υπολογισμού της ενεργότητας (Bg·m⁻³) των δειγμάτων που αναλύονται. Το 4° κεφάλαιο γίνεται και μία εισαγωγή στη βαθμονόμηση απόδοσης τέτοιων διατάξεων, και παρουσιάζονται με μεγάλη λεπτομέρεια οι διαδικασίες βαθμονόμησης με χρήση υπολογιστικών μεθόδων και συγκεκριμένα με τη χρήση του κώδικα προσομοίωσης Monte Carlo PENELOPE 2011. Για το σκοπό αυτό αρχικά παρουσιάζεται η αρχιτεκτονική του κώδικα και των αρχείων εισόδου, τα οποία ο χρήστης μπορεί να τροποποιεί ώστε να περιγράψει το πρόβλημα που επιθυμεί να

προσομοιώσει κάθε φορά. Ιδιαίτερος λόγος γίνεται για το πρόγραμμα χρήστη PENMAIN του κώδικα, το οποίο και χρησιμοποιήθηκε στη συγκεκριμένη εργασία για τη βαθμονόμηση των ανιχνευτικών διατάξεων γερμανίου και η μεθοδολογία υπολογισμού της απόδοσης φωτοκορυφής μέσω προσομοίωσης, με τον κώδικα PENMAIN.

Μετά την εισαγωγή στη βαθμονόμηση ανιχνευτικών ακολουθεί η εφαρμογή στο 5° Κεφάλαιο, στο οποίο παρουσιάζεται η βαθμονόμηση των ανιχνευτικών διατάξεων που χρησιμοποιήθηκαν στην Δ.Δ., με χρήση πειραματικών και κυρίως υπολογιστικών μεθόδων. Το πλεονέκτημα των υπολογιστικών μεθόδων έναντι των πειραματικών μεθόδων είναι ότι παρέχουν τη δυνατότητα προσομοίωσης πολύπλοκων γεωμετριών πηγής-ανιχνευτή και μπορούν να εξετάζονται ανεξάρτητα σενάρια που αφορούν διάφορα είδη ακτινοβολιών και σωματιδίων. Επιπλέον, η υπολογιστική προσομοίωση μπορεί να χρησιμοποιηθεί για την εκτίμηση, τόσο της απόδοσης φωτοκορυφής, όσο και της ολικής απόδοσης μίας ανιχνευτικής διάταξης, κάτι που είναι δύσκολο και συχνά αδύνατο να γίνει πειραματικά. Επισημαίνεται ότι η ολική απόδοσης είναι ένα μέγεθος απαραίτητο κατά τον υπολογισμό συντελεστών διόρθωσης για το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης (true-coincidence) το οποίο οφείλεται στην ταυτόχρονη αλληλεπίδραση με τον ανιχνευτή δύο φωτονίων τα οποία προέρχονται από τη διάσπαση του ίδιου πυρήνα. Παρόλα αυτά η χρήση υπολογιστικών προγραμμάτων προσομοίωσης παρουσιάζει και ορισμένες δυσκολίες, που έχουν να κάνουν κυρίως με τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά της ανιχνευτικής διάταξης τα οποία δεν είναι πάντα γνωστά με ακρίβεια. Ένα από αυτά τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά είναι οι νεκρές ζώνες του ανιχνευτή, που πρέπει να εκτιμώνται με συνδυασμό προσομοίωσης και πειράματος, σε μία διαδικασία που έχει επικρατήσει να ονομάζεται «χαρακτηρισμός του ανιχνευτή» (detector characterization). Το 5° Κεφάλαιο μπορεί να θεωρηθεί και ως ένα εγχειρίδιο το οποίο επιτρέπει σε όποιον το μελετήσει να κατανοήσει πλήρως τη διαδικασία και τη μεθοδολογία βαθμονόμησης ανιχνευτών γερμανίου, καθώς περιγράφονται με λεπτομέρεια τα βήματα που ακολουθήθηκαν, τόσο για το χαρακτηρισμό ορισμένων από τους ανιχνευτές που βαθμονομήθηκαν, όσο και για την ίδια τη βαθμονόμηση απόδοσης και εν τέλει την παραγωγή των καταλλήλων καμπυλών βαθμονόμησης της απόδοσης. Ιδιαίτερος λόγος γίνεται στο κεφάλαιο αυτό και για το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης, το οποίο μπορεί να εισάγει σημαντικό σφάλμα στις καμπύλες απόδοσης οι οποίες παράγονται με πειραματικές μεθόδους, ιδιαίτερα για ανιχνευτές τύπου φρέατος. Στο Κεφάλαιο αυτό παρουσιάζεται η μεθοδολογία εργασίας και τα προγράμματα που μπορούν να χρησιμοποιηθούν ώστε να εκτιμηθούν κατάλληλοι συντελεστές διόρθωσης των πειραματικών τιμών της απόδοσης. Ιδιαίτερο ενδιαφέρον έχει η μεθοδολογία βαθμονόμησης ανιχνευτή τύπου φρέατος με χρήση του κώδικα PENELOPE, όπου δίνονται αρκετές πληροφορίες και ιδέες για τη δημιουργία πηγών όγκου για τα ισότοπα ενδιαφέροντος.

Με βάση το 5° Κεφάλαιο και τη βαθμονόμηση των ανιχνευτικών διατάξεων, ακολουθεί στο επόμενο κεφάλαιο, ως τελικό βήμα της παρούσας Δ.Δ., η παρουσίαση των αποτελεσμάτων των μετρήσεων των πάσης φύσεως και γεωμετρίας δειγμάτων ατμοσφαιρικού αερολύματος που συλλέχθηκαν και οι απαραίτητες συσχετίσεις που θα οδηγήσουν στα βασικά συμπεράσματα της Δ.Δ.

Στο **6° Κεφάλαιο** παρουσιάζονται τα αποτελέσματα των μετρήσεων και αναλύσεων που έγιναν, χρησιμοποιώντας τα πρωτόκολλα δειγματοληψίας που έχουν υιοθετηθεί στα πλαίσια της Δ.Δ. και γίνεται η συσχέτιση της ενεργότητας των ισοτόπων ενδιαφέροντος με μετεωρολογικές παραμέτρους και λοιπά φαινόμενα.

Ένα από τα βασικά ισότοπα που μελετάται είναι το ⁷Be και γίνονται συσχετίσεις της ενεργότητάς του με διάφορες περιβαλλοντικές και εποχικές παραμέτρους (όπως είναι η

σχετική υγρασία, το ποσοστό της βροχόπτωσης, το πλήθος των ηλιακών κηλίδων, η ηλιακή δραστηριότητα, το ύψος του οριακού στρώματος ανάμειξης κλπ).

Ένα σημαντικό τμήμα των δειγματοληψιών και αναλύσεων αφορά στη μελέτη της κατανομής μεγέθους των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος τα οποία είναι φορείς του ⁷Be αλλά και της κίνησης των αερίων μαζών. Η ανάλυση αυτή γίνεται με χρήση του κώδικα αντιστροφής MICRON και δείχνει την επίδραση που έχουν οι διάφορες ατμοσφαιρικές διεργασίες στον ρυθμό με τον οποίο προσκολλώνται τα ραδιενεργά ισότοπα στα σωματίδια ατμοσφαιρικού αερολύματος και στο μέγεθος τελικά των σωματιδίων του αερολύματος. Όλα τα παραπάνω αποδεικνύουν την καταλληλότητα του ⁷Be στο να χρησιμοποιηθεί ως ιχνηθέτης για μία σειρά ατμοσφαιρικών διεργασιών, τη μελέτη της κίνησης των αερίων μαζών αλλά και για την εκτίμηση του χρόνου παραμονής των Αιωρούμενων Σωματιδίων στην ατμόσφαιρα.

Στο 6° κεφάλαιο παρουσιάζονται ακόμα και τα αποτελέσματα από την ανάλυση της κύμανσης συγκεντρώσεων ισοτόπων σχετικών με φαινόμενα καύσης βιομάζας. Ο στόχος της μελέτης αυτής είναι να εκτιμηθεί η επίδραση των περιστατικών αυτών στις μετρούμενες συγκεντρώσεις ραδιενεργών ισοτόπων – ιχνηθετών καύσης βιομάζας στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα της Αθήνας. Προς την κατεύθυνση αυτή μετρήθηκαν τα επίπεδα ραδιενέργειας (τόσο –γ όσο και –β) κατά τη διάρκεια περιστατικών καύσης βιομάζας και εξετάστηκε το κατά πόσο υπήρξε αύξηση συγκεντρώσεων κατά τη διάρκεια αυτών των περιστατικών, συγκριτικά με την υπόλοιπη περίοδο. Παράλληλα με τις μετρήσεις ραδιενεργών ισοτόπων έγινε και προσδιορισμός της συγκέντρωσης και άλλων άλλων παραμέτρων που σχετίζονται με περιστατικά καύσης βιομάζας (όπως για παράδειγμα το κάλιο και ο άνθρακας). Επιπλέον, για μία σειρά επιλεγμένων δειγμάτων προσδιορίσθηκαν με τεχνικές α-φασματοσκοπίας και τα ισότοπα ²¹⁰Pb, ²³⁸U και ²³⁴U, κάτι που επέτρεψε την εξαγωγή χρήσιμων συμπερασμάτων και συσχετίσεων.

Κατά τη διάρκεια εκπόνησης της Δ.Δ. παρουσιάσθηκαν μία σειρά από περιστατικά που έχουν να κάνουν με την ανίχνευση στην ατμόσφαιρα τεχνητών ραδιενεργών ισοτόπων, όπως το ¹³¹Ι και το ¹⁰⁶Ru, τα οποία ήταν προφανώς συνέπεια κάποιου πυρηνικού η ραδιολογικού ατυχήματος. Στο Κεφάλαιο αυτό παρατίθενται και τα αποτελέσματα των σχετικών μετρήσεων που έγιναν στο ΕΡΠ στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ., ενώ γίνεται και σύγκριση με τιμές άλλων ευρωπαϊκών χωρών. Πέρα από αυτό, παρουσιάζεται και η μεθοδολογία που ακολουθείται εν γένει, κάθε φορά που ανιχνεύονται αφύσικες συγκεντρώσεις ραδιενεργών ισοτόπων στην ατμόσφαιρα προκειμένου να εντοπισθεί η πιθανή προέλευσή τους.

Η Δ.Δ. ολοκληρώνεται με το **7° Κεφάλαιο**. Το κεφάλαιο αυτό αποτελεί και τον επίλογο της Δ.Δ. Σε αυτό συνοψίζονται τα αποτελέσματα της Δ.Δ. και παρουσιάζονται τα βασικά συμπεράσματα της καθώς και τα σημεία καινοτομίας της. Επιπλέον, επισημαίνονται οι δυσκολίες που παρουσιάσθηκαν και προτείνονται κατευθύνσεις για μελλοντική έρευνα. Στο ίδιο κεφάλαιο τέλος παρουσιάζονται και οι δημοσιεύσεις και οι ανακοινώσεις που έχουν γίνει στα πλαίσια της Δ.Δ.

Η Διατριβή ολοκληρώνεται με τα επτά Παραρτήματα, στα οποία παρουσιάζονται:

- Στο Παράρτημα Α η διαδικασία βαθμονόμησης του δειγματολήπτη πρόσκρουσης πολλαπλών σταδίων ο οποίος χρησιμοποιήθηκε στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ.
- Στο Παράρτημα Β τυπικά αρχεία εισόδου και εξόδου του κώδικα PENELOPE 2011 που χρησιμοποιήθηκε κατά τη βαθμονόμηση των ανιχνευτών γερμανίου που χρησιμοποιήθηκαν στη παρούσα Δ.Δ.

- Στο Παράρτημα Γ τα πιστοποιητικά των ανιχνευτικών διατάξεων και των πηγών βαθμονόμησης που χρησιμοποιήθηκαν στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ.
- Στο Παράρτημα Δ επεξηγείται με λεπτομέρειες το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης για το οποίο γίνεται εκτενής λόγος στο κύριο σώμα του κειμένου.
 Επίσης, αναλύεται ο τρόπος λειτουργίας των προγραμμάτων διόρθωσης του φαινομένου της πραγματικής σύμπτωσης που χρησιμοποιήθηκαν (TrueCoinc και Efftran).
- Στο Παράρτημα Ε δίνονται πληροφορίες σχετικά με το πρόγραμμα HYSPLIT που αφορά τον προσδιορισμό των οπισθοτροχιών του ατμοσφαιρικού αερολύματος και στα βήματα που μπορεί κανείς να ακολουθήσει ώστε να πάρει τα επιθυμητά αποτελέσματα, ενώ παρουσιάζονται και τυπικά αρχεία εξόδου. Πρόκειται για χάρτες που απεικονίζουν τις οπισθοτροχιές των αερίων μαζών αλλά και στους αντίστοιχους πίνακες.
- Στο Παράρτημα ΣΤ παρουσιάζεται και η τεχνική αντιστροφής της κατανομής μεγεθών για τα στάδια ενός δειγματολήπτη με χρήση του κώδικα MICRON.
- Στο Παράρτημα Ζ παρατίθεται για λόγους πληρότητας πίνακας με τιμές συγκεντρώσεων ισοτόπου ¹⁰⁶Ru από σταθμούς της Γαλλίας (IRSN information report, 2017).

Ιδιότητες, φυσική και κινητική του αερολύματος – αρχές δειγματοληψίας αερολυμάτων

2.1 Εισαγωγή

Η μελέτη των αιωρούμενων ατμοσφαιρικών σωματιδίων είναι άρρηκτα συνδεδεμένη με τη μελέτη της ατμοσφαιρικής ρύπανσης. Ο όρος aerosol (αερόλυμα) χρησιμοποιήθηκε για πρώτη φορά το 1918 από τον E.G.Donnan και παρουσιάζεται για πρώτη φορά στη βιβλιογραφία το 1920 από τον Schmauss, διευθυντή την εποχή εκείνη του μετεωρολογικού σταθμού του Μονάχου. Η γέννηση της επιστήμης της μελέτης των αιρούμενων σωματιδίων τοποθετείται μετά το 1920, καθώς τότε έγιναν εμφανείς οι αρνητικές επιπτώσεις στην υγεία, από την ύπαρξη στην ατμόσφαιρα σκόνης και άλλων αιωρούμενων σωματιδίων εξαιτίας βιομηχανικών δραστηριοτήτων. Την ίδια εποχή έγιναν και οι πρώτες απόπειρες μέτρησης αιωρούμενων σωματιδίων.

Η μελέτη του ατμοσφαιρικού αερολύματος είναι ένα πολύ ιδιαίτερο αντικείμενο, το οποίο έχει προεκτάσεις που αγγίζουν διάφορους τομείς της εφαρμοσμένης φυσικής. Πρόκειται για έναν κλάδο που αναπτύσσεται ραγδαία με τη συνεισφορά επιστημόνων από τους τομείς της φυσικής, της χημείας και της μετεωρολογίας. Η μελέτη της ποιότητας του ατμοσφαιρικού αερολύματος είναι ένα δυναμικό πεδίο, το οποίο επηρεάζεται ισχυρά από οικονομικό-πολιτικούς παράγοντες αλλά και από τις τεχνολογικές εξελίξεις. Η μεθοδολογία συλλογής και οι τεχνικές ανάλυσης του ατμοσφαιρικού αερολύματος είναι το βασικότερο κομμάτι της επιστήμης αυτής και πολλές είναι οι μελέτες επί του αντικειμένου.

Στο κεφάλαιο αυτό παρουσιάζονται αρχικά οι βασικές ιδιότητες του ατμοσφαιρικού αερολύματος και οι αρχές που διέπουν τη μελέτη του. Ακολούθως, δίνονται λεπτομέρειες για τις βασικές αρχές της συλλογής του ατμοσφαιρικού αερολύματος καθώς και του εξοπλισμού μέσω του οποίου αυτή επιτυγχάνεται.

2.2 Βασικοί ορισμοί σχετικοί με το ατμοσφαιρικό αερόλυμα

2.2.1 Γενικά για το αερόλυμα

Ως **αερόλυμα (aerosol)** ορίζεται μία ποσότητα σωματιδίων σε υγρή ή στερεά μορφή, η οποία είναι διασκορπισμένη σε ένα αέριο μέσο. Στην κατηγορία «αερόλυμα» συγκαταλέγονται: η σκόνη (π.χ. λόγω των διαφόρων βιομηχανικών δραστηριοτήτων), η ομίχλη, ο καπνός, αλλά και ζωντανοί μικροοργανισμοί, όπως η γύρη, οι ιοί και τα βακτήρια.

Το αερόλυμα δηλαδή αποτελείται από δύο συνιστώσες, τα σωματίδια (αλλιώς και Αιωρούμενα Σωματίδια-ΑΣ) και το αέριο μέσα στο οποίο αυτά αιωρούνται.

Με τον όρο **Αιωρούμενα Σωματίδια, ΑΣ (Particulate Matter - PM)** χαρακτηρίζονται τα στερεά ή υγρά σωματίδια που βρίσκονται σε διασπορά σε ένα αέριο μέσο και καλύπτουν ένα μεγάλο εύρος μεγεθών (από 0.002 μm μέχρι 100 μm). Απαντώνται σε ιδιαίτερα μεγάλη ποικιλία σχημάτων (ανάλογα με την φύση και την προέλευσή τους) αν και έχει επικρατήσει να γίνεται αναφορά σε αυτά ως έχοντα σχήμα σφαιρικό, για λόγους που εξηγούνται στη συνέχεια.

Τα ΑΣ έχουν ιδιότητες που διαφοροποιούνται με την πάροδο του χρόνου, ενώ ακόμα και οι συγκεντρώσεις τους υπόκεινται σε χρονικές και χωρικές μεταβολές. Τα ΑΣ απομακρύνονται από την ατμόσφαιρα με τις διεργασίες της ξηρής εναπόθεσης (π.χ. βαρυτική καθίζηση) και της υγρής εναπόθεσης (π.χ. μέσω βροχόπτωσης ή χιονόπτωσης). Πάντως, ανάλογα και με τον χρόνο παραμονής τους στην ατμόσφαιρα, τα ΑΣ μπορεί να μεταφερθούν και εναποτεθούν σε μεγάλες αποστάσεις από την πηγή σχηματισμού τους, μέσω των διεργασιών μεταφοράς αερίων μαζών.

Τα αιωρούμενα σωματίδια μπορούν να ταξινομηθούν ανάλογα με τα χαρακτηριστικά και τον τρόπο σχηματισμού τους στις παρακάτω κατηγορίες (Seinfeld and Pandis 1998; Hinds 1999):

- Ομίχλη (Fog): Ορατά σωματίδια ή σταγονίδια (συνηθέστερα) που δημιουργούνται από τη συμπύκνωση ατμών κοντά στο έδαφος. Το μέγεθος τους κυμαίνεται μεταξύ 0.1 μm και 10 μm.
- Σκόνη (Dust): Στερεά σωματίδια προερχόμενα από διάφορες μηχανικές διεργασίες με διάμετρο μεγαλύτερη από 1 μm.
- Αιθάλη (Soot): Στερεά συσσωματώματα σωματιδίων τα οποία σχηματίζονται κατά την ατελή καύση ανθρακούχων υλικών, λόγω της συμπύκνωσης ατμών που προέρχονται από αυτήν, ή άλλες διεργασίες υψηλής θερμοκρασίας. Τα σωματίδια αυτά είναι συνήθως συμπλέγματα ή αλυσίδες μικρότερων πρωτογενών σφαιρικών σωματίδια (primary particles) με διαστάσεις μικρότερες από 0.05 μm και περιέχουν άνθρακα.
- Κάπνα (Fume): Στερεά σωματίδια παραγόμενα από συμπύκνωση ατμών ή αέριων προϊόντων καύσης με διάμετρο μικρότερη από 1 μm.
- Ιπτάμενη τέφρα (Fly ash): Σωματίδια μεταλλικά ή ορυκτά που ελευθερώνονται κατά την καύση στερεών ορυκτών καυσίμων και εκπέμπονται από τις καπνοδόχους των αντίστοιχων μονάδων.
- Καπνός (Smoke): Νέφος αιωρούμενων σωματιδίων και αερίων που προέρχονται από διεργασίες ατελούς καύσης. Τυπικό μέγεθος μεταξύ 0.01 μm και 1 μm.
- Αιθαλομίχλη (Smog): Πρόκειται για ένα μίγμα καπνού (smoke), υδρατμών και ομίχλης (fog) και δημιουργείται ως αποτέλεσμα διαφόρων φωτοχημικών αντιδράσεων. Ο όρος αυτός χρησιμοποιείται σε περιπτώσεις εκτεταμένης σωματιδιακής ρύπανσης λόγω καύσης βιομάζας.
- Αχλή (Mist): Σταγονίδια από νερό συνήθως διαμέτρων μεγαλύτερων από 1 μm, τα οποία αιωρούνται κοντά στο έδαφος ή εναποτίθενται και ομοιάζουν με τη βροχή. Βρίσκονται σε χαμηλές συγκεντρώσεις και σχηματίζονται μέσω μηχανικών διεργασιών ή από συμπύκνωση αερίων.
- Ομίχλη (Haze): Σωματίδια τα οποία μειώνουν την ορατότητα και μπορεί να αποτελούνται από σταγονίδια νερού, ρύπους και σκόνη.
- Νέφος (Cloud): Αιώρημα σωματιδίων υψηλής πυκνότητας και με καθορισμένα όρια.

- Βιολογικά σωματίδια ή βίο-αερολύματα (Bioaerosol): Στην κατηγορία αυτή ανήκουν τα αερολύματα βιολογικής προέλευσης, όπως η γύρη, οι σπόροι μυκήτων, τα βακτήρια, οι ιοί και τα θραύσματα κυττάρων.
- Σπρέι (Spray): Σωματίδια που σχηματίζονται μέσω της μηχανικής διάσπασης ενός υγρού μέσου π.χ. λόγω ραντίσματος υγρών φυτοφαρμάκων και παρασιτοκτόνων.
- Άλας (Salt): Προέρχονται από τα επίπεδα της θάλασσας, κυρίως από τους ωκεανούς μέσω της σύγκρουσης των κυμάτων και των φυσαλίδων που προκύπτουν.

Όπως φαίνεται από τις παραπάνω κατηγορίες, στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα μπορούν να υπάρχουν ΑΣ είτε φυσικής (γύρη-σπόροι μυκήτων-βακτήρια-ιοί κλπ) (Wilson et al.,1975; Borm et al.,1990; Alonso et al.,1997; Willeke et al.,2001; Lazaridis et al.,2002) είτε τεχνητής προέλευσης (αιθάλη-ιπτάμενη τέφρα-βιομηχανική σκόνη κλπ) (Charlson et al., 1992; Seifeld and Pandis, 1998; ApSimon et al., 2000; Willeke et al., 2001; Eleftheriadis et al., 2006), ενώ είναι δυνατή και η δημιουργία σωματιδίων λόγω φωτοχημικών αντιδράσεων. Ανάλογα με την προέλευση και τις ιδιότητές τους, τα ΑΣ είναι δυνατό να επηρεάζουν διάφορες ατμοσφαιρικές διεργασίες όπως είναι ο σχηματισμός ομίχλης και η βροχόπτωση. Επιπλέον, μπορεί να ευθύνονται και για την πρόκληση διάφορων παθήσεων, όπως αλλεργίες, καρδιαγγειακά νοσήματα, εμφύσημα, ακόμα και καρκίνος. Λόγω της έντονης αστικοποίησης και της έντονης βιομηχανικής δραστηριότητας παρατηρείται αύξηση των επιπέδων των ΑΣ στην ατμόσφαιρα. Βέβαια αξίζει να τονίσουμε ότι τα τελευταία 20 περίπου χρόνια γίνονται προσπάθειες μείωσής τους στις δυτικές κοινωνίες. Το μέγεθός τους επηρεάζει, τόσο τις φυσικές και τις χημικές τους ιδιότητες, όσο και τη διάρκεια παραμονής τους στην ατμόσφαιρα. Όπως γίνεται σαφές από τα παραπάνω, η μελέτη των αερολυμάτων, σε συνδυασμό με επιδημιολογικά και τοξικολογικά στοιχεία, είναι ιδιαίτερα σημαντική για τη διασφάλιση της δημόσιας υγείας.

Τα ΑΣ διαιρούνται σε δύο βασικές κατηγορίες, τα πρωτογενή και τα δευτερογενή (Seinfeld and Pandis 1998; Hinds 1999). Ως πρωτογενή (primary) αναφέρονται τα σωματίδια τα οποία εκπέμπονται απευθείας από την πηγή τους (είτε πρόκειται για κάποια φυσική διεργασία όπως: εδαφική σκόνη, βιολογικό υλικό, ηφαιστειακή σκόνη, είτε για κάποια ανθρώπινη δραστηριότητα όπως: βιομηχανικές δραστηριότητες, διεργασίες καύσης κλπ). Τα πρωτογενή ΑΣ είναι συνήθως μεγάλου μεγέθους, ανήκουν δηλαδή στο χονδρόκοκκο κλάσμα. Βέβαια υπάρχουν και εξαιρέσεις, όπως για παράδειγμα ο καπνός, ο οποίος ανήκει στο λεπτόκοκκο κλάσμα. Δευτερογενή (secondary) ονομάζονται τα σωματίδια τα οποία προέρχονται από μετατροπή αερίων σε σωματίδια ή πρωτογενή ΑΣ, τα οποία μετά την παραγωγή τους έχουν εμπλακεί σε μηχανισμούς μετασχηματισμού νέων σωματιδίων. Τέτοιοι μηχανισμοί είναι η πυρηνοποίηση (nucleation) που μπορεί να είναι είτε ομογενής είτε ετερογενής, η συσσωμάτωση (coagulation) και η συμπύκνωση (condensation). Η διεργασία από την οποία προήλθε ένα δευτερογενές σωματίδιο καθορίζει, τόσο το μέγεθος όσο και τη μορφή του. Ο διαχωρισμός σε πρωτογενή και δευτερογενή σωματίδια είναι ιδιαίτερα σημαντικός, καθώς, ανάλογα με το είδος τους έχουν διαφορετικό μέγεθος και ιδιότητες. Στη συνέχεια της παραγράφου ακολουθεί σύντομη περιγραφή των βασικών διεργασιών σχηματισμού δευτερογενών σωματιδίων, οι οποίες παρουσιάζονται γραφικά στο Σχήμα 2.1 (Friedlander 2000).

Ως **ομογενής πυρηνοποίηση** (homogenous nucleation) ορίζεται η διεργασία παραγωγής πυρήνων (μικρού μεγέθους σωματίδια) από αέρια/ατμούς που είναι οι δομικές μονάδες της νέας φάσης, οι οποίοι εν συνεχεία συνενώνονται. Απαραίτητη προϋπόθεση για τη διεργασία της ομογενούς πυρηνοποίησης είναι, ο λόγος κορεσμού να είναι μεγαλύτερος της μονάδας (S>1), καθώς στη φάση αυτή υπάρχει και μεγαλύτερο πλήθος μονομερών μορίων. Τα μονομερή μόρια βομβαρδίζουν συμπλέγματα μορίων (clusters) με αποτέλεσμα να σχηματίζονται συμπλέγματα ακόμα μεγαλύτερου μεγέθους. Αυτό συνεχίζεται μέχρι τη φάση όπου τα συμπλέγματα θα αποκτήσουν μέγεθος μεγαλύτερο ενός κρισίμου μεγέθους. Ως κρίσιμο ορίζεται χαρακτηρίζεται το μέγεθος όπου ο ρυθμός ανάπτυξης του συμπλέγματος ισούται με το ρυθμό αποσύνθεσης του. Μετά από αυτό το σημείο παρατηρείται μακροσκοπική ανάπτυξη. Στην περίπτωση που ένα σύμπλεγμα μορίων ξεπεράσει το κρίσιμο μέγεθός του, είναι πιθανό να συνεχίσει να αναπτύσσεται και να φτάσει ακόμα και το σημείο στο οποίο θα μπορεί να παρατηρηθεί μακροσκοπικά. Για όσα συμπλέγματα το μέγεθός τους δεν ξεπεράσει το κρίσιμο μέγεθος, συνήθως ακολουθεί η συρρίκνωση. Το μέγεθος ρυθμός ομογενούς πυρηνοποίησης ορίζεται ως το πλήθος των συμπλεγμάτων που ξεπερνάει το κρίσιμο μέγεθος στη μονάδα του χρόνου (Kulkarni et al. 2011a).



Σχήμα 2.1 Ατμοσφαιρικές διεργασίες που συνεισφέρουν στην διαφοροποίηση των ιδιοτήτων των ΑΣ (Friedlander 2000)

Η ετερογενής πυρηνοποίηση (heterogeneous nucleation) είναι ο πιο συνηθισμένος μηχανισμός πυρηνοποίησης. Περιλαμβάνει τη δημιουργία των λεγόμενων πυρήνων συμπύκνωσης. Πρόκειται για σωματίδια που δημιουργούνται από τη συμπύκνωση αερίων, με μέγεθος μικρότερο του 1 μm. Οι πυρήνες συμπύκνωσης μπορεί να είναι υδατοδιαλυτοί (πρόκειται για μία πιο περίπλοκη περίπτωση) ή μη υδατοδιαλυτοί (στην περίπτωση αυτή λειτουργούν ως παθητικές θέσεις συμπύκνωσης όταν επικρατούν συνθήκες υπερκορεσμού). Η διαδικασία της συμπύκνωσης λαμβάνει χώρα σε υπέρκορο περιβάλλον. Σύμφωνα με τον νόμο του Kelvin, όταν ένα υγρό σωματίδιο (σταγονίδιο) βρίσκεται σε υπέρκορο περιβάλλον, τότε ατμοί του αερίου συμπυκνώνονται στην επιφάνειά του, με αποτέλεσμα το σωματίδιο να μεγαλώνει σε μέγεθος. Ο ρυθμός ανάπτυξης του σωματιδίου εξαρτάται από το αρχικό μέγεθος του σωματιδίου και το λόγο κορεσμού. Αρχικά, το σωματίδιο συνήθως είναι μικρότερου μεγέθους από την μέση ελεύθερη διαδρομή λ του σωματιδίου και ο ρυθμός άφιξης των μορίων του αερίου ακολουθεί την κινητική θεωρία των αερίων. Όταν το μέγεθος του σωματιδίου είναι μεγαλύτερο από την μέση ελεύθερη διαδρομής του, ο ρυθμός άφιξης εξαρτάται από την διάχυση των μορίων στην επιφάνεια του σωματιδίου. Ο ρυθμός ανάπτυξης των σωματιδίων είναι ανεξάρτητος από το μέγεθος του σωματιδίου όταν αυτό είναι μικρότερο από την μέση ελεύθερη διαδρομή, και αντιστρόφως ανάλογο του μεγέθους του όταν είναι μεγαλύτερο.

Ως συσσωμάτωση (coagulation) ορίζεται η διεργασία ανάπτυξης σωματιδίων ως αποτέλεσμα των μεταξύ τους συγκρούσεων. Χωρίζεται σε **θερμική** και **κινηματική**, ανάλογα

με το κατά πόσον οι συγκρούσεις είναι αποτέλεσμα της κίνησης Brown (βλέπε παράγραφος 2.4.7.1) ή αν είναι αποτέλεσμα της κίνησης λόγω της επίδρασης εξωτερικών δυνάμεων αντίστοιχα. Από τον ορισμό της διεργασίας αυτής διαπιστώνεται ότι η θερμική συσσωμάτωση προσομοιάζει στην ανάπτυξη λόγω συμπύκνωσης. Η βασική τους διαφορά έγκειται στο ότι, στην περίπτωση της θερμικής συσσωμάτωσης στο αναπτυσσόμενο σωματίδιο διαχέονται άλλα σωματίδια, ενώ στην περίπτωση της ανάπτυξη λόγω συμπύκνωσης είναι μη αντιστρεπτή και δεν απαιτούνται συνθήκες κορεσμού προκειμένου να πραγματοποιηθεί. Το αποτέλεσμα των συνεχών συγκρούσεων σε ένα κλειστό σύστημα όπου δεν υπάρχει εισροή ή εκροή μάζας είναι να σχηματίζονται διαρκώς αυξανόμενα σε μέγεθος σωματίδια, με παράλληλη μείωση του πλήθους τους. Και στις δύο περιπτώσεις συσσωμάτωσης (θερμική και κινηματική), ο ρυθμός συσσωμάτωσης είναι μεγαλύτερος όσο μεγαλύτερη είναι η συγκέντρωση των σωματιδίων.

Ανεξάρτητα από τον τρόπο σχηματισμού τους, τα ΑΣ απομακρύνονται από την ατμόσφαιρα με μηχανισμούς που εξαρτώνται από το μέγεθός τους. Ένας τέτοιος μηχανισμός είναι η βαρυτική καθίζηση, που είναι και ο συνηθέστερος μηχανισμός για τα μεγαλύτερα σωματίδια της ατμόσφαιρας. Επίσης, σημαντικός μηχανισμός είναι και η υγρή εναπόθεση, όπου τα ΑΣ της ατμόσφαιρας παρασύρονται από τις υγρές κατακρημνίσεις και καταλήγουν στο έδαφος (Gerasopoulos et al.,2003).

Οι συγκεντρώσεις των ΑΣ στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα εξαρτώνται από πολλούς παράγοντες που έχουν να κάνουν με τη θέση, τις συνθήκες που επικρατούν κλπ. Για τη μελέτη των ΑΣ εξετάζονται μία σειρά από ιδιότητες όπως: η συγκέντρωση, η μάζα, το μέγεθος, η χημική σύσταση, οι αεροδυναμικές και οπτικές ιδιότητες. Οι πληροφορίες που παρέχονται από τη μελέτη των ιδιοτήτων αυτών βοηθούν στην διαπίστωση της προέλευσης των ΑΣ, αλλά και στην εκτίμηση των εν δυνάμει επιπτώσεων που μπορεί να έχουν στον ανθρώπινο οργανισμό και στο περιβάλλον γενικότερα.

2.2.2 Φυσικές ιδιότητες των Αιωρούμενων Σωματιδίων

Μία πολύ σημαντική παράμετρος η οποία χαρακτηρίζει τα ΑΣ είναι το μέγεθός τους. Το μέγεθος των σωματιδίων καθορίζει πολλές από τις ιδιότητές τους καθώς και τη συμπεριφορά τους, και μπορεί να κυμαίνεται από μερικά nm έως 100 μm, ανάλογα από την πηγή εκπομπής τους και από τις διεργασίες (φυσικές ή χημικές) που πραγματοποιούνται στην ατμόσφαιρα. Τα ΑΣ είναι εν γένει ακαθόριστου σχήματος (για παράδειγμα σωματίδια που κυρίως αποτελούνται ή απορροφούν νερό τείνουν να είναι πιο σφαιρικά, ενώ γενικά τα στερεά σωματίδια έχουν ακαθόριστο σχήμα, γεγονός που ενδεχομένως επηρεάζει και τις ιδιότητές τους). Στο σχήμα 2.2 διακρίνονται μερικές τυπικές μορφές ΑΣ, φυσικής και τεχνητής προέλευσης.

Το γεγονός ότι τα ΑΣ στην ατμόσφαιρα είναι εν γένει ακαθορίστου σχήματος εισάγει δυσκολίες στην προσπάθεια ταξινόμησής τους με βάση τις διαστάσεις τους. Προκειμένου τα ΑΣ να ταξινομηθούν, ώστε να μπορέσουν εν συνεχεία να μελετηθούν, έχει εισαχθεί ένα χαρακτηριστικό μέγεθος, η **αεροδυναμική διάμετρος d**a. Πρόκειται για τη διάμετρο μίας σφαίρας με πυκνότητα ρ₀=1000 kg/m³, η οποία έχει ακριβώς τις ίδιες φυσικές ιδιότητες με το σωματίδιο στο οποίο αντιστοιχεί (συγκεκριμένα την ίδια βαρυτική ταχύτητα καθίζησης). Το μέγεθος της αεροδυναμικής διαμέτρου διευκολύνει τη μελέτη του ατμοσφαιρικού αερολύματος, καθώς επιτρέπει να θεωρούνται όλα τα ΑΣ σφαιρικού σχήματος. Ένας ακόμα τρόπος χαρακτηρισμού του μεγέθους των ΑΣ είναι μέσω της **διαμέτρου Stokes, d**s, δηλαδή της διαμέτρου μίας σφαίρας η οποία θα έχει την ίδια πυκνότητα και την ίδια βαρυτική ταχύτητα καθίζησης με το αντίστοιχο ΑΣ.



Σχήμα 2.2 Εικόνες ΑΣ από ηλεκτρονικό μικροσκόπιο, (α) σωματίδια ιπτάμενης τέφρας, (β) σωματίδια σκόνης χαλαζία σε μεγέθυνση 2650x, (γ) σωματίδια οξειδίων του σιδήρου σε μεγέθυνση 2300x, (δ) ίνες ασβεστίου σε μεγέθυνση 1250x, (ε) ηφαιστειακή σκόνη σε μεγέθυνση 125x (Hinds W., 1999)

Η αεροδυναμική διάμετρος d_a μπορεί να εκφραστεί μέσω μίας σφαιρικής σταγόνας νερού η οποία έχει τις ίδιες αεροδυναμικές ιδιότητες με το ΑΣ. Από την άλλη, η διάμετρος Stokes d_s συνήθως αναφέρεται στην πυκνότητα του υλικού από το οποίο προέρχεται το σωματίδιο. Αυτός ο ορισμός ουσιαστικά εξαλείφει το πρόβλημα του ορισμού της πραγματικής πυκνότητας του σωματιδίου, η οποία μπορεί να είναι μικρότερη από αυτή του υλικού, λόγω της μορφής και της δομής του.

Στο σχήμα 2.3 παρουσιάζονται οι τρεις διαφορετικοί τρόποι ορισμού της διαμέτρου ενός ΑΣ. Η ακαθόριστη πραγματική μορφή του (φυσικής διαμέτρου de και συντελεστή σχήματος χ), η ισοδύναμη διάμετρος Stokes ds και η ισοδύναμη αεροδυναμική διάμετρος da. Σε κάθε περίπτωση τα σωματίδια έχουν την ίδια ταχύτητα καθίζησης, αλλά διαφορετικό σχήμα και μέγεθος.

Η αεροδυναμική διάμετρος (ορίζεται και ως ισοδύναμη αεροδυναμική διάμετρος) αποτελεί ίσως το βασικότερο μέγεθος στη μελέτη του ατμοσφαιρικού αερολύματος, καθώς επιτρέπει τον χαρακτηρισμό των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος και την πραγματοποίηση μελετών σχετικά με την εναπόθεσή τους, στα διάφορα τμήματα της αναπνευστικής οδού, τον καθαρισμό χώρων με υψηλό φορτίο ΑΣ κλπ. Για τέτοιου είδους μελέτες αρκεί η γνώση της αεροδυναμικής διαμέτρου και δεν είναι απαραίτητη η γνώση του ακριβούς μεγέθους, της πυκνότητας και της μορφής των ΑΣ. Πρέπει στο σημείο αυτό να αναφερθεί ότι οι δειγματολήπτες ατμοσφαιρικού αερολύματος είναι σχεδιασμένοι ώστε να συλλέγουν ΑΣ με βάση την αεροδυναμική τους διάμετρο, καθώς με τον τρόπο αυτό μπορούν να προσδιορισθούν οι αδρανειακές ιδιότητες του σωματιδίου στην αναπνευστική οδό. Για τους παραπάνω λόγους, στην παρούσα Δ.Δ. ο χαρακτηρισμός των ΑΣ του ατμοσφαιρικού αερολύματος γίνεται μέσω του μεγέθους της αεροδυναμικής διαμέτρου d_a.



Σχήμα 2.3 Αιωρούμενο σωματίδιο ακαθόριστου σχήματος με τις ισοδύναμες διαμέτρους Stokes και αεροδυναμική (Hinds W., 1999)

Έχοντας ως δεδομένο την αεροδυναμική διάμετρο ενός σωματιδίου d_a, είναι δυνατός ο υπολογισμός της πραγματικής διαμέτρου του σωματιδίου d_p, καθώς εξ ορισμού η αεροδυναμική διάμετρος έχει την ίδια ταχύτητα καθίζησης με την πραγματική διάμετρο ενός σωματιδίου. Η ταχύτητα αυτή είναι ανάλογη της πυκνότητας του σωματιδίου ρ_p , της φυσικής του διαμέτρου d_p και ενός παράγοντα διόρθωσης, του παράγοντα διόρθωσης του Cunningham C_c, ο οποίος εισάγεται για να ληφθεί υπόψη το σφάλμα που προκύπτει από τη θεώρηση ότι το αέριο μέσο στο οποίο βρίσκονται τα ΑΣ δεν είναι ένα συνεχές ρευστό, αλλά αποτελείται από διακριτά μόρια. Ο παράγοντας διόρθωσης Cunningham C_c είναι

$$C_c = C_c(d_p) = C_{c,dp}$$
 (Σχέση 2.1)

Η αεροδυναμική διάμετρος da δίνεται από την σχέση:

$$d_a = d_p \left(\frac{\rho_p}{\rho_0}\right)^{1/2} \left(\frac{C_{c,dp}}{C_{c,da}}\right)^{1/2}$$
(Σχέση 2.2)

Όπου:

d_p: η διάμετρος του σωματιδίου (ακανόνιστου σχήματος)

ρ₀: η πυκνότητα του υλικού αναφοράς, 1000 kg/m³

 $\rho_{\rm p}$: η πυκνότητα του υλικού του σωματιδίου

 $C_{c,dp}$ ο παράγοντας διόρθωσης με βάση την φυσική διάμετρο

C_{c,da} παράγοντας διόρθωσης με βάση την αεροδυναμική διάμετρο

Όταν η τιμή της πραγματικής πυκνότητας είναι κοντά στην τιμή της πυκνότητας αναφοράς, τότε τα C_{c,dp} και C_{c,da} δεν διαφέρουν σημαντικά και ο λόγος τους μπορεί να θεωρηθεί ίσος με τη μονάδα. Στην περίπτωση αυτή, η αεροδυναμική διάμετρος συνδέεται με την πραγματική με τη σχέση:

$$d_a = d_p \left(\frac{\rho_p}{\rho_0}\right)^{1/2}$$
 (Σχέση 2.3)

Βάσει όσων αναφέρθηκαν παραπάνω, τόσο η αεροδυναμική διάμετρος όσο και η διάμετρος Stokes είναι ισοδύναμες διάμετροι που ορίζονται με βάση την ταχύτητα κατακρήμνισης του σωματιδίου στο οποίο αναφέρονται. Οπότε, για ίσες ταχύτητες κατακρήμνισης, ισχύει:

$$d_a = d_p \left(\frac{\rho_p}{\rho_{0}.\chi}\right)^{1/2} = d_s \left(\frac{\rho_p}{\rho_0}\right)^{1/2}$$
 (Σχέση 2.4)

d₅: η διάμετρος Stokes

d_p: η διάμετρος του σωματιδίου (ακανόνιστου σχήματος)

χ: συντελεστής σχήματος (δίνεται στη βιβλιογραφία), για σφαίρα ισούται με την μονάδα

ρ_p: η πυκνότητα του υλικού του σωματιδίου

Πέραν της αεροδυναμικής διαμέτρου και της διαμέτρου Stokes, έχουν δοθεί και άλλοι ορισμοί «ισοδύναμων» διαμέτρων, ανάλογα με τη φυσική ιδιότητα του σωματιδίου που εξετάζεται, προκειμένου να αποδοθεί στο ΑΣ ένα συγκεκριμένο μέγεθος. Έτσι, γενικεύοντας μπορεί να λεχθεί ότι, ως **ισοδύναμη διάμετρος ενός ΑΣ** ορίζεται η τιμή εκείνη της διαμέτρου που αντιστοιχεί σε σφαιρικό σωματίδιο, το οποίο έχει την ίδια τιμή της μετρούμενης φυσικής ιδιότητας που έχει το ακαθόριστου σχήματος σωματίδιο. Για παράδειγμα, όταν εξετάζονται οι οπτικές ιδιότητες ενός σωματιδίου είναι δυνατό να οριστεί η **ισοδύναμη οπτική διάμετρος**, η οποία είναι η διάμετρος ενός σφαιρικού σωματιδίου που εμφανίζει ίδιες οπτικές ιδιότητες με το υπό εξέταση σωματίδιο. Η εξέταση ισοδύναμων διαμέτρων – πέραν της μέσης αεροδυναμικής διαμέτρου και της διαμέτρου Stokes – ξεφεύγει από τα πλαίσια της Δ.Δ. και για το λόγο αυτό δεν θα ακολουθήσει περαιτέρω ανάλυση.

Όπως προκύπτει από τη σχέση 2.2, το μέγεθος d_a εξαρτάται από την πυκνότητα του σωματιδίου. Κατά συνέπεια, για την περίπτωση σφαιρικού σωματιδίου μεγάλης πυκνότητας (μεγαλύτερης από 1000 kg/m³) η τιμή της αεροδυναμικής διαμέτρου θα είναι μεγαλύτερη από την αντίστοιχη γεωμετρική του.

Τα ΑΣ, με βάση την αεροδυναμική τους διάμετρο διαχωρίζονται σε (Hinds W., 1999):

- Υπέρ λεπτόκοκκα σωματίδια (Ultra fine particles) για διαμέτρους 0.001 ως 0.1 μm).
 Παρουσιάζουν τοπικό μέγιστο της κατανομής με βάση το πλήθος, περί τα 0.015 μm.
- Λεπτόκοκκα σωματίδια (Fine particles). Διαιρούνται σε δύο υποπεριοχές: στο κλάσμα της περιοχής πυρηνογένεσης (nuclei mode) για ΑΣ διαμέτρου από 0.01 έως 1 μm και στο κλάσμα της περιοχής συσσώρευσης (accumulation mode). Η περιοχή πυρηνογένεσης περιλαμβάνει το μεγαλύτερο πλήθος σωματιδίων, αλλά λόγω του μικρού τους μεγέθους, μόνο μικρό ποσοστό της συνολικής μάζας τους. Ο μηχανισμός σχηματισμού των ΑΣ της περιοχής πυρηνογένεσης είναι οι φωτοχημικές αντιδράσεις, οι διεργασίες καύσης, η συμπύκνωση ατμών υψηλής θερμοκρασίας και η πυρηνογένεση ατμοσφαιρικών ειδών προς σχηματισμό νέων σωματιδίων. Λόγω του μικρού χρόνου ζωής τους παρατηρούνται υψηλές συγκεντρώσεις ΑΣ του

εν λόγω κλάσματος κοντά στις πηγές σχηματισμού τους. Τα ΑΣ απομακρύνονται από το κλάσμα αυτό κυρίως λόγω της δημιουργίας συσσωματωμάτων.

- Πυρήνες Aitken. Αποτελεί υποκατηγορία της περιοχής των λεπτόκοκκων σωματιδίων. Προέρχονται από διεργασίες καύσης και μέρος της μάζας του είναι δευτερογενές. Το μέγιστο της κατανομής τους παρουσιάζεται σε μέγεθος 0.04 μm.
- Περιοχή συσσώρευσης. Εκτείνεται από 0.05 έως 2.5 μm. Αποτελεί υποκατηγορία της περιοχής των λεπτόκοκκων σωματιδίων. Το κλάσμα αυτό ονομάστηκε έτσι γιατί οι μηχανισμοί απομάκρυνσης είναι λιγότερο αποτελεσματικοί σε αυτή την περιοχή, κάτι που έχει ως αποτέλεσμα τα σωματίδια να συσσωρεύονται σε αυτό το κλάσμα και να έχουν μεγαλύτερους χρόνους παραμονής στην ατμόσφαιρα. Η περιοχή συσσώρευσης χωρίζεται σε δύο υποκατηγορίες: τα σταγονίδια (droplet mode) που είναι ΑΣ μεγαλύτερου μεγέθους με προέλευση τη συσσωμάτωση υγροσκοπικών σωματιδίων και τα συμπυκνώματα (condensation mode), με προέλευση τη συσσωμάτωση μη υγροσκοπικών σωματιδίων.
 - **Χονδρόκκοκα σωματίδια** (Coarse particles) για διαμέτρους πάνω από 1 μm. Τα σωματίδια αυτά σχηματίζονται από μηχανικές διεργασίες και συνήθως πρόκειται για σωματίδια σκόνης (είτε ανθρωπογενούς είτε φυσικής προέλευσης). Τα χονδρόκκοκα σωματίδια είναι:
 - είτε πρώην λεπτόκοκκα σωματίδια τα οποία είναι «γηρασμένα», βρίσκονται δηλαδή στην ατμόσφαιρα σχετικά μεγάλο χρονικό διάστημα, με αποτέλεσμα να έχουν απορροφήσει ποσότητα υγρασίας και να έχει αυξηθεί η αεροδυναμική τους διάμετρος,
 - είτε προέρχονται από φυσικές κατά βάση διεργασίες, όπως είναι η διάβρωση του εδάφους.

Λόγω της μάζας τους, η ταχύτητα της βαρυτικής τους εναπόθεσης είναι μεγάλη και παρουσιάζει εξάρτηση από τις επικρατούσες ατμοσφαιρικές συνθήκες (π.χ. ταχύτητα και κατεύθυνση του ανέμου) που μπορεί να ευνοήσουν και την οριζόντια μεταφορά τους. Από τη μελέτη των χονδρόκοκκων σωματιδίων ως προς τις χημικές, φυσικές και οπτικές τους ιδιότητες αντλούνται πληροφορίες σχετικά με την προέλευσή τους.

 Ολικά Αιωρούμενα σωματίδια (Total Suspended Particulate-TSP), είναι το σύνολο των σωματιδίων τα οποία αιωρούνται στην ατμόσφαιρα και έχουν διάμετρο από το μικρότερο μέγεθος έως 100 μm.

Στο σχήμα 2.4 διακρίνονται οι διάφορες κατηγορίες ΑΣ, με βάση την αεροδυναμική τους διάμετρο.

Όπως φαίνεται από τα παραπάνω, μεταξύ των χονδρόκοκκων και των λεπτόκοκκων σωματιδίων υπάρχουν πολλές διαφορές, όπως: στην προέλευση, στον τρόπο σχηματισμού τους, στις φυσικές, χημικές και οπτικές τους ιδιότητες, στον τρόπο εναπόθεσής τους, αλλά και στην περιοχή της αναπνευστικής οδού όπου επικάθονται. Στο σχήμα 2.5 παρουσιάζονται τα εύρη των μεγεθών των ΑΣ ανάλογα με την προέλευση τους.

Ειδικότερα για τη διείσδυση των ΑΣ στο ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα, η βασική παράμετρος που καθορίζει το βάθος διείδυσης είναι το μέγεθος των ΑΣ. Όσο πιο μικρό είναι το μέγεθος των ΑΣ, τόσο πιο εύκολη είναι η διείσδυση αυτή (Baron and Willeke, 2001). Ιδιαίτερο ενδιαφέρον παρουσιάζουν τα σωματίδια ΑΣ₁₀ (σωματίδια με διάμετρο μικρότερη από 10 μm) και ΑΣ_{2.5} (σωματίδια με διάμετρο μικρότερη από 2.5 μm). Για τα ΑΣ₁₀ η διείσδυση στο ανθρώπινο σώμα υπολογίζεται σε ποσοστό 50%. Για μικρότερες διαμέτρους, τα σωματίδια μπορούν και απομακρύνονται μέσω της αναπνοής.



Σχήμα 2.4. Τυπική κατανομή του πλήθους αιωρούμενων σωματιδίων συναρτήσει της διαμέτρου τους (Baron and Willeke, 2001).



Particle Diameter [µm]

Σχήμα 2.5 Διαφοροποιήσεις στο μέγεθος των ΑΣ ανάλογα με την προέλευσή τους (Δ.Δ. Μανούσακας, 2014).

Τα ΑΣ μετρώνται με βάση τη συγκέντρωσή τους στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα σε g/m³ αέρα. Στο σχήμα 2.6 που ακολουθεί παρουσιάζονται οι τυπικές συγκεντρώσεις σωματιδίων για διάφορα είδη αερολύματος.



Σχήμα 2.6 Τυπικές συγκεντρώσεις ΑΣ στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα (Hinds W., 1999)

Οι συγκεντρώσεις των ΑΣ στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα παρουσιάζουν έντονη κύμανση. Για σχετικά καθαρή ατμόσφαιρα, βάσει της βιβλιογραφίας οι τιμές συγκέντρωσης μάζας κυμαίνονται περί τα 10 μg/m³. Σε ένα αστικό κέντρο οι τιμές είναι της τάξης των 50-70 μg/m³ και σε περιπτώσεις επιβαρυμένης ατμόσφαιρας μπορούν να φτάσουν ή και να υπερβούν τα 100-200 μg/m³ (Seifeld and Pandis 1998; Hinds 1999; Finlayson-Pitts and Pitts 2000; Willeke et al., 2001).

Επιπλέον, ανάλογα με το μέγεθός τους, τα ΑΣ μπορεί να είναι φορείς διάφορων ουσιών στοιχείων και ενώσεων, όπως θειικά και αμμωνιακά ιόντα, οργανικός ή στοιχειακός άνθρακας, ασβέστιο, μαγνήσιο, κλπ, ακόμα και ραδιενεργών πυρήνων φυσικής ή ανθρωπογενούς προέλευσης. Στα πλαίσια της Δ.Δ. γίνεται εκτενής μελέτη της κύμανσης που παρουσιάζει η συγκέντρωση στον αέρα ραδιενεργών ισοτόπων τα οποία προσκολλώνται σε ΑΣ. Επιπλέον, από τις αναλύσεις της κατανομής μεγεθών των ΑΣ του ατμοσφαιρικού αερολύματος που έγιναν στα πλαίσια της Δ.Δ. και παρουσιάζονται σε επόμενα κεφάλαια, προέκυψαν σημαντικά στοιχεία για το μέγεθος των ΑΣ στο οποίο οι συγκεντρώσεις ραδιενεργών ισοτόπων αναμένεται να είναι υψηλότερες.

2.2.3 Επιπτώσεις Αιωρούμενων Σωματιδίων στο περιβάλλον και στην υγεία του ανθρώπου

Στο σημείο αυτό κρίνεται σκόπιμο να τονισθεί ο λόγος για τον οποίο είναι σημαντική η μελέτη της συγκέντρωσης και της συμπεριφοράς των ΑΣ στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα. Όπως έχει αποδειχθεί, η ύπαρξη υψηλών συγκεντρώσεων ΑΣ στην ατμόσφαιρα συνδέεται με επιπτώσεις τόσο στο περιβάλλον όσο και στην υγεία του ανθρώπου (Pope et al., 1995; Osornio-Vargas et al., 2003; Davidson et al., 2005) και για το λόγο αυτό έχουν θεσπισθεί από την Ε.Ε.¹ όρια της συγκέντρωσης ΑΣ στην ατμόσφαιρα. Στις παραγράφους που ακολουθούν γίνεται μία συνοπτική περιγραφή των επιπτώσεων των ΑΣ.

¹ Ευρωπαϊκη Ένωση

2.2.3.1 Επιπτώσεις Αιωρούμενων Σωματιδίων στην υγεία του ανθρώπου

Η μελέτη των επιπτώσεων που έχουν στην υγεία τα αυξημένα επίπεδα συγκεντρώσεων ΑΣ στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα είναι ένας τομέας που παρουσιάζει τα τελευταία χρόνια ραγδαία εξέλιξη. Μελέτες καταδεικνύουν τη συσχέτιση των αυξημένων επιπέδων ΑΣ στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα με διάφορες παθήσεις του αναπνευστικού, καρδιαγγειακά νοσήματα, ή ακόμα και καρκίνο (Dockery et al., 1993; Katsouyanni et al., 1997; Samet et al., 2000; Pope et al., 2002; Osornio-Vargas et al., 2003; Donaldson et al., 2005; Pakbin et al., 2010). Σε κάθε περίπτωση, μία σημαντική παράμετρος είναι το μέγεθος των ΑΣ, καθώς οι διαστάσεις των σωματιδίων έχουν σημαντική επίδραση όχι μόνο στις ιδιότητες και τη σύστασή τους, αλλά και στη διαδικασία και τη θέση απόθεσης στην ανθρώπινη αναπνευστική οδό. Τα ΑΣ ανάλογα με το μέγεθός τους μπορεί να μην εισέλθουν καν στο αναπνευστικό σύστημα, να εισέλθουν και εν συνεχεία να εξέλθουν, ή να εισέλθουν και να αποτεθούν σε κάποιο σημείο του. Εν γένει, όσο πιο μικρό είναι το μέγεθος του ΑΣ τόσο πιο βαθιά αποτίθενται στην αναπνευστική οδό. Συγκεκριμένα, η πλειονότητα των χονδρόκοκκων σωματιδίων, είτε δεν εισέρχεται στο αναπνευστικό σύστημα, είτε εισέρχεται και εναποτίθεται στα ανώτερα στάδια του αναπνευστικού συστήματος, καθώς η κίνησή τους καθορίζεται από δυνάμεις αδράνειας. Τα σωματίδια αυτά στην συνέχεια εξέρχονται από το αναπνευστικό σύστημα, είτε μέσω της εκπνοής είτε μέσω του βήχα και συναφών μηχανισμών. Από την άλλη, τα λεπτόκοκκα σωματίδια καταφέρνουν και εισέρχονται στα βαθύτερα τμήματα του αναπνευστικού συστήματος, παραμένοντας εκεί και ενδεχομένως προκαλώντας βλάβες, καθώς οι τοξικές και καρκινογόνες ενώσεις που ενδεχομένως έχουν προσροφηθεί στην επιφάνειά τους παραμένουν εντός των πνευμόνων.

Ιδιαίτερη σημασία δίνεται στα σωματίδια μεγέθους 2.5 μm, καθώς μελέτες δείχνουν ότι σχετίζονται με καρδιαγγειακά και αναπνευστικά προβλήματα (Osornio-Vargas et al., 2003; Davidson et al., 2005; Bollati et al., 2010; Pakbin et al.,2010). Τα σωματίδια αυτά εμφανίζουν τη μέγιστη ικανότητα εναπόθεσης στις πνευμονικές κυψελίδες, όπου γίνεται ο εμπλουτισμός του αίματος με οξυγόνο, με αποτέλεσμα την είσοδο των ουσιών που φέρουν τα ΑΣ στην κυκλοφορία του αίματος, επηρεάζοντας στη συνέχεια διάφορα ζωτικά όργανα και ιστούς. Πρέπει να τονισθεί ότι η τοξικότητα των σωματιδίων που εναποτίθενται στα διάφορα στάδια της αναπνευστικής οδού, και ιδιαίτερα στους πνεύμονες, εξαρτάται εκτός από το μέγεθος τους και από τη χημική σύσταση και τη μορφολογία τους (Lu et al., 2015; Skuland et al., 2014). Για παράδειγμα, αυξημένες συγκεντρώσεις στοιχειακού άνθρακα στα ΑΣ της ατμόσφαιρας συνδέονται με την αύξηση καρδιαγγειακών και αναπνευστικών νοσημάτων (WHO 2012, Janssen et al., 2011), ενώ τα μεταλλικά στοιχεία ευθύνονται για την πρόκληση βλαβών στο αναπνευστικό σύστημα (Costa and Dreher, 1997; Molinelli et al., 2002) και τα σωματίδια γύρης ενοχοποιούνται για την πρόκληση αλλεργιών. Στην περίπτωση του ραδιενεργού αερολύματος – κάτι που κυρίως ενδιαφέρει στα πλαίσια της Δ.Δ. – τα ΑΣ φορείς ραδιενεργών πυρήνων, μετά την εισπνοή τους μπορεί να αποτεθούν σε κάποιο σημείο της αναπνευστικής οδού με αποτέλεσμα ο οργανισμός να υπόκειται σε εσωτερική ακτινοβόληση και αυξημένη δόση τοπικά, με ότι αυτό μπορεί να συνεπάγεται.

2.2.3.2 Επιπτώσεις Αιωρούμενων Σωματιδίων στο περιβάλλον

Τα Αιωρούμενα Σωματίδια διαδραματίζουν σημαντικό ρόλο στις πολύπλοκες διεργασίες συναλλαγής θερμότητας στην ατμόσφαιρα, καθώς:

 σκεδάζουν την εισερχόμενη προς τη γη υπεριώδη ακτινοβολία με αποτέλεσμα την ψύξη της ατμόσφαιρας,

- απορροφούν την ηλιακή ακτινοβολία (όπως τα σωματίδια αιθάλης) και συνεισφέρουν στην αύξηση της θερμοκρασίας της ατμόσφαιρας,
- απορροφούν τη μεγάλου μήκους κύματος εξερχόμενη από τη γη υπέρυθρη ακτινοβολία, με αποτέλεσμα πάλι την αύξηση της θερμοκρασίας της ατμόσφαιρας.

Επιπλέον, τα ΑΣ ευθύνονται και για τη μείωση της ορατότητας, κυρίως λόγω της ικανότητας των λεπτόκοκκων ΑΣ να σκεδάζουν το ηλιακό φως. Από την άλλη πλευρά, τα υγροσκοπικά σωματίδια δρουν ως πυρήνες συμπύκνωσης και επηρεάζουν τη δημιουργία και τη διάρκεια ζωής των νεφών, το ρυθμό των ατμοσφαιρικών κατακρημνίσεων αλλά και τη χημική σύσταση των σταγόνων της βροχής. Επίσης, δεδομένου ότι στις επιφάνειες των σωματιδίων λαμβάνουν χώρα χημικές αντιδράσεις, τα ΑΣ ενδέχεται να επηρεάζουν την καταστροφή σχετικά ευαίσθητων χημικών μορίων π.χ. του όζοντος ή το σχηματισμό άλλων μορίων (π.χ. υποξείδια του αζώτου). Τέλος, τα αιωρούμενα σωματίδια είναι δυνατό να προκαλέσουν επιφανειακές αλλοιώσεις σε σχεδόν κάθε επιφάνεια του εσωτερικού και εξωτερικού αλλοιώσεις σε μνημεία και κτίρια.

2.3 Κατανομές μεγεθών των Αιωρούμενων Σωματιδίων

Στην περίπτωση που το ενδιαφέρον εστιάζεται σε **μονομεγέθες αερόλυμα** (monodisperse aerosol) το μέγεθος των σωματιδίων εκφράζεται πλήρως από μία και μόνο παράμετρο, τη διάμετρο των σωματιδίων. Στην πραγματικότητα όμως, στις περισσότερες περιπτώσεις τα αερολύματα είναι **πολυμεγέθη** (polydisperse aerosol) και ενδέχεται να περιλαμβάνουν σωματίδια οι διαστάσεις των οποίων κυμαίνονται μέσα σε δύο ή και περισσότερες τάξεις μεγέθους. Δεδομένης αυτής της κύμανσης στα μεγέθη του ατμοσφαιρικού αερολύματος, και λαμβάνοντας υπόψη το γεγονός ότι οι ιδιότητες του αερολύματος επηρεάζονται σημαντικά από το μέγεθός των σωματιδίων που εμπεριέχονται σε αυτό, είναι απαραίτητη η χρήση στατιστικών μεθόδων για την περιγραφή της κατανομής μεγέθους των ΑΣ που εμπεριέχονται σε ένα αερόλυμα.

Η ανάλυση της κατανομής μεγεθών στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα είναι μεγίστης σημασίας για την εν συνεχεία μελέτη του. Στην πραγματικότητα, λόγω του μεγάλου πλήθους πιθανών μεγεθών ΑΣ στο οποίο μπορούν να καταλήξουν οι δειγματοληψίες και οι αναλύσεις του αερολύματος, συνήθως προκύπτει τεράστιος και δύσχρηστος όγκος δεδομένων, που δεν διευκολύνει την περαιτέρω μελέτη των ιδιοτήτων του. Είναι απαραίτητο λοιπόν να χρησιμοποιηθούν κατάλληλες στατιστικές μέθοδοι για την κατηγοριοποίηση και αξιοποίηση των δεδομένων.

Μία πρώτη προσέγγιση προς την κατεύθυνση αυτή είναι ο **διαίρεση του συνολικού εύρους** των μεγεθών των σωματιδίων του αερολύματος σε κλάσεις και η εν συνεχεία προσπάθεια να προσδιορισθεί το πλήθος των σωματιδίων που εμπίπτουν σε κάθε μία από αυτές. Βασική προϋπόθεση αυτής της προσέγγισης είναι οι κλάσεις να είναι συνεχείς. Κάθε κλάση χαρακτηρίζεται είτε από το ανώτερο είτε από το κατώτερο όριο της². Έτσι λοιπόν, η χρήσιμη πληροφορία για την κατανομή μεγέθους καθορίζεται από δύο τιμές: (α) το μέγεθος που χαρακτηρίζει την κάθε κλάση και (β) το πλήθος των σωματιδίων που αντιστοιχούν σε αυτήν. Στην περίπτωση που ένα σωματίδιο βρίσκεται πάνω στο όριο μεταξύ δύο κλάσεων τότε θα ταξινομηθεί στην κλάση η οποία περιλαμβάνει τα σωματίδια με τα υψηλότερα εύρη μεγεθών. Οι κλάσεις συνήθως απεικονίζονται με την μορφή ενός ιστογράμματος σαν αυτό του σχήματος 2.7 που ακολουθεί. Συνήθως, κατά την κατασκευή του ιστογράμματος γίνεται

 $^{^2}$ Συνήθως χαρακτηρίζεται από το ανώτερο όριο. Αυτή η συνθήκη θα τηρηθεί και στα πλαίσια της Δ.Δ.

κανονικοποίηση, διαιρώντας το πλήθος των σωματιδίων σε κάθε κλάση με το εύρος της κλάσης.



Σχήμα 2.7 Ιστόγραμμα που παρουσιάζει την συχνότητα συναρτήσει του μεγέθους των σωματιδίων (Hinds W., 1999)

Γενικά, από την εμπειρία προκύπτει ότι οι κλασσικές στατιστικές κατανομές δεν είναι επαρκείς και εύχρηστες για την περιγραφή του ατμοσφαιρικού αερολύματος. Για το λόγο αυτό συνηθίζεται να χρησιμοποιούνται οι λογαριθμικές κατανομές και σπανιότερα η κανονική κατανομή. Στις παραγράφους που ακολουθούν γίνεται μία συνοπτική παρουσιάση των δύο αυτών βασικών κατανομών που χρησιμοποιούνται στην επιστήμη της μελέτης των ΑΣ. Άλλες πιθανές κατανομές που μπορεί να χρησιμοποιηθούν σε συγκεκριμένες όμως περιπτώσεις είναι: η Rosin-Rammler, η Nukiyama-Tanasawa, η εκθετική, η πολυωνυμική και η Khrgian-Mazin (Hinds, 1999).

2.3.1 Κανονική κατανομή μεγεθών των Αιωρούμενων Σωματιδίων

Η κανονική κατανομή δεν βρίσκει ευρεία χρήση στη μελέτη του ατμοσφαιρικού αερολύματος, καθώς τα ΑΣ που περιέχει ένα αερόλυμα δεν ακολουθούν μία συμμετρική κατανομή. Η κανονική κατανομή θα μπορούσε να χρησιμοποιηθεί για να περιγράψει ένα μονομεγέθες (monodisperse) αερόλυμα, όπως για παράδειγμα σε συγκεκριμένα είδη γύρης και σπορίων και σε ειδικά διαμορφωμένα σφαιρίδια από πολυστυρένιο (Hinds, 1999).

Στην περίπτωση της κανονικής κατανομής η πυκνότητα συχνότητας δίνεται από τη σχέση:

$$df = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} exp\left(-\frac{(d_p - \overline{d_\alpha})^2}{2\sigma^2}\right) dd_\alpha$$
 (Σχέση 2.5)

όπου:

 $\overline{d_{\alpha}}$: ο αριθμητικός μέσος της διαμέτρου των ΑΣ

σ: η τυπική απόκλιση, η οποία δίνεται από την ακόλουθη σχέση:

$$σ = \left(\frac{\sum n_i (d_i - \overline{d_a})^2}{N - 1}\right)^{1/2}$$
(Σχέση 2.6)

Ένα ακόμα σημαντικό πρόβλημα που προκύπτει στην προσπάθεια χρησιμοποίησης της κανονικής κατανομής (Κ.Κ.) για την περιγραφή της κατανομής του ατμοσφαιρικού αερολύματος οφείλεται στο γεγονός ότι η Κ.Κ. είναι δυνατόν να προβλέπει ότι ένα ποσοστό των σωματιδίων έχει αρνητικές τιμές διαμέτρου, γεγονός που φυσικά είναι αδύνατο σύμφωνα με στους νόμους της φυσικής (Hinds, 1999).

2.3.2 Λογαριθμοκανονική κατανομή μεγεθών των Αιωρούμενων Σωματιδίων

Στην περίπτωση της λογαριθμοκανονικής (lognormal) κατανομής αντί του μεγέθους των ΑΣ χρησιμοποιείται ο λογάριθμος του λόγου d_p/d_0 (όπου $d_0=1\mu$ m). Χρησιμοποιώντας τη λογαριθμοκανονική κατανομή επιτυγχάνονται καμπύλες συχνότητας που παρουσιάζουν την συμμετρικότητα της κανονικής κατανομής χωρίς το πρόβλημα των αρνητικών τιμών που αναφέρθηκε στην προηγούμενη παράγραφο. Η κατανομή αυτή χρησιμοποιείται ευρέως στην μελέτη του ατμοσφαιρικού αερολύματος.

Στην περίπτωση της λογαριθμοκανονικής κατανομής η πυκνότητα συχνότητας δίνεται από τη σχέση:

$$df = \frac{1}{\sqrt{2\pi}d_p ln\sigma_g} exp\left(-\frac{\left(lnd_p - lnCMD\right)^2}{2\left(ln\sigma_g\right)^2}\right) dd_p$$
 (Σχέση 2.7)

Όπως διαπιστώνεται από τη σύγκριση των σχέσεων 2.5 και 2.7, η σχέση 2.7 περιλαμβάνει τους λογαρίθμους των μεγεθών της 2.5. Ως προς τα υπόλοιπα μεγέθη της εξίσωσης 2.7:

d_p: η γεωμετρική μέση διάμετρος που δίνεται από την σχέση:

$$lnd_g = \frac{\sum n_i \, lnd_i}{N}$$
 (Σχέση 2.8)

 σ_g : η γεωμετρική τυπική απόκλιση και δίνεται από τη σχέση:

$$ln \sigma_g = (\frac{\sum n_i (ln d_i - ln d_g)^2}{N-1})^{1/2}$$
 (Σχέση 2.9)

CMD: μετρούμενη μέση διάμετρος

Στις σχέσεις που περιγράφουν τη λογαριθμοκανονική κατανομή ΑΣ μπορεί να χρησιμοποιηθεί οποιαδήποτε βάση των λογαρίθμων, στις μελέτες ατμοσφαιρικού αερολύματος όμως συνηθίζεται να χρησιμοποιείται ο φυσικός (νεπέριος) λογάριθμος.

2.4 Ιδιότητες και κινητική του ατμοσφαιρικού αερολύματος

Όπως έχει ήδη αναφερθεί, το ατμοσφαιρικό αερόλυμα αποτελείται από δύο βασικές συνιστώσες· τα αιωρούμενα σωματίδια (είτε στερεά είτε υγρά) και το αέριο μέσα στο οποίο αυτά περιέχονται. Λόγω της φύσης του αερολύματος, η κίνηση των ΑΣ επηρεάζεται σε μεγάλο βαθμό από το αέριο μέσο, καθώς βρίσκονται συνεχώς σε επαφή, με το μέσο να

συνεισφέρει στις όποιες αδρανειακές δυνάμεις επηρεάζουν την κίνηση των ΑΣ, ενώ μεγάλη σημασία έχει και το μέγεθος των ΑΣ. Η ανταλλαγή ενέργειας μεταξύ των ΑΣ και του αερίου λόγω της μεταξύ τους αλληλεπίδρασης έχει ως αποτέλεσμα τα ΑΣ να ακολουθούν την κίνηση Brown (βλέπε παράγραφο 2.4.7.1). Η μελέτη της κίνησης των ΑΣ μπορεί να επιτευχθεί με τη μελέτη της συμπεριφοράς ενός μόνο σωματιδίου του ατμοσφαιρικού αερολύματος. Η μελέτη των ιδιοτήτων των ΑΣ και της συμπεριφοράς τους είναι μεγάλης σημασίας, καθώς μπορούν να οδηγήσουν στην κατασκευή οργάνων για το χαρακτηρισμό του ατμοσφαιρικού αερολύματος, βασιζόμενα στην αδράνεια των ΑΣ. Πριν από τη μελέτη των ΑΣ και τη συμπεριφορά του αερολύματος κρίνεται απαραίτητο να γίνει μία μικρή εισαγωγή ορισμένων σημαντικών μεγεθών από τη ρευστοδυναμική.

2.4.1 Αριθμός Reynolds

Τα ΑΣ κινούνται στο αέριο μέσο στο οποίο βρίσκονται και μπορούν να ακολουθούν τη ροή του, ή και να αποκλίνουν από αυτή, είτε λόγω εξωτερικών δυνάμεων οι οποίες επιδρούν σε αυτά, είτε λόγω αλλαγών στην κατεύθυνση και την ταχύτητα της ροής και στο είδος της (π.χ. στρωτή, τυρβώδης). Το είδος της ροής ενός αερίου εξαρτάται από την αδράνειά του και από τις δυνάμεις συνεκτικότητας που αναπτύσσονται κατά τη διεπαφή του με μία επιφάνεια. Ο αριθμός Reynolds είναι ίσως ο πιο σημαντικός αριθμός για τον χαρακτηρισμό της ροής ενός ρευστού μέσου (είτε αερίου είτε υγρού). Εκφράζει τον λόγο της αδράνειας του αερίου προς την τριβή του αερίου όταν βρίσκεται σε επαφή με μία επιφάνεια. Ο αριθμός Reynolds δίνεται από την σχέση:

$$Re = \frac{\rho_g \cdot u \cdot d}{n} = \frac{u \cdot d}{\eta}$$
(Σχέση 2.10)

όπου:

u: η ταχύτητα του αερίου

n: το δυναμικό ιξώδες του αερίου

η: το κινηματικό ιξώδες του αερίου

- d: η χαρακτηριστική διάσταση ενός σώματος (π.χ. η διάμετρος για τα σφαιρικά σώματα)
- ρg: η πυκνότητα του αερίου

Για ατμοσφαιρική πίεση στον αέρα ίση με 1 atm και θερμοκρασία 20 °C, η σχέση 2.10 μπορεί να γραφεί και ως:

$$Re = 65000 \cdot u \cdot d$$
 (Σχέση 2.11)

Όπου η ταχύτητα u σε m/s και d η χαρακτηριστική διάσταση σε m.

Ο αριθμός Reynolds μπορεί να αναφέρεται είτε στο ρευστό (Re_f) είτε στο σωματίδιο (Re_p). Στην πρώτη περίπτωση ο αριθμός Reynolds εκφράζει τη ροή σε σωλήνα συγκεκριμένης διατομής d, ενώ στη δεύτερη αφορά τη ροή γύρω από σωματίδιο διαμέτρου d_p. Η σχέση 2.10 στην περίπτωση του Re_p σωματιδίου μετασχηματίζεται στην ακόλουθη:

$$Re_p = \frac{\rho_g V d_p}{n}$$
 (Σχέση 2.12)

όπου:

d_p: η διάμετρος του σωματιδίου

V: η σχετική ταχύτητα μεταξύ σωματιδίου και της ροής.

Ανάλογα με τις τιμές που παίρνει ο αριθμός Reynolds προσδιορίζεται και το είδος της ροής. Για χαμηλούς αριθμούς Reynolds (όταν δηλαδή υπερισχύουν οι δυνάμεις συνεκτικότητας) υπάρχει στρωτή ροή του ρευστού. Για υψηλούς αριθμούς (όταν δηλαδή υπερισχύουν οι αδρανειακές δυνάμεις) η ροή χαρακτηρίζεται ως τυρβώδης. Εν γένει, για τιμές Re_f κάτω από 2000 υπάρχει στρωτή ροή, ενώ για τιμές Re_f άνω του 4000 υπάρχει τυρβώδης ροή. Το μέγεθος Re_p παίρνει συνήθως μικρές τιμές. Για την περίπτωση ροής γύρω από σωματίδιο, για Re_p<0.1 η ροή μπορεί να χαρακτηριστεί στρωτή (σχήμα 2.8).



Σχήμα 2.8 Ροή γύρω από σωματίδιο: a) Στρωτή ροή, $Re_p = 0.1$ b) Τυρβώδης ροή, $Re_p \approx 2$ c) Τυρβώδης ροή, $Re_p \approx 250$ (Hinds 1999)

2.4.2 Αριθμός Knudsen

Όπως έχει ήδη αναφερθεί, η κίνηση ενός ΑΣ εξαρτάται κατά κύριο λόγο από τις ιδιότητες του μέσου μέσα στο οποίο κινείται, καθώς και από το μέγεθός του. Υπάρχει ένα μέγεθος που χαρακτηρίζει την κίνηση και τη συμπεριφορά ενός ΑΣ μέσα στο αέριο μέσο στο οποίο περιέχεται, καθώς εκφράζει τις ιδιότητες του αερίου μέσου. Πρόκειται για τη **μέση** ελεύθερη διαδρομή των μορίων του αερίου που συμβολίζεται με το ελληνικό γράμμα «λ». Ως μέση ελεύθερη διαδρομή ορίζεται η απόσταση που διανύει ένα μόριο μέχει να συγκρουστεί με ένα άλλο. Για τον αέρα σε πίεση 1atm και θερμοκρασία 20 °C το μέγεθος λισούται με 0.0664 μm.

Ο αριθμός Knudsen K_n για την κίνηση των ΑΣ μέσα στο αέριο μέσο ορίζεται ως ο λόγος της μέσης ελεύθερης διαδρομής των μορίων του αερίου, προς την ακτίνα r του σωματιδίου. Ο αριθμός Knudsen συνδυάζει τις δύο βασικές παραμέτρους οι οποίες καθορίζουν το είδος της κίνησης των ΑΣ και δίνεται από την σχέση:

$$K_n = \frac{\lambda}{r} = \frac{2\lambda}{d_p}$$
 (Σχέση 2.13)

Ανάλογα με τις τιμές που παίρνει ο αριθμός Knudsen προκύπτει και το είδος της κίνησης των ΑΣ. Για K_n<<1 υπάρχει συνεχής ροή και για K_n>>1 υπάρχει μοριακή κίνηση. Για ενδιάμεσες τιμές (K_n=0.4-20) υπάρχει μεταβατική ροή ή ροή ολίσθησης.

Καθώς τα ΑΣ που βρίσκονται μέσα στο αερόλυμα δέχονται την αλληλεπίδραση των μορίων του αερίου μέσου και ανάλογα με το μέγεθός τους επηρεάζονται σε μεγαλύτερο ή μικρότερο βαθμό. Όταν ένα σωματίδιο έχει διάμετρο μεγαλύτερη από τη μέση ελεύθερη διαδρομή των μορίων ενός αερίου, τότε η κίνησή του μπορεί να θεωρηθεί συνεχής. Το αντίθετο συμβαίνει στην περίπτωση σωματιδίων με μέγεθος μικρότερο από τη μέση ελεύθερη διαδρομή των μορίων του αερίου. Στην περίπτωση αυτή οι συγκρούσεις που πραγματοποιούνται μεταξύ του ΑΣ και των μορίων του αερίου είναι σημαντικές, οπότε και επηρεάζουν την κίνησή τους, καθώς το ΑΣ ενδέχεται να ολισθήσει μεταξύ των μορίων μεταξύ δύο συγκρούσεων. Στην περίπτωση αυτή έχουμε τη λεγόμενη ροή ολίσθησης, η οποία μπορεί να συμβεί για σωματίδια που έχουν πολύ μικρό μέγεθος σε κανονική ατμοσφαιρική πίεση, ή για μεγαλύτερα σωματίδια σε χαμηλή πίεση. Το κατά πόσον υπάρχει ροή ολίσθησης φαίνεται από τον αριθμό Knudsen. Στην περίπτωση που υπάρχει ροή ολίσθησης εισάγεται στις εξισώσεις κίνησης ο παράγοντας διόρθωσης ολίσθησης Cunningham (Hinds, 1999).

2.4.3 Αριθμός Stokes

Όταν ένα σωματίδιο κινείται υπό την επίδραση της βαρύτητας, ο χρόνος που απαιτείται προκειμένου να φτάσει το 1/e της τελικής του ταχύτητας ορίζεται ως **χρόνος ηρεμίας** (relaxation time). Ο χρόνος ηρεμίας δίνεται από τη σχέση 2.14:

$$τ = \frac{\rho_p d_p^{\ 2} C_C}{18\eta}$$
(Σχέση 2.14)

όπου:

ρ_p: η πυκνότητα του σωματιδίου

d_p: η διάμετρος του σωματιδίου

C_c: ο παράγοντας διόρθωσης ολίσθησης

η: το υξώδες του ρευστού

Είναι σύνηθες ένα σωματίδιο που κινείται υπό την επίδραση βαρυτικού πεδίου να μην ξεκινά από την ηρεμία, αλλά να έχει ήδη μία αρχική ταχύτητα ν₀. Στην περίπτωση αυτή ορίζεται το μέγεθος **απόσταση ακινητοποίησης (stopping distance, S)** που εκφράζει την απόσταση που μπορεί να απομακρυνθεί ένα σωματίδιο από την αρχική ροή σε μία απότομη αλλαγή της φοράς της ροής. Το μέγεθος S υπολογίζεται ως το γινόμενο της αρχικής ταχύτητας ν₀ και του χρόνου ηρεμίας τ του σωματιδίου (σχέση 2.15).

$$S = v_0 \tau$$
 (Σχέση 2.15)

Ο **αριθμός Stokes** ορίζεται εν συνεχεία ως ο λόγος της απόστασης ακινητοποίησης *S* προς ένα χαρακτηριστικό μέγεθος *d*, και υπολογίζεται από τη σχέση 2.16.

$$Stk = \frac{S}{d}$$
 (Σχέση 2.16)

Ο αριθμός Stokes είναι ιδιαίτερα σημαντικός σε περιπτώσεις συλλογής δείγματος αερολύματος, όπου υπάρχουν απότομες αλλαγές στις συνθήκες ροής. Στις περιπτώσεις αυτές το χαρακτηριστικό μέγεθος d εξαρτάται από την τεχνική δειγματοληψίας. Στην περίπτωση που η συλλογή αερολύματος γίνεται σε φίλτρο – όπως συμβαίνει και στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. – το μέγεθος d αντιστοιχεί στη διάμετρο της ίνας του φίλτρου.

Ο αριθμός Stokes παρέχει πληροφορίες για την κίνηση που ακολουθεί το σωματίδιο. Στην περίπτωση που Stk<<1 το σωματίδιο ακολουθεί την ροή του αερίου. Αν ο αριθμός Stokes είναι πολύ μεγαλύτερος από 1 τότε το σωματίδιο κατά την αλλαγή της φοράς της ροής ακολουθεί ευθύγραμμη πορεία.
2.4.4 Το φαινόμενο Kelvin

Ως **τάση ατμών** ορίζεται η ελάχιστη μερική πίεση των ατμών ενός υγρού που πρέπει να διατηρηθεί για να μην υπάρχει περαιτέρω εξάτμιση υγρού, και είναι μία ιδιότητα που εξαρτάται από τη θερμοκρασία. Ο παραπάνω ορισμός της τάσης ατμών αναφέρεται σε επίπεδες επιφάνειες.

Ένα συναφές μέγεθος είναι ο **λόγος κορεσμού S**_R, ο οποίος ορίζεται ως ο λόγος της μερικής πίεσης προς την τάση ατμών. Για τιμές του λόγου κορεσμού μεγαλύτερες από 1 το μείγμα είναι υπέρκορο ενώ για τιμές μικρότερες από 1 είναι ακόρεστο.

Στην περίπτωση σφαιρικής επιφάνειας (όπως για παράδειγμα για ένα σταγονίδιο), για τη διατήρηση της ισορροπίας, η τάση ατμών πρέπει να αυξηθεί, με το ποσοστό της αύξησης να είναι αντιστρόφως ανάλογο με το μέγεθος του σταγονιδίου. Το φαινόμενο αυτό ονομάζεται **φαινόμενο Kelvin**.

Συγκεκριμένα, για τη διατήρηση της ισορροπίας ο λόγος κορεσμού για ένα σωματίδιο διαμέτρου d_p δίνεται από την σχέση:

$$S_R = \exp(\frac{4\gamma M}{\rho RT d_p})$$
 (Σχέση 2.17)

όπου:

γ: η επιφανειακή τάση

ρ: η πυκνότητα του σωματιδίου

Μ: το μοριακό βάρος

Στο σχήμα 2.9 φαίνεται η εξάρτηση του λόγους κορεσμού από το μέγεθος σταγόνας για καθαρό νερό και διάφορα διαλύματα NaCl.



Σχήμα 2.9 Λόγος κορεσμού συναρτήσει του μεγέθους σταγόνας για καθαρό νερό και διάφορα διαλύματα NaCl (Hinds 1999)

2.4.5 Δυνάμεις εντός του αερολύματος

Οι δυνάμεις που αναπτύσσονται πάνω σε ένα σωματίδιο του αερολύματος, ή μεταξύ διακριτών σωματιδίων εξαρτώνται από τις ιδιότητες των ΑΣ, τις ιδιότητες του αερίου στο οποίο βρίσκονται και από παραμέτρους που σχετίζονται με τα διακριτά σωματίδια (σχετική ταχύτητα, χρόνος επαφής). Στις παραγράφους που ακολουθούν θα δοθεί συνοπτική περιγραφή των βασικών δυνάμεων που αναπτύσσονται κατά την κίνηση των ΑΣ μέσα στο αερόλυμα.

2.4.5.1 Δυνάμεις συνάφειας (adhesion forces)

Όταν τα ΑΣ έρχονται σε επαφή μεταξύ τους συγκρατούνται και σχηματίζουν συσσωματώματα (agglomerates). Το ίδιο φαινόμενο παρατηρείται όταν έρχονται σε επαφή με κάποια επιφάνεια. Το φαινόμενο αυτό συμβαίνει λόγω των **ελκτικών δυνάμεων London/van der Waals.** Αιωρούμενα σωματίδια με αεροδυναμική διάμετρο μεγαλύτερη ή ίση με 0.1 μm μπορούν να αναπτύξουν φορτίο τέτοιο ώστε να αναπτυχθεί ελκτική δύναμη, η οποία είναι αντιστρόφως ανάλογη του τετραγώνου της μεταξύ τους απόστασης. Ως αποτέλεσμα, όταν δύο αιωρούμενα σωματίδια έρθουν σε πολύ μικρή απόσταση οι ελκτικές δυνάμεις μεταξύ τους αυξάνονται. Στην περίπτωση μάλιστα που πρόκειται για υγροσκοπικά σωματίδια τα οποία έχουν στην επιφάνειά τους στρώμα νερού, στις ελκτικές δυνάμεις προστίθεται και η τάση του υγρού με αποτέλεσμα οι ελκτικές δυνάμεις να αυξάνονται περισσότερο.

2.4.5.2 Δυνάμεις αποκόλλησης

Ακολουθώντας τον αντίστροφο μηχανισμό των ελκτικών δυνάμεων, με την εφαρμογή κατάλληλων δυνάμεων γίνεται εφικτή η αποκόλληση ενός σωματιδίου από συσσωμάτωμα ή από επιφάνεια. Οι δυνάμεις αυτές μπορεί να οφείλονται σε δόνηση, φυγοκέντριση, ή απλά να είναι δυνάμεις που ασκούνται από το αέριο του αερολύματος. Το είδος και η ένταση της δύναμης που θα ασκηθεί ώστε να υπάρξει αποκόλληση εξαρτάται από τις διαστάσεις του σωματιδίου και από την επιφάνεια πάνω στην οποία αυτό είναι προσκολλημένο. Όσο μεγαλύτερο είναι ένα σωματίδιο, τόσο πιο δύσκολη είναι η αποκόλλησή του. Το φαινόμενο της αποκόλλησης ενδέχεται να προκαλέσει προβλήματα σε πειράματα που βασίζονται στις μετρήσεις ΑΣ, καθώς τα σωματίδια επιστρέφουν με αυτό τον τρόπο πίσω στη ροή.

2.4.5.3 Οπισθέλκουσα – drag force

Οι δυνάμεις συνεκτικότητας του ρευστού είναι υπεύθυνες για την ανάπτυξη τάσης στην επιφάνεια των ΑΣ η οποία αντιτίθεται στην κίνηση του. Η δύναμη αυτή ονομάζεται οπισθέλκουσα και δίνεται από την σχέση που ακολουθεί:

$$D = \frac{\pi}{8} C_d V^2 \rho_g^2$$
 (Σχέση 2.18)

όπου:

Cd: η σταθερά αντίστασης

V: η ταχύτητα της σφαίρας

ρ_g: η πυκνότητα του αερίου

Η σχέση 2.18 λαμβάνει υπόψη μόνο την αδράνεια του αερίου και θεωρεί το ιξώδες αμελητέο. Η σταθερά αντίστασης C_d θεωρείται σταθερή για μεγάλους αριθμούς Reynolds (Re>1000). Για μικρότερες τιμές του αριθμού Re οι δυνάμεις συνεκτικότητας (οφείλονται στο ιξώδες του ρευστού) δεν μπορούν να θεωρηθούν αμελητέες. Όταν η ροή είναι σταθερή, οι δυνάμεις της τριβής υπερισχύουν οπότε και οι αδρανειακές δυνάμεις (αυτές δηλαδή που απομακρύνουν τα μόρια του αέρα από το κινούμενο σωματίδιο) μπορούν να θεωρηθούν αμελητέες.

Στην περίπτωση που οι αδρανειακές δυνάμεις λόγω της διαφοράς ταχύτητας ανάμεσα στο κινούμενο σωματίδιο και στον αέρα, είναι πολύ μικρότερες εν συγκρίσει με την αντίσταση λόγω ιξώδους, τότε η σταθερά της αντίστασης C₀δίνεται από την ακόλουθη σχέση:

$$c_d = \frac{24}{Re_p}$$
 (Σχέση 2.19)

Η παραπάνω σχέση ισχύει μόνο για τις περιπτώσεις στρωτής ροής, δηλαδή για τιμές του $Re_p<0.1.$

Από τις σχέσεις 2.18, 2.19, 2.12 προκύπτει η ακόλουθη σχέση για την οπισθέλκουσα, η οποία ισχύει για στρωτή ροή γύρω από συμπαγή σφαίρα:

$$D = 3 \pi \eta V d_p$$
(Σχέση 2.20)

όπου:

η: το ιξώδες του αερίου

V: η ταχύτητα του σωματιδίου

d_p: η διάμετρος του σωματιδίου

Η εξίσωση 2.20 είναι γνωστή ως **νόμος του Stokes**. Σύμφωνα με τον νόμο του Stokes, η κίνηση ενός αερίου γύρω από ένα σωματίδιο εξαρτάται από το ιξώδες του αερίου, την ταχύτητα και την διάμετρο του σωματιδίου.

Όπως ήδη έχει αναφερθεί, μία βασική προϋπόθεση για να ισχύει ο νόμος του Stokes είναι η σχετική ταχύτητα του αερίου στην επιφάνεια του σωματιδίου να ισούται με το μηδέν. Η συνθήκη αυτή δεν μπορεί να ισχύσει για πολύ μικρά σωματίδια, με μέγεθος συγκρίσιμο με την μέση ελεύθερη διαδρομή των μορίων του αερίου. Στην περίπτωση αυτή εισάγεται στην εξίσωση 2.20 συντελεστής διόρθωσης *C*_c, γνωστός ως **συντελεστής διόρθωσης ολίσθησης Cunningham**. Έτσι, η σχέση 2.20 μετασχηματίζεται στην ακόλουθη:

$$D = \frac{3 \pi \eta V d_p}{c_c}$$
 (Σχέση 2.21)

2.4.6 Αναπήδηση σωματιδίων (bouncing effect)

Η πορεία που θα ακολουθήσουν τα ΑΣ ενός αερολύματος, δηλαδή το κατά πόσον θα ακολουθήσουν τη ροή του αερίου ή όχι, εξαρτάται από την αδράνεια τους. Όταν η ροή ενός αερολύματος είναι τέτοια που να κατευθύνεται προς μία επιφάνεια, τα σωματίδια που θα έχουν αρκετή αδράνεια θα προσπίπτουν σε αυτήν και μπορεί να προσκολληθούν σε αυτήν εάν είναι υγρά ή κολλώδη. Κατά την πρόσκρουση ενός ΑΣ σε μία επιφάνεια μπορεί αυτό να παραμορφωθεί στιγμιαία και μετά να επανέλθει στην αρχική του κατάσταση. Στην περίπτωση που η δύναμη επαναφοράς είναι μεγαλύτερη της δύναμης προσκόλλησης, το σωματίδιο μπορεί τελικά να αναπηδήσει στην επιφάνεια. Το φαινόμενο αυτό εντείνεται όσο αυξάνεται η ταχύτητα του σωματιδίου. Η αναπήδηση των σωματιδίων αποτελεί ιδιαίτερο πρόβλημα κατά τις δειγματοληψίες αερολυμάτων. Για την αντιμετώπισή της συνηθίζεται ως πρακτική η επίστρωση της επιφάνειας πρόσκρουσης με μία λιπαρή ουσία, ώστε να μειώνεται η πιθανότητα αναπήδησης. Το πρόβλημα όμως δεν εξαλείφεται πλήρως, καθώς είναι δυνατό να δημιουργηθεί ένα στρώμα σωματιδίων πάνω στην επιφάνεια δειγματοληψίας, οπότε τα νέα προσπίπτοντα στην επιφάνεια σωματίδια θα μπορούσαν ενδεχομένως να αναπηδήσουν σε αυτά που έχουν ήδη αποτεθεί σε αυτήν.

2.4.7 Κίνηση σωματιδίων μέσα σε αέρια

Όπως έχει προαναφερθεί, τρείς είναι οι βασικοί μηχανισμοί που επιδρούν στην κίνηση ενός σωματιδίου· η διάχυση, η βαρυτική καθίζηση και η αδρανειακή κίνηση. Στην περίπτωση που υπάρχει και κάποιο άλλο πεδίο δύναμης (π.χ. ηλεκτρικό πεδίο), τότε μπορεί να

υπάρξουν και άλλοι μηχανισμοί κίνησης του ΑΣ εντός πεδίου, ενώ υπό ορισμένες συνθήκες ενδέχεται να αναπτυχθούν και άλλες δυνάμεις (πχ θερμοφόρεση, φωτοφόρεση κλπ).

Αυτό που κατά βάση καθορίζει τον τρόπο με τον οποίο κινούνται τα σωματίδια είναι το μέγεθος τους. Τα σωματίδια συμπεριφέρονται διαφορετικά, ανάλογα με το μέγεθός τους και υπόκεινται και σε διαφορετικούς φυσικούς νόμους. Κοντά στην επιφάνεια της γης τα σωματίδια που είναι λίγο μικρότερα από τα μόρια του αέρα κινούνται λόγω κίνησης Brown, ενώ τα μεγαλύτερα σωματίδια κινούνται λόγω βαρυτικών και αδρανειακών δυνάμεων.

Αναφορικά με την κίνηση ενός ΑΣ μέσα στο αέριο που το περιέχει, δακρίνονται τρείς καταστάσεις, ανάλογα με το μέγεθος και τα χαρακτηριστικά των ΑΣ:

- Ελεύθερη μοριακή περιοχή (free molecular regime). Σε αυτήν βρίσκονται ΑΣ μικρού μεγέθους, συνήθως > 1 μm και κυρίως > 0.1 μm. Τα σωματίδια αυτά λόγω του μικρού τους μεγέθους επηρεάζονται ισχυρά από την κίνηση των μορίων του αερίου μέσου.
- Μεταβατική περιοχή (transition regime). Σε αυτή την βρίσκονται τα ενδιαμέσου μεγέθους σωματίδια. Για την περιγραφή της κίνησής τους συνήθως χρησιμοποιούνται οι εξισώσεις που περιγράφουν την κίνηση των ΑΣ της ελεύθερης μοριακής περιοχής, χρησιμοποιώντας ορισμένους συντελεστές διόρθωσης.
- Συνεχής περιοχή (continuum regime). Σε αυτήν βρίσκονται τα μεγαλύτερα σε μέγεθος σωματίδια, τα οποία συμπεριφέρονται σαν να βρίσκονται σε ένα συνεχές ρευστό.

Σε κάθε περίπτωση, ανεξάρτητα από την περιοχή που κατηγοριοποιείται η κίνηση ενός σωματιδίου, είναι η κίνηση του αερίου που καθορίζει και την συμπεριφορά του σωματιδίου.

2.4.7.1 Κίνηση λόγω διάχυσης (κίνηση Brown)

Η κίνηση Brown αφορά κυρίως σωματίδια μικρού μεγέθους τα οποία παρασύρονται από το αέριο στο οποίο περιέχονται και διαχέονται με τον ίδιο τρόπο που κινούνται τα μόρια του μέσου. Όσο αυξάνεται το μέγεθος των σωματιδίων, τόσο αυξάνεται και η αδράνεια τους, και κατά συνέπεια τόσο μειώνεται και η ικανότητα διάχυσής τους. Για τον αέρα υπολογίζεται η σταθερά διάχυσης από τη σχέση:

$$D = \frac{kTC}{3\pi\eta d_p} = kTB$$
 (Σχέση 2.22)

όπου:

k: η σταθερά του Boltzmann

Τ: η θερμοκρασία

C: η συγκέντρωση των σωματιδίων

η: το ιξώδες

d_p: η διάμετρος του σωματιδίου

B (N·m/K): η μηχανική κινητικότητα, ιδιότητα συνολικά του αερολύματος που συνδυάζει ιδιότητες των σωματιδίων αλλά και του αερίου.

2.4.7.2 Ταχύτητα κατακρήμνισης

Όπως προαναφέρθηκε, στα ΑΣ ασκούνται και δυνάμεις λόγω της βαρύτητας. Η βαρυτική δύναμη δίνεται από τη σχέση:

$$F_{grav} = m_p g = (\rho_p - \rho_g) v_p g \cong \rho_p v_p g$$
(Σχέση 2.23)

όπου:

- ρ_p: η πυκνότητα του σωματιδίου
- ν_p: ο όγκος του σωματιδίου
- g: η επιτάχυνση της βαρύτητας
- ρ_g: η πυκνότητα του αερίου

Με τη θεώρηση σφαιρικού σωματιδίου (με όγκο $v_p = \pi d_p^3/6$) η σχέση 2.23 μετασχηματίζεται στην ακόλουθη:

$$F_{grav} = \frac{\pi}{6} d_p{}^3 \rho_p g$$
 (Σχέση 2.24)

Όταν ένα σωματίδιο κινείται μόνο υπό την επίδραση βαρυτικής δύναμης, η μοναδική δύναμη η οποία αντιτίθεται στην κίνηση είναι η οπισθέλκουσα F_D. Κατά την πορεία του σωματιδίου και μετά από κάποιο χρονικό διάστημα, οι δυνάμεις αυτές ισορροπούν, οπότε και το σωματίδιο αποκτά την τελική ταχύτητα κατακρήμνισής του v_{ts}. Κατά συνέπεια, υπό την προϋπόθεση ότι η ροή είναι στρωτή (Re_p< 0.1), για την τελική ταχύτητα κατακρήμνισης v_{ts} ενός σφαιρικού σωματιδίου ισχύει:



Σχήμα 2.10 Σχηματική απεικόνιση τάσεων που ασκούνται κατά την κίνηση σωματιδίου υπό την επίδραση βαρυτικών δυνάμεων (Baron and Willeke, 2001)

2.5 Αρχές δειγματοληψίας ατμοσφαιρικού αερολύματος

Κατά τη μελέτη των ΑΣ, δεδομένου ότι αυτά κινούνται μέσα σε ένα αέριο μέσο, είναι πολύ σημαντικό το να προσδιορισθούν καταρχήν οι ιδιότητες και η κίνηση του αερίου, καθώς οι ιδιότητες και η κίνηση των ΑΣ περιγράφονται εν σχέση με το αέριο μέσο το οποίο τα περιέχει. Οι όποιες διαφοροποιήσεις παρατηρούνται στην κίνηση που ακολουθούν τα ΑΣ και τα μόρια του αερίου (στις ατμοσφαιρικές μελέτες το μέσο είναι ο ατμοσφαιρικός αέρας) είναι η βάση στην οποία στηρίζουν την αρχή λειτουργίας τους πολλά όργανα μέτρησης ΑΣ. Συγκεκριμένα, όταν ένα σωματίδιο του αερολύματος πραγματοποιεί κίνηση υπό την επίδραση μίας δύναμης, αναπτύσσει ταχύτητα η οποία το κάνει να ξεπερνάει την αδράνεια του. Καθώς η αδράνεια είναι ανάλογη του μεγέθους του σωματιδίου, η ταχύτητα που αναπτύσσει το ΑΣ εξαρτάται από το μέγεθός του. Την αρχή αυτή εκμεταλλεύονται πολλά από τα όργανα μέτρησης μεγέθους σωματιδίων, τα οποία για το λόγο αυτό ονομάζονται και αδρανειακοί συλλέκτες.

2.5.1 Δειγματολήπτες ατμοσφαιρικού αερολύματος

Για τη συλλογή αερολύματος με στόχο τη μελέτη των ΑΣ χρησιμοποιούνται ειδικοί δειγματολήπτες. Ανάλογα με το κλάσμα στο οποίο ανήκουν τα προς μελέτη ΑΣ και το ειδικό χαρακτηριστικό των ΑΣ που εξετάζεται (όπως για παράδειγμα η συγκέντρωση ραδιενεργών ισοτόπων στην επιφάνειά των ΑΣ) χρησιμοποιούνται διάφορες διατάξεις (με διαφορετικές παροχές αέρα, φίλτρα συλλογής κλπ). Βέβαια, λόγω του μεγάλου εύρους μεγεθών των ΑΣ (μπορούν να κυμαίνονται από 0.01 μm ως και 100 μm) δεν είναι εφικτή η λήψη της πληροφορίας του μεγέθους των σωματιδίων του αερολύματος για όλη την περιοχή μεγεθών από ένα μόνο όργανο. Σε κάθε περίπτωση όμως ένα βασικό σύστημα συλλογής αερολύματος περιλαμβάνει τις κάτωθι συνιστώσες:

- 1. Το ακροφύσιο (inlet), από το οποίο γίνεται η εισαγωγή του αερολύματος από την ατμόσφαιρα στον δειγματολήπτη
- Σύστημα κατάλληλα σχεδιασμένων αγωγών το οποίο μεταφέρει το δείγμα από το ακροφύσιο στο σημείο συλλογής
- 3. Το σημείο συλλογής (το μέσο πάνω στο οποίο συλλέγονται τα ΑΣ)

Υπάρχουν δύο ειδών δειγματολήπτες: οι παθητικοί και οι ενεργητικοί. Ως **παθητικοί** δειγματολήπτες ορίζονται αυτοί που δεν εξαναγκάζουν τη ροή του αερολύματος από το περιβάλλον στον δειγματολήπτη, οπότε για τη συλλογή δείγματος βασίζονται στον μηχανισμό της βαρυτικής καθίζησης. Στον αντίποδα βρίσκονται οι ενεργητικοί δειγματολήπτες οι οποίοι διαθέτουν σύστημα με αντλία για τον εξαναγκασμό της ροής και τη συλλογή αερολύματος από την ατμόσφαιρα. Στη συνέχεια θα αναλυθεί η βασική αρχή λειτουργίας ενός ενεργητικού δειγματολήπτη, καθώς αυτός είναι ο τύπος του δειγματολήπτη που χρησιμοποιήθηκε στα πλαίσια της Δ.Δ.

Σε έναν ενεργητικό δειγματολήπτη, κατά τον εξαναγκασμό της ροής το αερόλυμα συνήθως αλλάζει πορεία προκειμένου να εισέλθει στον δειγματολήπτη. Τα ΑΣ εν γένει ακολουθούν την πορεία του αερίου μέσου, αλλά ενδέχεται ορισμένα από αυτά να μην ακολουθήσουν την αλλαγή πορείας κατά την είσοδο στο δειγματολήπτη. Το γεγονός αυτό έχει να κάνει με το μέγεθος των σωματιδίων (εν τέλει με την αδράνεια τους). Ως αποτέλεσμα, ενώ τα μικρότερου μεγέθους σωματίδια ακολουθώντας την πορεία του αερίου μέσου εισέρχονται στον δειγματολήπτη, τα μεγαλύτερου μεγέθους σωματίδια ενδέχεται να συνεχίσουν ανεπηρέαστα την αρχική τους πορεία και να μην συλλεχθούν από το δειγματολήπτη. Για το λόγο αυτό ορίζεται το μέγεθος **απόδοση ακροφυσίου (inlet efficiency)** ως ο λόγος του πλήθους των σωματιδίων τα οποία, ακολουθώντας την πορεία του αερίου μέσου εισέρχονται στον δειγματολήπτη, προς το συνολικό πλήθος των σωματιδίων του αερολύματος. Επιπλέον, ορίζεται το μέγεθος απόδοση αναρρόφησης (aspiration efficiency) ως ο λόγος της ταχύτητας ελεύθερης ροής του αερίου (U₀) προς την ταχύτητα δειγματοληψίας (U). Ιδανικά, για μία αντιπροσωπευτική δειγματοληψία, η απόδοση αναρρόφησης πρέπει να είναι όσο γίνεται πιο κοντά στην μονάδα, ελαχιστοποιώντας τις απώλειες ΑΣ. Πάντως, ακόμα και στην περίπτωση που η απόδοση αναρρόφησης ισούται με την μονάδα, υπάρχει απώλεια σωματιδίων μεγαλύτερου μεγέθους κατά την είσοδό τους στον δειγματολήπτη. Πέρα από τις απώλειες στην είσοδο του δειγματολήπτη, ενδέχεται να υπάρχουν και απώλειες ΑΣ τα οποία λόγω αδρανειακών, βαρυτικών και δυνάμεων διάχυσης μπορεί να οδηγηθούν στα τοιχώματα του συστήματος αγωγών του δειγματολήπτη. Οι απώλειες αυτές χαρακτηρίζονται από το μέγεθος της **απόδοσης** μεταφοράς (transport efficiency). Συνολικά, η **απόδοση δειγματοληψίας** είναι το γινόμενο των δύο επιμέρους αποδόσεων: της απόδοσης αναρρόφησης και της απόδοσης μεταφοράς. Οι αποδόσεις αυτές εξαρτώνται από την αρχική ταχύτητα του περιβάλλοντος αερίου U₀, τη γεωμετρία, το μέγεθος και την θέση της εισόδου, την ταχύτητα του αερίου δείγματος U και την αεροδυναμική διάμετρο του σωματιδίου.

Δεδομένου ότι οι αδρανειακές δυνάμεις διαδραματίζουν σημαντικό ρόλο στις διεργασίες συλλογής αερολύματος, ένα σύστημα δειγματοληψίας είναι ικανό να πραγματοποιήσει χαρακτηριστική δειγματοληψία (δηλαδή το συλλεγόμενο αερόλυμα που αποτελεί και το προς μελέτη δείγμα, να προσομοιάζει στο αερόλυμα της ατμόσφαιρας) για συγκεκριμένο μόνο εύρος μεγεθών ΑΣ. Όπως έχει ήδη αναφερθεί το μεγάλο μέγεθος των ΑΣ του αερολύματος ευνοεί τις αδρανειακές και τις βαρυτικές δυνάμεις με αποτέλεσμα τη δυσκολία στη συλλογή τους. Από την άλλη, τα μικρά σωματίδια επηρεασμένα κι αυτά με τη σειρά τους από δυνάμεις διάχυσης αντιμετωπίζουν κι αυτά τα αντίστοιχα προβλήματα. Οι αδρανειακές, βαρυτικές και οι δυνάμεις διάχυσης οι οποίες επηρεάζουν τη συλλογή ΑΣ καθορίζονται από την ταχύτητα με την οποία πραγματοποιείται η δειγματοληψία. Πολύ υψηλή ταχύτητα θα έχει ως αποτέλεσμα τα μεγάλου μεγέθους σωματίδια, τα οποία λόγω αδράνειας αντιστέκονται στις μεταβολές της ροής του αερίου, να μην προλάβουν να ακολουθήσουν την ροή και να μην συλλεγούν. Από την άλλη, η ταχύτητα θα πρέπει να είναι σι η δειγματοληψία (Davies 1968).

Ένας άλλος παράγοντας που εισάγει προβλήματα στη δειγματοληψία ατμοσφαιρικού αερολύματος είναι και η **ηλεκτρική φόρτιση των σωματιδίων**. Το πρόβλημα αυτό ελαχιστοποιείται με τη χρήση αγώγιμων υλικών στην κατασκευή του δειγματολήπτη, που ελαχιστοποιούν τις ηλεκτροστατικές δυνάμεις.

Γενικά, υπάρχουν πολλοί παράγοντες που μπορούν να εισάγουν σφάλματα στην δειγματοληψία αερολύματος. Συνοψίζοντας, οι βασικότεροι είναι:

Ως προς τα ΑΣ:

- Ανομοιογένεια στα μεγέθη ΑΣ του περιβάλλοντος
- Συσσωματώματα, συμπύκνωση, εξάτμιση ΑΣ κατά την μεταφορά τους εντός του δειγματολήπτη, φαινόμενα που επηρεάζουν το μέγεθος των ΑΣ και άρα και τις αδρανειακές τους ιδιότητες
- Αναπήδηση ΑΣ (bouncing effect) στο σύστημα μεταφοράς εντός του δειγματολήπτη, και στο σύστημα συλλογής τους
- Ανομοιογενής συγκέντρωση ΑΣ στην είσοδο, στους σωλήνες μεταφοράς και στο μέσο συλλογής, γεγονός που ενδέχεται να οδηγήσει σε μείωση της ροής του αερολύματος

Ως προς το σύστημα συλλογής αερολύματος:

- Η απόδοση αναρρόφησης του δειγματολήπτη
- Η απόδοση του ακροφυσίου του δειγματολήπτη
- Η απόθεση ΑΣ στο σύστημα μεταφοράς του δείγματος εντός του δειγματολήπτη (από το ακροφύσιο ως το μέσο συλλογής)
- Τυρβώδης ροή κατά τη δειγματοληψία, γεγονός που ευνοεί τις συγκρούσεις μεταξύ των ΑΣ αλλά και με τα τοιχώματα του δειγματολήπτη

Η μεγιστοποίηση των αποδόσεων του συστήματος συλλογής αερολύματος δεν είναι ιδιαίτερα εύκολη, καθώς εξαρτάται από το μέγεθος των συλλεγόμενων σωματιδίων. Σε κάθε περίπτωση όμως, μειώνοντας τη διαδρομή που θα ακολουθήσει το αερόλυμα από το

σύστημα εισόδου του δειγματολήπτη στο τελικό μέσο συλλογής αυξάνεται η απόδοση του συστήματος, καθώς μειώνονται οι απώλειες ΑΣ κατά τη μεταφορά.

Για την επίτευξη δειγματοληψίας όσο το δυνατόν χαρακτηριστικότερου δείγματος του αερολύματος μέσω ακροφυσίου, επιλέγεται το ακροφύσιο να είναι όσο το δυνατόν παράλληλα με τη ροή του αερολύματος (**ισοαξονική-isoaxial-δειγματοληψία**). Σε αντίθετη περίπτωση μιλάμε για **ανισοαξονική (anisoaxial) δειγματοληψία**. Επίσης, σημαντικό είναι να επιτευχθεί η λεγόμενη **ισοκινητική ροή**. Αυτό συμβαίνει όταν η ταχύτητα της ροής δειγματοληψίας ισούται με την ταχύτητα ελεύθερης ροής του αερολύματος. Στην αντίθετη περίπτωση μιλάμε για **ανισοκινητική (anisokinetic) ροή**. Έτσι, ανάλογα με την ταχύτητα με την οποία γίνεται η συλλογή του αερολύματος η δειγματοληψία μπορεί να χαρακτηριστεί ως ισοκινητική, υπο-ισοκινητική ή υπερ-ισοκινητική. Το σχήμα 2.11(α και β) παρουσιάζει τα είδη της ισοαξονικής και ανισοαξονικής ροής.

Στην περίπτωση ισοκινητικής δειγματοληψίας (ισχύει κανονικά για στρωτή ροή αλλά με ικανοποιητική ακρίβεια και σε συνθήκες τυρβώδους ροής) ισχύει εξ'ορισμού U=U₀ και η απόδοση αναρρόφησης ισούται με τη μονάδα. Στην περίπτωση υπο **ισοκινητικής δειγματοληψίας**, σωματίδια μεγαλύτερου μεγέθους που βρίσκονται εκτός ροής, λόγω των μεγάλων τιμών της αδράνειας τους, ενδέχεται να εισέλθουν σε αυτήν και να συλλεχθούν από τον δειγματολήπτη, αυξάνοντας την απόδοση αναρρόφησης (που λαμβάνει τιμές > 1) και αυξάνεται με την αύξηση του μεγέθους των σωματιδίων του αερολύματος).



Σχήμα 2.11.α Ισοαξονική δειγματοληψία με, a) ταχύτητα ροής = ταχύτητα δειγματοληψίας (ισοκινητική), b) ταχύτητα ροής > ταχύτητα δειγματοληψίας (υπο-ισοκινητική), c) ταχύτητα ροής < ταχύτητα δειγματοληψίας (υπερ-ισοκινητική) (Baron and Willeke, 2001)



Σχήμα 2.11.β Ανισοαξονική δειγματοληψία με, a) ταχύτητα ροής = ταχύτητα δειγματοληψίας (ισοκινητική), b) ταχύτητα ροής > ταχύτητα δειγματοληψίας (υπο-ισοκινητική), c) ταχύτητα ροής < ταχύτητα δειγματοληψίας (υπερ-ισοκινητική) (Baron and Willeke, 2001)

Τέλος, για υπέρ-ισοκινητική δειγματοληψία, σωματίδια μεγάλου μεγέθους και άρα μεγάλης αδράνειας που βρίσκονται εντός της ροής ενδέχεται να εξέλθουν αυτής. Επιπλέον, ακόμα και όσα εισέλθουν στον δειγματολήπτη ενδέχεται να συγκρουστούν με τα εξωτερικά τοιχώματα του δειγματολήπτη, οπότε, το κατά πόσον θα συλλεγούν ή όχι τελικά εξαρτάται από την αδράνειά τους (Lipatov et al. 1988; James H. Vincent 2007). Αποτέλεσμα είναι να μη συλλεχθούν από τον δειγματολήπτη, μειώνοντας έτσι την απόδοση αναρρόφησης (τιμές μικρότερες της μονάδας) η οποία έχει την τάση να μειώνεται όσο αυξάνεται το μέγεθος των σωματιδίων του αερολύματος. Το φαινόμενο της αναπήδησης και οι πιθανές συνέπειές του φαίνεται στο σχήμα 2.12 που ακολουθεί.



Σχήμα 2.12 Φαινόμενο της αναπήδησης σε στο εξωτερικό τοίχωμα της εισόδου δειγματολήπτη (James H. Vincent 2007)

Βάσει των ανωτέρω, είναι εμφανές ότι είναι επιθυμητή η επίτευξη ισοκινητικής δειγματοληψίας η οποία επιτρέπει την όσο το δυνατόν αντιπροσωπευτικότερη συλλογή αερολύματος. Πέραν των θεμάτων της αδράνειας που εισάγει η διαφοροποίηση της ταχύτητας δειγματοληψίας από την ταχύτητα της ροής του αερολύματος υπάρχουν και άλλα προβλήματα, όπως οι απώλειες ΑΣ λόγω σύγκρουσής τους με τα τοιχώματα του δειγματολήπτη (Liu et al. 1989), αλλά και οι απώλειες λόγω βαρυτικής εναπόθεσης και της ανατάραξης της ροής του αερίου (Okazaki & Willeke 1987; Sehmel 1966).

Στα όσα αναφέρθηκαν προηγουμένως και τα οποία επηρεάζουν τις απώλειες ΑΣ κατά τη δειγματοληψία, προστίθενται και οι **απώλειες στο σύστημα μεταφοράς**, οι οποίες δεν έχουν να κάνουν τόσο με το είδος της ροής που επιτυγχάνεται στην είσοδο του δειγματολήπτη, αλλά με τον σχεδιασμό του. Το σύστημα μεταφοράς του δειγματολήπτη είναι αυτό που συνδέει την είσοδό του με το μέσο συλλογής ή μέτρησης (σε περίπτωση on-line διατάξεων). Αποτελείται από αγωγούς που ενδεχομένως εμφανίζουν αλλαγές στην κατεύθυνση, στενώσεις και λοιπές εντοπισμένες αντιστάσεις οι οποίες επηρεάζουν τη ροή του εισερχόμενου αερολύματος και κατά συνέπεια και την αδράνεια των ΑΣ, με αποτέλεσμα αυτά να επικάθονται σε διάφορα σημεία του συστήματος μεταφοράς. Βέβαια, υπάρχει τρόπος οι απώλειες αυτές να ελαχιστοποιηθούν, με μείωση κατά το δυνατόν της διαδρομής που θα ακολουθήσει το αερόλυμα από την είσοδό του στο δειγματολήπτη μέχρι το σημείο συλλογής του, αλλά και των εντοπισμένων αντιστάσεων και των απότομων αλλαγών κατεύθυνσης του αερολύματος. Συνοψίζοντας:

Σε έναν δειγματολήπτη οι βασικοί μηχανισμοί που ευθύνονται για τις απώλειες ΑΣ είναι οι:

- 1. Κατακάθιση λόγω βαρύτητας (gravitational settling)
- 2. Κατακάθιση λόγω διάχυσης (diffusional settling)
- 3. Κατακάθιση λόγω τυρβώδους ροής (turbulent inertial deposition)

Η πορεία που ακολουθεί το αερόλυμα σε έναν δειγματολήπτη είναι η ακόλουθη:

- Είσοδος αερολύματος στον δειγματολήπτη από το ακροφύσιο (το οποίο είναι σχεδιασμένο με τρόπο ώστε να επιτυγχάνεται η ισοκινητική δειγματοληψία που είναι και η ζητούμενη)
- Δίοδος του αερολύματος από το σύστημα μεταφοράς του δειγματολήπτη (που συνδέει την είσοδό του με το μέσο συλλογής)
- Δίοδος του αερολύματος από το μέσο συλλογής ΑΣ (συνήθως πρόκειται για φίλτρο το είδος του οποίου εξαρτάται κυρίως από την ανάλυση που θα ακολουθήσει)
- 4. Έξοδος του αερολύματος στο περιβάλλον

Κάθε ενεργητικός δειγματολήπτης προκειμένου να συλλέξει δείγμα ατμοσφαιρικού αερολύματος εξαναγκάζει τη ροή του μέσα από αυτόν, μέσω κατάλληλης αντλίας η οποία καθορίζει τη ροή μέσω κατάλληλου ακροφυσίου, βαλβίδας κλπ. Η ροή του αερολύματος στο δειγματολήπτη μετράται συνήθως με αισθητήρες που βρίσκονται κατάντι του φίλτρου συλλογής ΑΣ. Επιπρόσθετα, ένας δειγματολήπτης μπορεί να περιλαμβάνει και διάφορους αισθητήρες ατμοσφαιρικής θερμοκρασίας, πίεσης, σχετικής υγρασίας, μανόμετρο για τον προσδιορισμό της πτώσης πίεσης της ροής λόγω ενός «φορτωμένου» με ΑΣ φίλτρου. Μία τυπική διάταξη δειγματοληψίας ΑΣ παρουσιάζεται στο σχήμα που ακολουθεί.

Τέλος, ένας δειγματολήπτης μπορεί να συλλέξει είτε δείγμα ολικών ΑΣ (total suspended particulate, TSP) είτε ένα συγκεκριμένο μέγεθος ΑΣ. Στη δεύτερη περίπτωση είναι απαραίτητη η ύπαρξη κατάλληλου συστήματος διαχωρισμού μεγέθους (όπως για παράδειγμα αδρανειακός συλλέκτης, κυκλώνας κλπ).



Σχήμα 2.13 Συσκευή δειγματοληψίας ΑΣ σε φίλτρα (Kulkarni et al. 2011a)

Στην περίπτωση που το ζητούμενο είναι η μελέτη της κατανομής μεγεθών του ατμοσφαιρικού αερολύματος, αυτό γίνεται με χρήση **αδρανειακού συλλέκτη πρόσκρουσης πολλαπλών σταδίων**, ο οποίος συλλέγει το ατμοσφαιρικό αερόλυμα και εν συνεχεία το διαχωρίζει σε διάφορα κλάσματα. Οι αδρανειακοί συλλέκτες πρόσκρουσης έχουν ευρεία χρήση και έχουν μελετηθεί εκτενώς, τόσο πειραματικά όσο και θεωρητικά, διαδραματίζουν δε πολύ σημαντικό ρόλο στις μελέτες κατανομής μεγεθών των ΑΣ.

Ένα άλλο είδος δειγματολήπτη που χρησιμοποιείται ευρέως είναι ο **κυκλώνας,** με τον οποίο συλλέγεται μεγαλύτερη ποσότητα ΑΣ συγκριτικά με τους αδρανειακούς συλλέκτες, πλην όμως ο διαχωρισμός του ΑΣ στα αντίστοιχα κλάσματα γίνεται με χαμηλότερη ακρίβεια.

Οι δειγματολήπτες που διαχωρίζουν τα ΑΣ σε διάφορα «στάδια», βασίζονται στη διαφορετική αδράνεια των σωματιδίων. Ο διαχωρισμός γίνεται με αλλαγή της διεύθυνσης της ροής του αερολύματος εντός του δειγματολήπτη και συλλογή των ΑΣ τα οποία – λόγω της αδράνειάς τους – δεν μπορούν να ακολουθήσουν τη νέα κατεύθυνση της ροής. Το σχήμα που ακολουθεί παρουσιάζει σε σκαρίφημα έναν αδρανειακό συλλέκτη και έναν κυκλώνα, καθώς και τη ροή που ακολουθεί το αερόλυμα μέσα σε αυτούς.



Cyclone

Σχήμα 2.14 Αδρανειακός συλλέκτης και κυκλώνας (Baron and Willeke, 2001)

Το κατά πόσον ένα σωματίδιο που κατευθύνεται σε ένα εμπόδιο θα πέσει πάνω σε αυτό ή όχι, οπότε και θα συνεχίσει την πορεία του μαζί με το αέριο μέσο, καθορίζεται από τον αριθμό Stokes, Stk (καθώς ισούται με τον λόγο της απόστασης ακινητοποίησης του σωματιδίου προς το μέγεθος του εμποδίου). Για την περίπτωση του ΑΣ που κινείται σε αέριο μέσο ισχύει η σχέση:

$$Stk = \frac{\rho_p c_c d_p^2}{18\eta d_b}$$
(Σχέση 2.26)

όπου:

 $ρ_p$: η πυκνότητα του σωματιδίου

 $C_{\rm c}$: ο παράγοντας διόρθωσης ολίσθησης

d_p : η διάμετρος του σωματιδίου

η : το ιξώδες του αέρα

d_b : η διάμετρος του εμποδίου

Αν ο αριθμός Stk είναι μεγαλύτερος από την μονάδα, το σωματίδιο θα συγκρουστεί με το εμπόδιο. Εφαρμόζοντας τη σχέση 2.26 στην περίπτωση του αδρανειακού συλλέκτη με διάμετρο ακροφυσίου W, προκύπτει η σχέση:

$$Stk = \frac{\rho_p C_c d_p^2}{9\eta W}$$
(Σχέση 2.27)

και ουσιαστικά στην περίπτωση αυτή ο αριθμός Stokes εκφράζεται ως ο λόγος της απόστασης ακινητοποίησης προς την ακτίνα του ακροφυσίου.

Ένα αδιάσταστο μέγεθος το οποίο συσχετίζεται με το μέγεθος του σωματιδίου που συλλέγεται σε έναν αδρανειακό συλλέκτη είναι η τετραγωνική ρίζα του αριθμού Stokes. Ειδικότερα, η τιμή του Stk που χρησιμοποιείται για να περιγραφεί ένας αδρανειακός διαχωριστής είναι το \sqrt{Stk}_{50} που αντιστοιχεί στην τιμή της διαμέτρου των σωματιδίων στην οποία η απόδοση συλλογής είναι 50%.

Ένας συμβατικός αδρανειακός συλλέκτης (Σχήμα 2.15) αποτελείται από ένα η περισσότερα ακροφύσια από τα οποία διέρχεται το αερόλυμα και εν συνεχεία κατευθύνεται πάνω σε πλάκα που ονομάζεται πλάκα πρόσκρουσης (impaction plate).





Σωματίδια με μέγεθος μεγαλύτερο από το μέγεθος διαχωρισμού του αδρανειακού συλλέκτη προσκρούουν στην πλάκα (και παραμένουν εκεί), ενώ τα μικρότερου μεγέθους σωματίδια ακολουθούν τη ροή του αερίου και συνεχίζουν μέχρι το φίλτρο. Το μέγεθος των ΑΣ για το οποίο γίνεται ο διαχωρισμός αυτός λέγεται μέγεθος αποκοπής (cut-off) (d₅₀) και είναι χαρακτηριστικό για κάθε δειγματολήπτη.

Οι αδρανειακοί συλλέκτες χαρακτηρίζονται από την **καμπύλη απόδοσης συλλογής** που είναι ο λόγος του ποσοστού των συλλεγόμενων σωματιδίων προς τα συνολικά ΑΣ. Ιδανικά, ο συλλέκτης θα πρέπει να επιτρέπει μόνο στα σωματίδια με μέγεθος μικρότερο από το μέγεθος διαχωρισμού να μην συλλεχθούν.

Συχνά χρησιμοποιούνται **αδρανειακοί συλλέκτες ενός σταδίου**. Σε αυτή τη περίπτωση μπορούν να διαχωρισθούν τα σωματίδια σε δύο κλάσματα (η χρήση τέτοιων δειγματοληπτών είναι ευρέως χρησιμοποιούμενη στις μελέτες ΑΣ₁₀ και ΑΣ_{2.5}). Υπάρχει βέβαια και η δυνατότητα διαχωρισμού σε περισσότερα στάδια, όπως συνέβη και στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ., όπου χρησιμοποιήθηκε **αδρανειακός συλλέκτης πολλαπλών σταδίων** (Cascade Impactor). Ένας τέτοιος δειγματολήπτης στην ουσία αποτελείται από πολλούς αδρανειακούς συλλέκτες (στάδια) σε σειρά (Σχήμα 2.16). Η ταχύτητα του αερίου αυξάνεται καθώς αυτό περνάει από στάδιο σε στάδιο με αποτέλεσμα να συλλέγονται συνεχώς και μικρότερα σωματίδια.



Σχήμα 2.16 Αδρανειακός συλλέκτης πολλαπλών σταδίων

Ένας παράγοντας που μπορεί να δημιουργήσει πρόβλημα στην λειτουργία ενός αδρανειακού συλλέκτη είναι η αναπήδηση (bouncing effect) των σωματιδίων στην πλάκα πρόσκρουσης. Αν ένα σωματίδιο αναπηδήσει στην πλάκα δεν συλλέγεται και συνεχίζει την πορεία του. Μία λύση στο πρόβλημα αυτό είναι η επικάλυψη της πλάκας με μία κολλώδη ουσία. Και σε αυτή την περίπτωση όμως, αν το στρώμα της ουσίας καλυφθεί από ένα στρώμα σωματιδίων, είναι δυνατόν τα εισερχόμενα σωματίδια να αναπηδήσουν πάνω σε αυτά που έχουν ήδη αποτεθεί. Για να αποφευχθεί αυτό θα πρέπει η κολλώδης ουσία να αλλάζεται ανά τακτά χρονικά διαστήματα.

2.5.2 Φίλτρα συλλογής αιωρουμένων σωματιδίων

Ο πιο διαδεδομένος τρόπος συλλογής ΑΣ είναι με χρήση φίλτρων. Η διαδικασία είναι απλή και περιλαμβάνει τη συλλογή ενός χαρακτηριστικού δείγματος ΑΣ πάνω σε ένα φίλτρο συλλογής. Μετά τη συλλογή ικανής ποσότητας δείγματος, το φίλτρο μεταφέρεται και φυλάσσεται σε χώρο που πληροί συγκεκριμένες προϋποθέσεις (προκειμένου να αποφευχθεί τυχόν ρύπανση, επιμόλυνση, αλλοιώσεις κλπ). Στη συνέχεια, ακολουθεί η ανάλυση ή αναλύσεις, για τον προσδιορισμό των υπό μελέτη ιδιοτήτων του αερολύματος (πχ προσδιορισμός οπτικών ιδιοτήτων, μάζας των ΑΣ που συλλέχθησαν, χημική σύσταση των ΑΣ, ραδιενέργειας κλπ).

2.5.2.1 Κατηγοριοποίηση φίλτρων βάσει του υλικού και του τρόπου κατασκευής τους

Τα φίλτρα χωρίζονται σε διάφορες κατηγορίες, με βάση το υλικό, τον τρόπο κατασκευής τους, το μέγεθος της ίνας και το πορώδες τους και το υλικό κατασκευής τους.

<u>Φίλτρα ινών (Fibrous Filters)</u>

Τα φίλτρα αυτά αποτελούνται από πλεγμένες ίνες. Το πορώδες τους είναι μεγάλο και κυμαίνεται από 0.6 μm έως ~1.0μm, καθώς δεν είναι δυνατή η περαιτέρω συμπίεση των φίλτρων για την επίτευξη μικρότερου πορώδους. Το πάχος της κάθε ίνας μπορεί να κυμαίνεται από 1 μm έως και μερικές εκατοντάδες μm. Σε έναν τύπο φίλτρου το μέγεθος των ινών που το αποτελούν ενδέχεται να κυμαίνεται, αλλά υπάρχουν και φίλτρα με ομοιόμορφο μέγεθος ινών. Για την ευκολότερη σύνδεση των ινών, τα φίλτρα μπορεί να περιέχουν κατάλληλο συνδετικό υλικό που μπορεί να φτάνει έως και το 10% της μάζας του φίλτρου. Στην κατηγορία φίλτρων ινών ανήκουν τα:

- Φίλτρα χαλαζία (quartz fibers). Πρόκειται για σχετικά αδρανή φίλτρα με χαμηλό χημικό υπόβαθρο. Είναι κατάλληλα για χρήση σε διάφορες τεχνικές ανάλυσης. Είναι επίσης κατάλληλα για μετρήσεις οργανικού άνθρακα καθώς μπορούν να πυρωθούν σε υψηλές θερμοκρασίες. Τέλος, δεν απορροφούν πολύ υγρασία (οπότε είναι ιδανικά για αναλύσεις μάζας ΑΣ). Το μεινέκτημά τους είναι ότι είναι αρκετά ψαθυρά, γεγονός που τα καθιστά δύσκολα στον χειρισμό (Pszenny et al. 1993; Brown et al. 2006).
- Φίλτρα κυτταρίνης (cellulose fibers). Έχουν ικανοποιητική μηχανική αντοχή, προκαλούν μικρή πτώση πίεσης κατά τη δειγματοληψία και είναι σχετικά χαμηλού κόστους. Μειονέκτημά τους είναι η μικρή απόδοση συλλογής για σωματίδια με μέγεθος κάτω από 1 μm και η ικανότητά τους να απορροφούν υγρασία σε μεγάλο βαθμό.
- Φίλτρα από ίνες γυαλιού (glass fibers). Προκαλούν μεγαλύτερη πτώση πίεσης από τα φίλτρα κυτταρίνης αλλά έχουν απόδοση μεγαλύτερη από 99% για σωματίδια μεγέθους > 0,3 μm και δεν επηρεάζονται πολύ από την υγρασία (Hinds & Kadrichu 1997).
- Φίλτρα από πολυστυρένιο (polystyrene fibers). Τα φίλτρα αυτά έχουν σχετικά μικρή μηχανική αντοχή και δεν χρησιμοποιούνται τόσο πολύ σε δειγματοληψίες ατμοσφαιρικού αερολύματος.

Πέρα από τα παραπάνω είδη φίλτρων που είναι και τα βασικότερα, στην κατηγορία των φίλτρων ινών ανήκουν και τα φίλτρα από ίνες PVC (πολυβινυλοχλωρίδιο). Σε ειδικές εφαρμογές που επικρατούν υψηλές θερμοκρασίες και συνθήκες διαβρωτικού περιβάλλοντος χρησιμοποιούνται φίλτρα ινών από ανοξείδωτο ατσάλι. Η χρήση των

παραπάνω δύο τύπων φίλτρων δεν είναι τόσο εκτεταμένη και περαιτέρω ανάλυσή τους ξεφεύγει των πλαισίων της παρούσας Δ.Δ.

<u>Φίλτρα Μεμβράνης (membrane filters)</u>

Τα φίλτρα μεμβράνης κατασκευάζονται από διάφορα υλικά, όπως PVC και τεφλόν και αποτελούνται από διαφορετικά στρώματα. Το μειονέκτημα αυτών των φίλτρων είναι η μεγάλη πτώση πίεσης που προκαλούν, ενώ ένα πλεονέκτημά τους είναι η μεγάλη απόδοση, ακόμα και για σωματίδια σημαντικά μικρότερα από το μέγεθος των πόρων που έχουν (Liu & Lee 1976). Οι μηχανισμοί που επικρατούν κατά την πρόσληψη των σωματιδίων από το φίλτρο είναι κυρίως η αδρανειακή πρόσκρουση και η διάχυση Brown.

<u>Φίλτρα με διαμπερείς πόρους (nucleopore filters)</u>

Πρόκειται για φίλτρα που κατασκευάζονται κυρίως από μεμβράνες πολυκαρβονικών ενώσεων. Τα φίλτρα αυτά έχουν οπές λίγων μικρομέτρων που σχηματίζονται μετά από τον βομβαρδισμό τους με νετρόνια και την εμβάπτισή τους σε διάλυμα οξέως. Αυτή η διαδικασία έχει ως αποτέλεσμα την δημιουργία πόρων στο φίλτρο ομοιόμορφου μεγέθους. Η διαφορά τους από τα φίλτρα μεμβράνης έγκειται στο ότι τα εν λόγω φίλτρα έχουν διαμπερείς πόρους και συγκριτικά μία πολύ πιο απλή δομή.

Στο σχήμα 2.17 που ακολουθεί παρουσιάζονται φωτογραφίες από ηλεκτρονικό μικροσκόπιο των διαφόρων τύπων φίλτρων συλλογής ΑΣ.





Σχήμα 2.17 Φωτογραφία από ηλεκτρονικό μικροσκόπιο φίλτρων: ινών, μεμβράνης και διαμπερών πόρων (Baron & Willeke 2001)

2.5.2.2 Κατηγοριοποίηση φίλτρων βάσει του μεγέθους της ίνας

Το μέγεθος της ίνας ενός φίλτρου επηρεάζει την απόδοση συλλογής ΑΣ. Για το λόγο αυτό ορίζεται το μέγεθος **απόδοση ίνας η,** ως ο λόγος του αριθμού του σωματιδίου που προσκρούουν στην ίνα του φίλτρου, προς των αριθμό των σωματιδίων που θα προσέκρουαν αν η ροή δεν εκτρέπονταν γύρω από αυτήν.

Μία ίνα ακτίνας R_f δημιουργεί γύρω της ένα στρώμα πάχους Y, για το οποίο ισχύει ότι όλα τα σωματίδια που κινούνται στο στρώμα αυτό εκτρέπονται και απομακρύνονται από την ίνα (Σχήμα 2.18). Σύμφωνα με τα παραπάνω, η απόδοση της ίνας εξαρτάται από την ακτίνα της και από το πάχος του στρώματος αυτού (Σχέση 2.28).



Σχήμα 2.18 Ορισμός του μεγέθους απόδοση ίνας (Baron & Willeke 2001)

Γνωρίζοντας το μέγεθος της απόδοσης της ίνας, μπορεί να γίνει σύγκριση της αποτελεσματικότητας δύο φίλτρων διαφορετικού πάχους (καθώς όπως φαίνεται από τον ορισμό του μεγέθους η απόδοση της ίνας είναι ανεξάρτητη από το πάχος του φίλτρου).

Το μέγεθος απόδοση ίνας ορίζεται για όλα τα φίλτρα τα οποία αποτελούνται από ίνες και μπορεί να ορισθεί και για φίλτρα μεμβράνης, χρησιμοποιώντας ένα ισοδύναμο μέγεθος ίνας που περιγράφει τα χαρακτηριστικά της μεμβράνης.

Για την συνολική απόδοση του φίλτρου η_{tot} ισχύει η σχέση (Baron & Willeke 2001):

$$\eta_{tot} = 1 - \exp(\frac{-4\eta \alpha L}{\pi d_f(1-a)})$$
(Σχέση 2.29)

όπου:

α: η πυκνότητα του φίλτρου

L: το πάχος του φίλτρου

d_f: το πάχος της ίνας

Η συλλογή ΑΣ από ένα φίλτρο γίνεται βάσει διαφόρων μηχανισμών· της αδρανειακής εναπόθεσης (inertial deposition), της ανάσχεσης (interception), της διάχυσης (diffusion), της εναπόθεσης (settling) και της επίδρασης εξωτερικών δυνάμεων (π.χ. ηλεκτροστατικών δυνάμεων) (Davies, 1983). Οπότε, η απόδοση της ίνας μπορεί να θεωρηθεί ως το άθροισμα των επί μέρους αποδόσεων των προαναφερθέντων μηχανισμών (σχήμα 2.19). Στη συνέχεια περιγράφονται οι μηχανισμοί αυτοί με περισσότερη λεπτομέρεια.

Απόθεση λόγω διάχυσης. Ο μηχανισμός αυτός εναπόθεσης των ΑΣ στα φίλτρα βασίζεται στην κίνηση Brown. Η κίνηση Brown είναι αυτή που περιγράφει την κίνηση των ΑΣ πολύ μικρών διαστάσεων. Όπως έχει αναφερθεί και προηγουμένως τα πολύ μικρά σωματίδια δεν ακολουθούν την ροή του αερίου, αλλά αποκλίνουν αυτής λόγω διάχυσης. Το γεγονός αυτό είναι πιθανό να προκαλέσει τη σύγκρουσή τους με μία ίνα του φίλτρου και να οδηγήσει στην συλλογή τους, καθώς κατά την επαφή τους με την επιφάνεια της ίνας τα σωματίδια προσκολλούνται σε αυτή μέσω των δυνάμεων van der Waals που αναπτύσσονται. Η κίνηση Brown αυξάνεται όσο μειώνεται το μέγεθος των σωματιδίων, οπότε και η απόθεση λόγω διάχυσης θα αυξάνεται όσο μειώνεται το μέγεθος των σωματιδίων. Όταν η ροή είναι χαμηλή, τα σωματίδια περνούν περισσότερο χρόνο πλησίον των ινών, με αποτέλεσμα την αύξηση της πιθανότητας της μεταξύ τους σύγκρουσης που μπορεί να οδηγήσει στη συλλογή τους (Lee and Liu 1982).

Απόθεση λόγω ανάσχεσης. Προϋπόθεση για την συλλογή ενός ΑΣ από το φίλτρο είναι αυτό να αποκλίνει από την ροή του. Βέβαια, ένα σωματίδιο μπορεί να συλλεγεί από το φίλτρο έτσι και αλλιώς, αρκεί η ροή να το εξαναγκάσει να προσεγγίσει επαρκώς σε ίνα του φίλτρου. Η απόσταση στην οποία θα πρέπει να βρεθεί το κέντρο του σωματιδίου από την ίνα θα πρέπει να είναι μικρότερη της ακτίνας του. Αυτό οφείλεται στην διεργασία της ανάσχεσης, η οποία δεν προϋποθέτει απόκλιση του σωματιδίου από την ροή. Η ανάσχεση για μία δεδομένη ίνα είναι ανεξάρτητη από την ταχύτητα ροής.

Απόθεση λόγω αδρανείας. Όταν η ροή του αερολύματος περνάει από μία ίνα, καμπυλώνει. Αν η καμπύλωση της ροής είναι αρκετά μεγάλη και η μάζα του σωματιδίου αρκετά μεγάλη, τότε λόγω αδράνειας το σωματίδιο θα ακολουθήσει ευθύγραμμη πορεία και θα συγκρουστεί με την ίνα. Το φαινόμενο αυτό ονομάζεται **σύγκρουση λόγω αδράνειας** (inertial impaction). Η έκταση στην οποία πραγματοποιείται το φαινόμενο αυξάνεται, με το μέγεθος των σωματιδίων (δηλαδή της αδράνειάς τους) και της ταχύτητας της ροής.



Σχήμα 2.19 Αποδόσεις διάχυσης, ανάσχεσης, πρόσκρουσης και απόδοση ίνας υπολογισμένες με βάση την θεωρία της μίας ίνας ως προς την διάμετρο των σωματιδίων (Kulkarni et al. 2011b)

Βαρυτική απόθεση. Συμβαίνει όταν σωματίδια αποτίθενται στο φίλτρο υπό την επίδραση του βαρυτικού πεδίου. Για αρκετά μεγάλη ταχύτητα κατακρήμνισης τα σωματίδια μπορεί να αποκλίνουν της ροής και να συλλεχθούν. Ο μηχανισμός είναι σημαντικός μόνο για σωματίδια μεγέθους μερικών μm ή μεγαλύτερα και για χαμηλή ροή. Για την εξέλιξη αυτού του φαινομένου σημαντικό ρόλο παίζει η τοποθέτηση του φίλτρου σε σχέση με την ροή. Αν η ροή είναι καθοδική έχουμε θετική συνεισφορά στην απόδοση και αν η ροή είναι ανοδική αρνητική.

2.5.2.3 Κατηγοριοποίηση φίλτρων βάσει του πορώδους τους

Βάσει όσων αναφέρθηκαν προηγουμένως οι μηχανισμοί απόθεσης των σωματιδίων στα φίλτρα εξαρτώνται από διάφορες παραμέτρους που έχουν να κάνουν με το μέγεθος των σωματιδίων, την ταχύτητα τους και την ταχύτητα της ροής. Ανάλογα με τον μηχανισμό, το μέγεθος ενός σωματιδίου ενδέχεται να ευνοεί τη λειτουργία του φίλτρου ή όχι. Ομοίως και η ροή της δειγματοληψίας (μικρή ή μεγάλη) έχει θετική ή αρνητική επίδραση σε κάποιους μηχανισμούς. Έτσι τελικά, ανάλογα με τον συνδυασμό μεγέθους σωματιδίων και ταχύτητας δειγματοληψίας αλλάζει και ο επικρατών μηχανισμός που ευθύνεται για την εναπόθεση των ΑΣ στα φίλτρα συλλογής. Πάντως είναι δυνατό να επιδρουν ταυτόχρονα περισσότεροι του ενός μηχανισμοί, χωρίς κανένας να επικρατεί πλήρως. Τα παραπάνω φαίνονται στο σχήμα 2.20 που ακολουθεί, στο οποίο περιγράφεται η απόδοση ενός φίλτρου συναρτήσει της διαμέτρου των σωματιδίων. Στην περιοχή που δρουν ταυτόχρονα μηχανισμοί χωρίς κάποιος να επικρατεί, η διείσδυση είναι μέγιστη αλλά η απόδοση του φίλτρου ελάχιστη (diffusion and interception regime). Ορίζεται **το πιο διεισδυτικό μέγεθος σωματιδίων (most penetrating particle size)** ως το μέγεθος των σωματιδίων για το οποίο η απόδοση είναι ελάχιστη. Το μέγεθος αυτό διαφοροποιείται ανάλογα με το είδος του φίλτρου (αυξάνεται μειούμενου του **πορώδους του φίλτρου**) και την ταχύτητα ροής (μειώνεται με αύξηση της ροής) (Lee & Liu 1980).



Σχήμα 2.20 Η απόδοση του φίλτρου συναρτήσει της διαμέτρου των σωματιδίων (Baron & Willeke 2001)

2.5.3 Τελική επιλογή φίλτρου

Το φίλτρο δρα ως μία εντοπισμένη αντίσταση κατά την ροή του αερολύματος. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα την εμφάνιση πτώσης πίεσης κατάντι του φίλτρου. Δεδομένης της συνθήκης που απαιτεί να πραγματοποιείται η δειγματοληψία αερολύματος υπό σταθερή ροή, η πτώση πίεσης έχει ως αποτέλεσμα τη μετατόπιση του σημείου λειτουργίας της αντλίας. Ιδανικά, τα φίλτρα θα έπρεπε να έχουν, αφενός μεγάλη απόδοση και αφετέρου να προκαλούν μικρή πτώση πίεσης στη ροή. Γενικά, μπορεί να λεχθεί ότι η πτώση πίεσης αυξάνεται, αυξανομένης της πυκνότητας του φίλτρου και μειούμενου του πορώδους, και μειώνεται, αυξανόμενης της διαμέτρου των ινών του φίλτρου, εφόσον το πορώδες παραμένει σταθερό.

Καθώς υπάρχουν πολλά και διαφορετικά είδη φίλτρων, το ποιο φίλτρο θα επιλέξει ο χρήστης κάθε φορά εξαρτάται από τις συνθήκες δειγματοληψίας, την απόδοση του φίλτρου για το κλάσμα μεγεθών των ΑΣ που είναι προς συλλογή και μελέτη, την πτώση πίεσης που προκαλεί στη ροή, το είδος του δειγματολήπτη που θα χρησιμοποιηθεί (υψηλού ή χαμηλού όγκου, ενεργητικού ή παθητικού), αλλά ακόμα και με την υποδοχή (filter holder) που διαθέτει ο δειγματολήπτης για τη συγκράτηση του του φίλτρου (σχήμα 2.21). Επιπλέον, στην επιλογή του φίλτρου σημαντικό ρόλο παίζει και η ανάλυση που θα ακολουθήσει στη συνέχεια. Για παράδειγμα, σε περίπτωση που θα ακολουθήσει ανάλυση μάζας είναι προτιμητέο να αποφευχθεί η χρήση φίλτρων κυτταρίνης καθώς είναι ιδιαίτερα υγροσκοπικά και ενδέχεται οι μετρήσεις να είναι εσφαλμένες λόγω της προσρόφησης υγρασίας. Σε περίπτωση που ακολουθήσουν αναλύσεις δεν θα πρέπει να αγνοηθούν και δύο άλλα χαρακτηριστικά των φίλτρων: το υπόβαθρο που εισάγουν στην μέτρηση, και οι χημικοί μετασχηματισμοί που γίνονται στο φίλτρο μετά την δειγματοληψία (artifact formation). Το υπόβαθρο έχει να κάνει με το πόσο καθαρό είναι ένα φίλτρο, καθώς ένα φίλτρο, ανάλογα με το υλικό από το οποίο είναι κατασκευασμένο, είναι δυνατό να περιέχει ιχνοστοιχεία και άλλα υλικά που ενδέχεται να εισάγουν προβλήματα κατά τις αναλύσεις που θα ακολουθήσουν. Ένα τέτοιο πρόβλημα μπορεί να είναι η εισαγωγή συστηματικού σφάλματος κατά την ανάλυση, ή η αύξηση του επιπέδου ανίχνευσης της μέτρησης. Από την άλλη, οι μετασχηματισμοί στα φίλτρα μπορεί να έχουν θετική ή αρνητική συνεισφορά κατά τη συλλογή μίας ένωσης (Appel et al. 1984), αυξάνοντας ή μειώνοντας αντίστοιχα τα επίπεδά της στο δείγμα και οδηγώντας με τον τρόπο αυτό σε εσφαλμένα αποτελέσματα. Τέλος, ένας σημαντικός παράγοντας για την επιλογή φίλτρου είναι και το κόστος, το οποίο κυμαίνεται ανάλογα με το υλικό και τις διαστάσεις τους.



Σχήμα 2.21 Χαρακτηριστικοί υποδοχής φίλτρου δειγματολήπτη (Baron & Willeke 2001)

2.5.4 Συνοψίζοντας

Συνοψίζοντας τα συμπεράσματα που προκύπτουν από όλα τα παραπάνω μπορούν να δοθούν ορισμένοι βασικοί κανόνες δειγματοληψίας ατμοσφαιρικού αερολύματος:

<u>Για σωματίδια >1 μm</u>

- Οι αγωγοί του δειγματολήπτη θα πρέπει να έχουν οριζόντια κατεύθυνση. Στην περίπτωση που δεν μπορεί να γίνει διαφορετικά, η ροή θα πρέπει να είναι ιδιαίτερα υψηλή.
- Έντονες αλλαγές στην κατεύθυνση της ροής θα πρέπει να αποφεύγονται, καθώς έντονα τυρβώδεις ροές οδηγούν σε απώλειες σωματιδίων λόγω των αναπτυσσόμενων δυνάμεων αδράνειας.

<u>Για σωματίδια < 0.1 μm</u>

- Οι αγωγοί θα πρέπει να είναι όσο γίνεται πιο μικροί σε μήκος.
- Το σύστημα μεταφοράς θα πρέπει να είναι σχεδιασμένο για στρωτή ροή, ιδανικά με αριθμό Re=2000.
- Ιδανικά δεν θα πρέπει να αναπτύσσεται τυρβώδης ροή, δεδομένου ότι σε αυτή τη περίπτωση αυξάνονται οι απώλειες σωματιδίων λόγω δυνάμεων διάχυσης.

Σε κάθε περίπτωση η δειγματοληψία θα πρέπει να γίνεται από ένα ακροφύσιο το οποίο θα βρίσκεται σε εύλογη απόσταση από το έδαφος. Στην περίπτωση που ο δειγματολήπτης βρίσκεται σε περιοχή που περιβάλλεται από χαμηλή βλάστηση, κρίνεται σκόπιμο το ακροφύσιο να τοποθετηθεί σε ύψος 5-10 m από το επίπεδο του εδάφους. Ο σχεδιασμός του ακροφυσίου θα πρέπει να είναι τέτοιος ώστε να επιτυγχάνεται υψηλή απόδοση συλλογής ΑΣ σε ένα μεγάλο εύρος ταχυτήτων του ανέμου. Η ροή του αέρα του δείγματος θα πρέπει να είναι στρωτή προκειμένου να αποφευχθούν απώλειες λόγω δυνάμεων διάχυσης και αδρανειακής εναπόθεσης.

Τέλος το υλικό του ακροφυσίου θα πρέπει να μην υπόκειται σε διάβρωση (πχ ανοξείδωτο ατσάλι) και να είναι ανθεκτικό στις εξωτερικές καιρικές συνθήκες (βροχοπτώσεις, ήλιος κλπ). Στην περίπτωση που κάτι τέτοιο απαιτείται (πχ όταν πραγματοποιούνται δειγματοληψίες σε τροπικό κλίμα) ο αέρας που συλλέγεται θα πρέπει να ξηραίνεται προκειμένου να αποφευχθεί συμπύκνωση μέσα στο δειγματολήπτη.

Μεθοδολογία δειγματοληψίας και ανάλυσης δειγμάτων ραδιενεργού ατμοσφαιρικού αερολύματος

3.1 Εισαγωγή

Στο κεφάλαιο αυτό θα παρουσιασθεί η μεθοδολογία και ο εξοπλισμός που χρησιμοποιήθηκε στα πλαίσια της Δ.Δ., για τη συλλογή δειγμάτων ατμοσφαιρικού αερολύματος και την εν συνεχεία ανάλυση τους με τεχνικές γ-φασματοσκοπίας, με στόχο τον ποιοτικό και ποσοτικό προσδιορισμό των ραδιενεργών ισοτόπων που υπάρχουν σε αυτό. Θα γίνει λόγος για τα πρωτόκολλα που σχεδιάσθηκαν και ακολουθήθηκαν, καθώς και για τη διαδικασία που ακολουθήθηκε για την ανάλυση κατανομής μεγεθών των Αιωρούμενων Σωματιδίων (ΑΣ). Τέλος, θα παρουσιασθεί η μεθοδολογία που ακολουθήθηκε για την ανάλυση οπισθοτροχιών, (back trajectories) και τη δημιουργία χαρτών με πληροφορίες σχετικά με τη μεταφορά αερίων μαζών.

3.2 Ο σταθμός μέτρησης ποιότητας ατμοσφαιρικού αερολύματος Εργαστηρίου Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος – ΕΚΕΦΕ - «Δ».

Η συλλογή ατμοσφαιρικού αερολύματος έγινε στο σταθμό μέτρησης ποιότητας ατμοσφαιρικού αερολύματος του Εργαστηρίου Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος (ΕΡΠ), στις εγκαταστάσεις του ΕΚΕΦΕ – «Δημόκριτος». Ο σταθμός αυτός είναι μέλος του παγκόσμιου δικτύου ελέγχου της ατμόσφαιρας (Global Atmospheric Watch – GAW), του δικτύου ACTRIS (Aerosol, Clouds and Trace Gases Research Infrastructure) και του δικτύου Ring of Five (Ro5). Είναι εγκατεστημένος εντός του ΕΚΕΦΕ – «Δημόκριτος», μακριά από άμεσες πηγές εκπομπής ρύπων, σε μία κατάφυτη περιοχή στην πλαγιά του Υμηττού, στη βορειοανατολική πλευρά της Αθήνας (37° 59' N, 23° 48' E) και σε υψόμετρο 270 m (εικόνα 3.1). Λόγω της θέσης της, η περιοχή αυτή επηρεάζεται, αφενός μεν από αστικές πηγές ατμοσφαιρικού αερολύματος, αφετέρου δε από αέριες μάζες οι οποίες εισέρχονται από τα βορειοανατολικά, γεγονός που καθιστά τις μετρήσεις που γίνονται στο σταθμό αντιπροσωπευτικές, τόσο για τις τοπικές συνθήκες ατμοσφαιρικού αερολύματος όσο και για τις υπεραστικές (Diapouli et al., 2017).

Ο δειγματολήπτης είναι εγκατεστημένος σε ύψος 6 m από την επιφάνεια του εδάφους, ώστε να εξασφαλίζεται η συλλογή όσο το δυνατόν αντιπροσωπευτικότερου δείγματος αερολύματος το οποίο δεν επηρεάζεται από τη σκόνη του εδάφους. Επιπλέον, έχει δοθεί προσοχή ώστε ο δειγματολήπτης να είναι τοποθετημένος αρκετά μακριά από τα υπόλοιπα όργανα-δειγματολήπτες που είναι εγκατεστημένα στο εργαστήριο, ώστε να μην επηρεάζεται η δειγματοληψία του αερολύματος από αυτά.



Σχήμα 3.1 Σταθμός μέτρησης ποιότητας ατμοσφαιρικού αερολύματος (Dalaka et al., 2018)

3.3 Δειγματολήπτες πρόσκρουσης πολλαπλών σταδίων (Cascade Impactors)

Όπως αναλύθηκε εκτενώς στο προηγούμενο κεφάλαιο, για δειγματοληψία με στόχο τη μελέτη της κατανομής του μεγέθους των ΑΣ του αερολύματος χρησιμοποιείται αδρανειακός δειγματολήπτης (ή συλλέκτης) πρόσκρουσης πολλαπλών σταδίων (Cascade Impactor) όπως αυτός του σχήματος σχήμα 3.2, οποίος μπορεί να είναι υψηλού όγκου (High Volume Sampler) ή χαμηλού όγκου (Low Volume Sampler).

Ο διαχωρισμός των ΑΣ του αερολύματος γίνεται με βάση τη διερχόμενη ροή. Συνήθως, οι δειγματολήπτες χαμηλού όγκου λειτουργούν σε παροχές αέρα της τάξης των ~2-3 m³/h, ενώ οι δειγματολήπτες υψηλού όγκου λειτουργούν με παροχές που πλησιάζουν ή και υπερβαίνουν τα ~ 0.5 m³/min. Η επιλογή του τύπου του δειγματολήπτη (υψηλού ή χαμηλού όγκου) εξαρτάται από το χαρακτηριστικό του ΑΣ του οποίου ενδιαφέρει ο προσδιορισμός. Για παράδειγμα, για ένα ισότοπο φυσικής προέλευσης που βρίσκεται στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα συνήθως σε μικρές συγκεντρώσεις, ο προσδιορισμός του με ικανοποιητική ακρίβεια επιτυγχάνεται μόνο με αύξηση της παροχής του αέρα που διέρχεται μέσα από το δειγματολήπτη, δηλαδή με τη χρήση δειγματολήπτη υψηλού όγκου.

Όπως έχει αναλυθεί εκτενώς στο προηγούμενο κεφάλαιο η βασική αρχή λειτουργίας των δειγματοληπτών πρόσκρουσης πολλαπλών σταδίων, τόσο υψηλού όσο και χαμηλού όγκου, είναι η αδράνεια. Τα ΑΣ εισέρχονται από το ακροφύσιο του δειγματολήπτη (σχήμα 3.2) και εν συνεχεία διέρχονται μέσα από το πρώτο υπόστρωμα. Ανάλογα με το μέγεθός τους, είτε θα προσκρούσουν σε αυτό (με αποτέλεσμα τη συλλογή τους) είτε θα διέλθουν μέσα από αυτό και θα οδηγηθούν στο αμέσως επόμενο υπόστρωμα, αφού πρώτα η ροή μέσω κατάλληλων ακροφυσίων έχει υποστεί κατάλληλη επιτάχυνση. Αυτή η διαδικασία συνεχίζεται σε όλα τα στάδια του δειγματολήπτη, με αποτέλεσμα προοδευτικά σε συλλογή όλο και μικρότερης διαμέτρου ΑΣ.



Σχήμα 3.2 Αδρανειακός δειγματολήπτης πολλαπλών σταδίων (Baron and Willeke, 2001)

Κάθε στάδιο του δειγματολήπτη το οποίο περιέχει και το κατάλληλο υπόστρωμα, χαρακτηρίζεται από μία τιμή διαμέτρου αποκοπής (cut-off), που δηλώνει το μέγεθος των σωματιδίων που κατακρατήθηκαν σε αυτό. Η τιμή αυτή είναι χαρακτηριστική για κάθε στάδιο και μπορεί να αλλάξει, μεταβάλλοντας τις συνθήκες στις οποίες λειτουργεί ο δειγματολήπτης και ειδικότερα την ταχύτητα της ροής.

Όπως έχει ορισθεί στο προηγούμενο κεφάλαιο το μέγεθος **αεροδυναμική διάμετρος αποκοπής σωματιδίων σε κάποιο στάδιο (particle size cut-off)** είναι η διάμετρος των σωματιδίων που συλλέγονται στο υπόψη στάδιο με απόδοση 50%. Στο σημείο αυτό θα γίνει η ανάλυση του όρου, καθώς είναι η σημαντικότερη παράμετρος η οποία εξετάζεται κατά τη λειτουργία αδρανειακών δειγματοληπτών πολλαπλών σταδίων. Κάθε δειγματολήπτης πρόσκρουσης που λειτουργούν σε σειρά (και η είσοδος του ενός είναι η έξοδος του άλλου) με το πρώτο στάδιο είναι αυτό με τη μεγαλύτερη διάμετρο αποκοπής. Κάθε στάδιο συλλέγει σωματίδια με διάμετρο αποκοπής μικρότερη των διαμέτρων αποκοπής των προηγούμενων και εν τέλει προσδιορίζεται η συνολική κατανομή των σωματιδίων βάσει της αεροδυναμικής τους διαμέτρου. Συνήθως, μετά από τα στάδια του δειγματολήπτη, τοποθετείται ένα φίλτρο το οποίο συλλέγει όλα τα ΑΣ μικρότερων διαμέτρων από τη διάμετρο αποκοπής του τελευταίου σταδίου.

Το μέγεθος διαμέτρου αποκοπής (cut-off) ενός σταδίου του συλλέκτη υπολογίζεται από τη σχέση 3.1:

$$d_{50} = \sqrt{\frac{9\eta D_j(Stk_{50})}{\rho_p U}}$$
 (Σχέση 3.1)

Όπως φαίνεται από τη σχέση αυτή, μειώνοντας τη διάμετρο D_j του ακροφυσίου του κάθε σταδίου, μειώνονται οι τιμές της διαμέτρου αποκοπής. Το ίδιο αποτέλεσμα έχει και η αύξηση της ταχύτητας. Κατά τον σχεδιασμό ενός δειγματολήπτη πρόσκρουσης πολλαπλών σταδίων πρέπει να δίνεται μεγάλη προσοχή ώστε τα μεγέθη αποκοπής να μην αλληλεπικαλύπτονται.

Η καμπύλη απόδοσης συλλογής ενός δειγματολήπτη (collection efficiency curve) ορίζεται ως το ποσοστό των συλλεχθέντων σωματιδίων από το σύνολο των προσπιπτόντων σωματιδίων. Η καμπύλη απόδοσης συλλογής ενός δειγματολήπτη είναι συνάρτηση του μεγέθους των σωματιδίων.

Η ικανότητα συλλογής ενός δειγματολήπτη καθορίζεται από τους αριθμούς Reynolds και Stokes, ενώ για τον υπολογισμό της ροής εντός του δειγματολήπτη χρησιμοποιούνται οι εξισώσεις Navier-Stokes. Γενικά, όλοι οι υπολογισμοί για τη μελέτη της λειτουργίας ενός τέτοιου δειγματολήπτη είναι αντικείμενο της κλασσικής μηχανικής των ρευστών.

Ένα σημαντικό πρόβλημα που παρουσιάζεται κατά τη λειτουργία ενός αδρανειακού συλλέκτη πολλαπλών σταδίων είναι το φαινόμενο της αναπήδησης (για το οποίο εκτενής λόγος έγινε στο προηγούμενο κεφάλαιο). Η ύπαρξη του φαινομένου αυτού έχει ως αποτέλεσμα τα ΑΣ τα οποία κανονικά θα έπρεπε να συλλεχθούν σε κάποιο στάδιο, να διέλθουν από αυτό και να συλλεχθούν σε κάποιο επόμενο, με αποτέλεσμα την ανακρίβεια στην ανάλυση της κατανομής μεγεθών που θα προκύψει. Το φαινόμενο αυτό μπορεί να μειωθεί με χρήση κατάλληλου ελαιώδους υλικού με το οποίο θα επαλειφθούν τα χρησιμοποιούμενα φίλτρα. Σε παραγράφους θα ακολουθήσει περαιτέρω ανάλυση καθώς το φαινόμενο της αναπήδησης διερευνήθηκε στα πλαίσια της Δ.Δ.

Ένα ακόμα φαινόμενο που δεν θα πρέπει να αμελείται είναι αυτό της απόθεσης ΑΣ στα τοιχώματα μεταξύ των σταδίων του δειγματολήπτη (Vaughan, 1988; Newton et al., 1990). Αυτό αφορά κυρίως σε μεγάλα σωματίδια τα οποία δεν έχουν συγκρατηθεί στα πρώτα στάδια του δειγματολήπτη. Το φαινόμενο αυτό μπορεί να επαλειφθεί με κατάλληλο σχεδιασμό, ο οποίος εξασφαλίζει την ομαλότερη αλλαγή στη διεύθυνσης της ροής, ή με την επίτευξη χαμηλότερης ροής κατά τη λειτουργία του δειγματολήπτη.

3.3.1 Ο δειγματολήπτης πρόσκρουσης υψηλού όγκου Andersen high volume series GS2310

Για τις δειγματοληψίες ατμοσφαιρικού αερολύματος που πραγματοποιήθηκαν στα πλαίσια της Δ.Δ. χρησιμοποιήθηκε ο δειγματολήπτης πρόσκρουσης υψηλού όγκου πολλαπλών σταδίων Andersen High Volume Cascade Impactor (Andersen GS2310), της Andersen instruments inc. Ο δειγματολήπτης αυτός συνιστάται για τη δειγματοληψία μεγάλων όγκων αέρα και για τη συλλογή ΑΣ και έχει κατασκευαστεί με κριτήριο τη συλλογή ΑΣ διαμέτρου μικρότερης των 100 μm (ισοδύναμη διάμετρος Stokes) (Baron and Willeke, 2001).

Ο αδρανειακός συλλέκτης τοποθετείται στην αναρρόφηση μίας αντλίας υψηλής παροχής (σχήμα 3.3) η οποία είναι εγκατεστημένη στην οροφή του σταθμού μελέτης της ποιότητας του ατμοσφαιρικού αερολύματος του ΕΡΠ (σχήμα 3.4).



Σχήμα 3.3 Γενική διάταξη του δειγματολήπτη αέρα και του αδρανειακού δειγματολήπτη πολλαπλών σταδίων Andersen High Volume Cascade Impactor



Σχήμα 3.4 Δειγματολήπτης αέρα εγκατεστημένος στην οροφή του σταθμού μελέτης της ποιότητας του ατμοσφαιρικού αερολύματος του Εργαστηρίου Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος»

Ο αδρανειακός συλλέκτης που χρησιμοποιείται αποτελείται από 6 στάδια – πλάκες αλουμινίου – που φέρουν από 10 παράλληλες σχισμές, σταθερού μήκους (βλέπε σχήμα 3.5), με εξαίρεση το πρώτο στάδιο που φέρει 9 σχισμές. Σταδιακά, το πλάτος των σχισμών μειώνεται, με συνέπεια τη συνεχή αύξηση της ταχύτητας της ροής που έχει ως αποτέλεσμα να συλλέγεται σταδιακά όλο και μικρότερης διαμέτρου ΑΣ. Σε κάθε στάδιο η συλλογή ΑΣ γίνεται μέσω φίλτρων κυτταρίνης τα οποία έχουν προετοιμαστεί κατάλληλα¹.

Στον πίνακα 3.1 που ακολουθεί παρατίθενται τα μεγέθη αποκοπής κάθε σταδίου για δύο διαφορετικές παροχές αέρα: 20 και 40 scfm². Στα πλαίσια των δειγματοληψιών της παρούσας Δ.Δ., ο δειγματολήπτης ρυθμίστηκε σε ροή 20 cfm (1 cfm ισούται με περίπου 1.7 m³/h).

Διδακτορική Διατριβή Αικατερίνης Δαλάκα

 $^{^1}$ Στην παράγραφο 3.4 θα ακολουθήσει η περιγραφή της διαδικασίας προετοιμασίας 2 Standard Cubic Feet per Minute



Σχήμα 3.5 Στάδια του αδρανειακού δειγματολήπτη πολλαπλών σταδίων Andersen High Volume Cascade Impactor

	@ 40 s	cfm	@ 20		
STAGE NO.	PARTICLE SIZE RANGE Dp,50 (in microns)	CUNNINGHAM SLIP FACTOR	PARTICLE SIZE RANGE Dp,50 (in microns)	CUNNINGHAM SLIP FACTOR	GEOMETRIC STD. DEV.
1	7.2 to ∞	1.02	10.2 to ∞	1.02	1.34
2	3.0 to 7.2	1.06	4.2 to 10.20	1.04	1.50
3	1.5 to 3.0	1.11	2.1 to 4.2	1.08	1.49
4	0.95 to 1.5	1.17	1.3 to 2.1	1.13	1.50
5	0.49 to 0.95	1.33	0.69 to 1.3	1.24	1.50
6	N/a	n/a	0.39 to 0.69	1.42	1.50
Hi-vol Filter	0.0 to 0.49	n/a	0.0 to 0.39	n/a	n/a

Πίνακας 3.1 Μεγέθη αποκοπής σωματιδίων για όλα τα στάδια του δειγματολήπτη Andersen High Volume Cascade Impactor για δύο διαφορετικές παροχές αέρα (Tisch Environmental, Inc, 2004).

Στον πίνακα 3.2 που ακολουθεί, παρουσιάζονται για τα 6 στάδια του δειγματολήπτη και για παροχή 20 cfm οι τιμές των παραμέτρων:

- W : πλάτος σχισμής
- L : μήκος σχισμής
- Q : ρυθμός ροής
- h : πυκνότητα αέρα
- V : ταχύτητα αέρα
- ρ : πυκνότητα μάζας σωματιδίου
- C_c _ συντελεστής Cunningham
- d₅₀ : μέγεθος αποκοπής κάθε σταδίου
- Stk₅₀ _ : αριθμός Stokes για 50% ικανότητα συλλογής για δειγματολήπτες πρόσκρουσης

Στάδιο	d ₅₀ [m]		ρ [kg/m³]	W [m]	L [m]	Stk ₅₀
1	1.02E-05		1000	3.96E-03	1.23E-01	0.6
2	2 4.20E-06		1000	1.63E-03	1.24E-01	0.58
3	2.10E-	-06	1000	9.14E-04	1.24E-01	0.52
4	1.30E-	-06	1000	4.57E-04	1.24E-01	0.69
5	6.90E-	07	1000	2.54E-04	1.24E-01	0.69
6	3.90E-	07	1000	1.52E-04	1.24E-01	0.69
Στάδιο	Q [m ³ /s]	Cc	h [kg/ms]	V [m/s]		
1	1.05E-03	1.02	1.81E-05	2.15E+00		
2	9.43E-04	1.04	1.81E-05	4.67E+00		
3	9.43E-04	1.08	1.81E-05	8.32E+00		
4	9.43E-04	1.13	1.81E-05	1.66E+01		
5	9.43E-04	1.24	1.81E-05	3.00E+01		
6	9.43E-04	1.42	1.81E-05	5.01E+01		

20 cfm

Πίνακας 3.2 Τιμές σημαντικών παραμέτρων για τα στάδια του δειγματολήπτη Andersen High Volume Cascade Impactor για την παροχή των 20 cfm (Tisch Environmental, Inc, 2004).

Κατά τη διάρκεια εκπόνησης της Δ.Δ. ο δειγματολήπτης βαθμονομήθηκε δύο φορές, με χρήση κατάλληλου εξοπλισμού που φαίνεται στο σχήμα 3.6. Η πρώτη βαθμονόμηση έγινε στα πλαίσια του ελέγχου της ορθής λειτουργίας του οργάνου και η δεύτερη μετά από εκτεταμένη βλάβη και επισκευή του δειγματολήπτη³.Η διαδικασία βαθμονόμησης και τα σχετικά αποτελέσματα παρατίθενται στο Παράρτημα Α.



Σχήμα 3.6 Εξοπλισμός βαθμονόμησης Αδρανειακού δειγματολήπτη πολλαπλών σταδίων Andersen High Volume Cascade Impactor (G2535)

3.4 Προετοιμασία φίλτρων για δειγματοληψία

Για τις δειγματοληψίες που πραγματοποιήθηκαν με το δειγματολήπτη Andersen στα πλαίσια της Δ.Δ. επιλέχθηκε φίλτρο το οποίο ελαχιστοποιούσε κατά το δυνατόν το φαινόμενο της αναπήδησης των σωματιδίων κατά τη συλλογή τους, η οποία λόγω των

³ Στην πραγματικότητα πρόκειται για αντικατάσταση της αντλίας του δειγματολήπτη

υψηλών ταχυτήτων που αναπτύσσονται κατά τη διάρκεια της δειγματοληψίας είναι αρκετά σημαντική. Συγκεκριμένα, χρησιμοποιήθηκαν φίλτρα κυτταρίνης διαστάσεων 8×10" της εταιρίας Whatman 41 Quantitative (σχήμα 3.7).



Σχήμα 3.7 Φίλτρο κυτταρίνης Whatman 41 Quantitative.

Τα φίλτρα κυτταρίνης είναι πολύ αποδοτικά για συλλογή αερολύματος με χρήση δειγματολήπτη υψηλού όγκου, καθώς παρουσιάζουν μικρή πτώση πίεσης. Επίσης, είναι σχετικά οικονομικά και έχουν πολύ καλή μηχανική αντοχή (Baron και Willeke, 2001). Τα φίλτρα αυτά επίσης κυκλοφορούν στην αγορά σε διάφορες διαστάσεις, ενώ επιπλέον δίνουν τη δυνατότητα στον χρήστη να τα μορφοποιεί κατάλληλα και να τους προσδίδει τις επιθυμητές διαστάσεις και μορφή με ευκολία, κάτι που έγινε στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. Σύμφωνα με τους (Pekney and Davidson, 2005), για τα φίλτρα αυτού του τύπου και για ονομαστική παροχή 40 cfm, ο βαθμός απώλειας υλικού λόγω της σταδιακά απομειούμενης ικανότητας κατακράτησης ΑΣ κατά την διάρκεια της δειγματοληψίας, έχει εκτιμηθεί ότι είναι <8% για τα σωματίδια διαμέτρου 0.3 μm. Ένα επιπλέον πλεονέκτημα των φίλτρων αυτών είναι ότι το υλικό του φίλτρου δεν δημιουργεί προβλήματα λόγω υποστρώματος και πάχους υλικού κατά τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση, η οποία συνήθως ακολουθεί τέτοιους είδους δειγματοληψίες. Κατά συνέπεια, το φίλτρο κυτταρίνης πληροί όλες τις προϋποθέσεις που τίθενται για τη δειγματοληψία και την ανάλυση του φίλτρου.

Όπως φαίνεται στο σχήμα 3.5 τα διάφορα στάδια του δειγματολήπτη διαθέτουν μία σειρά από σχισμές. Είναι λοιπόν σημαντικό τα φίλτρα που θα χρησιμοποιηθούν – με εξαίρεση το τελευταίο φίλτρο – να διαθέτουν κατάλληλες σχισμές που να επιτρέπουν τη διέλευση του αέρα μέσα από τα διάφορα στάδια. Οι σχισμές αυτές θα πρέπει να διαμορφωθούν πριν από την τοποθέτηση των φίλτρων.

Για τη διαμόρφωση σχισμών καταλλήλων διαστάσεων χρησιμοποιείται ο εξοπλισμός του σχήματος 3.8. Πρόκειται για οδηγό κοπής από πλεξιγκλάς, τετράγωνου σχήματος με διαστάσεις ίδιες με τις διαστάσεις των σταδίων του δειγματολήπτη (15cm x 14.5cm) ο οποίος διαθέτει δέκα σχισμές πλάτους 0.5 cm. Το φίλτρο τοποθετείται κάτω από τον οδηγό, και αφού πρώτα κοπεί περιφερειακά στις κατάλληλες διαστάσεις, με την βοήθεια κατάλληλου νυστεριού διαμορφώνονται οι σχισμές πάνω στα φίλτρα. Στο σχήμα 3.9 που ακολουθεί φαίνεται η διαδικασία διαμόρφωσης του φίλτρου καθώς και τα 6 φίλτρα που θα τοποθετηθούν στα στάδια του δειγματολήπτη διαμορφωμένα και έτοιμα προς χρήση.



Σχήμα 3.8 Εξοπλισμός διαμόρφωσης φίλτρων που χρησιμοποιήθηκαν στα πειράματα της παρούσας Δ.Δ.



Σχήμα 3.9 Διαδικασία κοπής και διαμόρφωσης σχισμών των φίλτρων που χρησιμοποιήθηκαν στα πειράματα της παρούσας Δ.Δ. και έτοιμα προς χρήση διαμορφωμένα φίλτρα

Για να μειωθεί το φαινόμενο της αναπήδησης των σωματιδίων, αφού τα φίλτρα κοπούν και διαμορφωθούν κατάλληλα, ακολουθεί η επάλειψη τους με Apiezon L διαλυμένο σε ισοοκτάνιο σε αναλογία 10%-90% (Dunbar et al., 2005; Lee et al., 2005; Schumann et al., 1988).



Σχήμα 3.10 Υλικά που χρησιμοποιούνται για την επάλειψη των φίλτρων.

Η διαδικασία επάλειψης των φίλτρων πραγματοποιείται εντός απαγωγού αέρα (hood). Κατά την επάλειψη χρησιμοποιούνται γάντια πολυαιθυλενίου, καθαρό πινέλο, νυστέρι και λαβίδες, ώστε να αποκλείεται το ενδεχόμενο επιμόλυνσης του. Στη συνέχεια, τα φίλτρα παραμένουν εντός του απαγωγού για ικανό χρόνο ώστε να στεγνώσουν πλήρως.



Σχήμα 3.11 Διαδικασία επάλειψης φίλτρων με διάλυμα Apiezon σε Ισοοκτάνιο, και φίλτρα έτοιμα προς χρήση (μετά την επάλειψη) όπως χρησιμοποιήθηκαν στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ.

Μετά την προετοιμασία τους τα φίλτρα είναι έτοιμα για να τοποθετηθούν στον δειγματολήπτη (σχήμα 3.12). Στο Σχήμα 3.13 διακρίνεται ο δειγματολήπτης συγκροτημένος με όλα τα στάδια τοποθετημένα στη θέση τους.



Σχήμα 3.12 Διαδικασία τοποθέτησης των φίλτρων στο δειγματολήπτη.



Σχήμα 3.13 Δειγματολήπτης πολλών σταδίων έτοιμος για δειγματοληψία.

3.5 Πρωτόκολλα δειγματοληψίας

Τα πρωτόκολλα δειγματοληψίας που χρησιμοποιήθηκαν στα πλαίσια της Δ.Δ. βασιζόταν σε συνεχόμενες διαδοχικές δειγματοληψίες διάρκειας μίας εβδομάδας έκαστη. Ο δειγματολήπτης λειτουργούσε σταθερά με παροχή 20 cfm. Ως αποτέλεσμα, κατά τη διάρκεια μίας δειγματοληψίας, μετά από 168 ώρες (7 ημέρες) ο όγκος του αερολύματος που έχει διέλθει μέσα από τα φίλτρα ήταν της τάξης των ~ 5000 m³ (υπολογισμένος σε συνθήκες περιβάλλοντος). Επισημαίνεται ότι λόγω :

- του μεγάλου πλήθος των δειγμάτων που προκύπτουν με τη χρήση αδρανειακού συλλέκτη πολλών σταδίων,
- του χρόνου υποδιπλασιασμού του ⁷Be (53.3 ημέρες) που δεν επιτρέπει μεγάλη καθυστέρηση στην ανάλυση των φίλτρων,
- της διαθεσιμότητας των διατάξεων γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης του ΕΡΠ, λαμβάνοντας υπόψη ότι υπάρχει ανάγκη ανάλυσης και άλλων δειγμάτων,

δεν ήταν εφικτό να αναλύονται με γ-φασματοσκοπική ανάλυση – και ως εκ τούτου δεν είχε νόημα να συλλέγονται – εβδομαδιαία δείγματα που να περιλαμβάνουν όλα τα στάδια του δειγματολήπτη. Για το λόγο αυτό υιοθετήθηκαν τα παρακάτω πρωτόκολλα δειγματοληψίας:

- Πρωτόκολλο #1: Η δειγματοληψία γίνεται μόνο με τα στάδια #1, #3 και το φίλτρο που βρίσκεται στο τέλος τους cascade impactor (back up filter)⁴. Σε αυτή την περίπτωση αναλύεται μόνο το back up φίλτρο, καθώς με αυτό το συνδυασμό σταδίων, το back up φίλτρο συγκεντρώνει σωματίδια διαμέτρου 2.1 μm. Υπενθυμίζεται ότι τα σωματίδια που κυρίως μελετώνται, λόγω της ιδιαίτερης σημασίας της απόθεσής τους στο ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα, είναι τα ΑΣ_{2.5} Το πρωτόκολλο αυτό ακολουθείται τρεις εβδομάδες κάθε μήνα.
- Πρωτόκολλο #2: Η δειγματοληψία γίνεται με όλα τα στάδια του δειγματολήπτη. Το πρωτόκολλο αυτό ακολουθείται μία εβδομάδα κάθε μήνα. Η εβδομάδα αυτή επιλέγεται με βάση κάποιο χαρακτηριστικό γεγονός που εκτιμάται ότι επηρεάζει το αερόλυμα της ατμόσφαιρας, όπως μεταφορά αφρικανικής σκόνης, έντονες βροχοπτώσεις, επεισόδια καύσης βιομάζας κλπ). Η επιλογή της εβδομάδας αυτής γινόταν με χρήση κατάλληλου λογισμικού που δίνει ασφαλείς προγνώσεις, όπως το Hysplit, ή άλλων πηγών πληροφοριών⁵ όπως χάρτες καύσης βιομάζας από δορυφόρους της NASA, το σύστημα Skiron⁶, κλπ.

3.6 Συλλογή φίλτρων και προετοιμασία δειγμάτων για ανάλυση

Μετά τη δειγματοληψία και τη συλλογή των φίλτρων από τον δειγματολήπτη, τα φίλτρα παραμένουν σε χώρο που επικρατούν σταθερές συνθήκες θερμοκρασίας και σχετικής υγρασίας (20°C και 45 – 50%) για χρονικό διάστημα πλέον των 24 ωρών, προκειμένου να απομειωθούν τα βραχύβια θυγατρικά του ραδονίου τα οποία έχουν χρόνο ημιζωής που κυμαίνεται από μερικά δευτερόλεπτα ως μερικά λεπτά. Με αυτό τον τρόπο επιτυγχάνεται μείωση του υποστρώματος της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης και βελτίωση των επιπέδων ανίχνευσης και της στατιστικής της μέτρησης.

Εν συνεχεία, τα φίλτρα διαμορφώνονται σε κατάλληλες γεωμετρίες προκειμένου να ακολουθήσει η γ-φασματοσκοπική ανάλυση τους. Στο σχήμα 3.14 διακρίνονται τα φίλτρα από τα διάφορα στάδια του δειγματολήπτη, αμέσως μετά την αφαίρεση τους από αυτόν,

⁴ Τα αντίστοιχα μεγέθη αποκοπής φαίνονται στον πίνακα 3.1

⁵ Σε επόμενο κεφάλαιο δίνονται περισσότερες πληροφορίες σχετικά

⁶ Πρόκειται για ολοκληρωμένο σύστημα προσομοίωσης περιορισμένης περιοχής για την κανονική πρόγνωση καιρού και τον κύκλο σκόνης στην ατμόσφαιρα που έχει αναπτυχθεί από την Ομάδα Ατμοσφαιρικών Μοντέλων και Πρόγνωσης Καιρού του Τμήματος Φυσικής του Εθνικού και Καποδιστριακού Πανεπιστημίου Αθηνών (https://forecast.uoa.gr/el/forecast-maps/skiron).

ενώ στο σχήμα 3.15 διακρίνεται φίλτρο μετά την τοποθέτησή του σε δοχείο petri, προκειμένου να ακολουθήσει η γ-φασματοσκοπική ανάλυσή του. Όπως διαπιστώνεται από τα σχήματα αυτά, η περιοχή στην οποία συλλέγονται τα ΑΣ διαγράφεται σαφώς πάνω στα φίλτρα.

Stage 5	Stage 3	Stage 1	
Stage 6	Stage 4	Stage 2	Back up filter

Σχήμα 3.14 Φίλτρα σταδίων μετά το πέρας της δειγματοληψίας



Σχήμα 3.15 Φίλτρο σταδίου (α) όπως προέκυψε μετά από την δειγματοληψία (β) και (γ) μέσα στο δοχείο petri

Το φίλτρο back up δεν αναλύεται ολόκληρο με γ-φασματοσκοπική ανάλυση, αλλά μόνο ένα τμήμα του, καθώς το υπόλοιπο χρησιμοποιείται για άλλου είδους αναλύσεις⁷. Για το σκοπό αυτό, από το αρχικό φίλτρο αποκόπτονται έξι κυκλικοί δίσκοι διαμέτρου 70 mm, οι οποίοι τοποθετούνται σε δοχείο petri (σχήμα 3.16) και ακολούθως αναλύεται με τεχνικές γφασματοσκοπίας.



Σχήμα 3.16 Φίλτρο back up μέσα στο δοχείο petri, πριν τη γ-φασματοσκοπική ανάλυσή του

Διδακτορική Διατριβή Αικατερίνης Δαλάκα

⁷ Όπως αναλύσεις με τεχνικές α-φασματοσκοπίας, μετρήσεις για προσδιορισμό άνθρακα και άλλων μη ραδιενεργών ρυπαντών

3.7 Ισότοπα ενδιαφέροντος

Τα δείγματα τα οποία συλλέχθηκαν στα πλαίσια της Δ.Δ. αναλύθηκαν με τεχνικές γφασματοσκοπικής ανάλυσης, τόσο στα πλαίσια των αναλύσεων ρουτίνας⁸ του ΕΡΠ για την παρακολούθηση της ραδιενέργειας του περιβάλλοντος, όσο και με στόχο τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης μίας σειράς ισοτόπων που ανιχνεύονται στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα. Στις παραγράφους που ακολουθούν παρατίθενται στοιχεία για τα ισότοπα ενδιαφέροντος τα οποία μελετήθηκαν ιδιαίτερα στα πλαίσια της Δ.Δ.

3.7.1 Το ισότοπο κοσμικής προέλευσης ⁷Be

To ⁷Be είναι ένα φυσικό ραδιενεργό ισότοπο κοσμικής προέλευσης (cosmogenic radionuclide) το οποίο χρησιμοποιείται συχνά ως ιχνηθέτης, κυρίως για τη μελέτη της κίνησης των αερίων μαζών, των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος και της ρύπανσης της ατμόσφαιρας. Θεωρείται ιδιαίτερα αξιόπιστος ιχνηθέτης, ιδιαίτερα όταν χρησιμοποιείται για τη μελέτη φαινομένων τα οποία εξελίσσονται σε ετήσια βάση, όπως είναι η κίνηση των αερίων μαζών και η κατακόρυφη διάχυση τους (Cho et al.,2007). Το ισότοπο ⁷Be χρησιμοποιείται επιπλέον για τη μελέτη του ενδεκαετούς κύκλου των ηλιακών φάσεων, καθώς ο ρυθμός παραγωγής του στην ατμόσφαιρα εξαρτάται ευθέως από την φάση στην οποία βρίσκεται η ηλιακή δραστηριότητα, και το ποσοστό της ηλιακής πεδίο και την ηλιακή δραστηριότητα εν γένει.

3.7.1.1 Παραγωγή του ισοτόπου ⁷Be

To ⁷Be είναι ένα σχετικά βραχύβιο ισότοπο με χρόνο ημιζωής 53.3 ημέρες, το οποίο εκπέμπει φωτόνια ενέργειας 477.59 keV με ποσοστό εκπομπής 10.4%. Παράγεται στη στρατόσφαιρα (~70%) και στην ανώτερη τροπόσφαιρα (~30%) μέσω διεργασιών κατακερματισμού (spallation) ελαφρών ατμοσφαιρικών πυρήνων, όπως οι πυρήνες του άνθρακα, του αζώτου και του οξυγόνου, εξαιτίας της προσβολής τους από πρωτόνια ή νετρόνια κοσμικής ακτινοβολίας υψηλής ενέργειας (1 GeV) (Lal et al, 1958; Rindi and Charalambous, 1967). Το γεγονός αυτό έχει ως αποτέλεσμα οι συγκεντρώσεις του ισότοπου ⁷Be να έχουν εξάρτηση από το γεωγραφικό πλάτος. Το παραγόμενο στη στρατόσφαιρα ⁷Be εισέρχεται στην τροπόσφαιρα μέσω διεργασιών ανταλλαγής αερίων μαζών μεταξύ τροπόσφαιρας και στρατόσφαιρας, ως αποτέλεσμα των εποχικών εναλλαγών στις ατμοσφαιρικές συνθήκες.

Καθώς μετά την παραγωγή του το ⁷Be αποτίθεται στα σωματίδια του ατμοσφαιρικού αερολύματος, μέσω της μελέτης των διακυμάνσεων της συγκέντρωσης του ⁷Be στην ατμόσφαιρα και του προσδιορισμού του χρόνου παραμονής του στην ατμόσφαιρα, εκτιμάται και ο χρόνος παραμονής των ΑΣ στην ατμόσφαιρα των σωματιδίων του αερολύματος που είναι οι φορείς του. Το γεγονός αυτό είναι πολύ σημαντικό, κυρίως σε μελέτες ατμοσφαιρικής ρύπανσης.

Εξαιτίας κυρίως της χαμηλής συγκέντρωσης του ⁷Be στην ατμόσφαιρα (συνήθως < 8-10 mBq/m³) οι σχετικές μελέτες που συναντώνται στη βιβλιογραφία, συνήθως αναφέρονται σε

⁸ Το ΕΡΠ ως μέλος του διεθνούς δικτύου εργαστηρίων Ring of five (Ro5), αλλά και ως μέλος του δικτύου συνεργαζομένων εργαστηρίων της Ελληνικής Επιτροπής Ατομικής Ενέργειας, πραγματοποιεί συστηματικές μετρήσεις της ραδιενέργειας στον αέρα, ενώ δραστηριοποιείται και σε περιπτώσεις έκτακτων γεγονότων που συνδέονται με την εκπομπή ραδιενεργών ισοτόπων στον αέρα.

δειγματοληψίες πολλών ημερών, παρέχοντας μέσες μηνιαίες, εβδομαδιαίες και ημερήσιες συγκεντρώσεις ⁷Be (Papastefanou and Ioannidou 1995; Gregory, 1996; Aldahan et al., 2001; Yu K. N. and Lee L.Y.L., 2002; Azahra et al., 2003; Cannizzaro et al, 2004; Papastefanou and Ioannidou, 2004; Daish et al., 2005; Ioannidou et al., 2005; Kulan 2006), αν και αναφέρονται και μελέτες που στηρίζονται σε δειγματοληψίες μικρής διάρκειας – μόλις λίγων ωρών – με ικανοποιητική ακρίβεια (Papandreou et al, 2011).

3.7.1.2 Χρήση του ισοτόπου ⁷Be ως ιχνηθέτη ατμοσφαιρικών διεργασιών

Δύο είναι οι βασικές διεργασίες που συμβάλουν στην εναπόθεση του ⁷Βė:

- άμεση απόθεση, μέσω διεργασιών βαρυτικής καθίζησης των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος (ξηρή εναπόθεση), και
- έμμεση απόθεση, μέσω κατακρημνίσεων (υγρή εναπόθεση).

Σύμφωνα με τους (Percot et al., 2013) υπάρχει αρνητική συσχέτιση μεταξύ του ⁷Be και της σχετικής υγρασίας της ατμόσφαιρας. Αυτό αποδίδεται στην αύξηση της διαμέτρου των ΑΣ λόγω διεργασιών συμπύκνωσης, με αποτέλεσμα τα ΑΣ σε συνθήκες αυξημένης υγρασίας να είναι περισσότερο επιρρεπή στο να αποτεθούν μέσω της βαρυτικής καθίζησης στο έδαφος, κάτι που έχει ως συνέπεια τη μειωμένη συγκέντρωση στην ατμόσφαιρα.

Όσον αφορά στη συσχέτιση μεταξύ της συγκέντρωσης του ⁷Be στην ατμόσφαιρα και της θερμοκρασίας, μελέτες έχουν δείξει την ύπαρξη θετικής συσχέτισης (σχήμα 3.17). Αυτό μπορεί να εξηγηθεί από το γεγονός ότι οι υψηλές θερμοκρασίες στην επιφάνεια της Γης ευνοούν την εισβολή αερίων μαζών από τα ανώτερα στρώματα της ατμόσφαιρας, τα οποία είναι εμπλουτισμένα σε ⁷Be (Feely et al., 1989; Rogers et al., 1991; Ioannidou et al., 2005; Duenas et al., 2009). Αυτή η ατμοσφαιρική αστάθεια έχει μεγάλο αντίκτυπο στον χρόνο παραμονής των ΑΣ στην ατμόσφαιρα, με αποτέλεσμα τα ΑΣ στην ατμόσφαιρα να έχουν μικρότερο μέγεθος (Winkler et al., 1998). Πάντως, στο σημείο αυτό θα πρέπει να επισημανθεί και η πιθανή συσχέτιση μεταξύ των μεγεθών θερμοκρασίας και σχετικής υγρασίας στην ατμόσφαιρα.



Σχήμα 3.17 Χρονοσειρά συγκεντρώσεων ⁷Be και συσχέτισή της με τις θερμοκρασιακές διακυμάνσεις (Duenas et al., 2009)

Έχει πολύ ενδιαφέρον να αναφερθεί ότι παρατηρείται μία πιθανή ασθενής αρνητική συσχέτιση μεταξύ του ύψους βροχόπτωσης και της συγκέντρωσης του ⁷Be στην ατμόσφαιρα, όπως φαίνεται και από το σχήμα 3.18. Εξάλλου, μελέτες έχουν δείξει ότι οι χιονοπτώσεις είναι πιο αποδοτικές σε σχέση με τις βροχοπτώσεις στην εναπόθεση του ⁷Be

Διδακτορική Διατριβή Αικατερίνης Δαλάκα

(Ioannidou et al., 2006). Άλλες μελέτες, όπως αυτές των Monaghan (1989), and Likuku (2006), Duenas et al. (2009), δείχνουν μία αρνητική συσχέτιση μεταξύ των κατακρημνίσεων και της ειδικής ραδιενέργειας του ⁷Be (Bq/m³), σε συνδυασμό με μία αξιόλογη αύξηση της ειδικής ραδιενέργειας του, κάτω από ξηρές ατμοσφαιρικές συνθήκες, κάτι που αποδίδεται στην έλλειψη υγρής απόθεσης. Το γεγονός όμως ότι οι συσχετίσεις αυτές – εφόσον υπάρχουν – δεν είναι ισχυρές, ουσιαστικά δείχνει ότι οι κατακρημνίσεις δεν είναι πιθανότατα η κύρια παράμετρος που καθορίζει την συγκέντρωση του ισοτόπου ⁷Be στον αέρα.



Σχήμα 3.18 Εβδομαδιαία επίπεδα βροχόπτωσης και διακυμάνσεις των συγκεντρώσεων του ⁷Be (Aldahan et al., 2001)

3.7.1.3 Χρήση του ισοτόπου ⁷Be σε μελέτες υγρής εναπόθεσης απόπλυσης ΑΣ και έκπλυσης της ατμόσφαιρας

Δύο είναι οι βασικοί μηχανισμοί της υγρής εναπόθεσης των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος, η απόπλυση (rainout) ΑΣ λόγω βροχής και η έκπλυση (washout) της ατμόσφαιρας. Όταν οι πυρήνες ενός ισοτόπου λειτουργούν ως πυρήνες συμπύκνωσης της υγρασίας, δηλαδή υπάρχουν ήδη μέσα στις σταγόνες της βροχής ή τις χιονονιφάδες, τότε η απομάκρυνσή των πυρήνων αυτών με τις υγρές κατακρημνίσεις αναφέρεται ως **απόπλυση των ΑΣ**. Όταν οι πυρήνες των ισοτόπων υπάρχουν στην ατμόσφαιρα και παρασύρονται από τις σταγόνες της βροχής ή από τις χιονονιφάδες και καταλήγουν στο έδαφος, το φαινόμενο αναφέρεται ως **έκπλυση της ατμόσφαιρας**.

Στην περίπτωση του ⁷Be, η εναπόθεση μπορεί να πραγματοποιηθεί και με τους δύο τρόπους. Μελέτες έχουν δείξει ότι μετά από επεισόδια βροχόπτωσης τα επίπεδα των συγκεντρώσεων του ισοτόπου ⁷Be στην ατμόσφαιρα είναι χαμηλότερα. Για το λόγο αυτό συνηθίζεται να συγκεντρώνονται δείγματα νερού της βροχής και εν συνεχεία να προσδιορίζονται τα επίπεδα του ισοτόπου στο νερό με τεχνικές γ-φασματοσκοπίας (Erickson 1997; Papandreou et al., 2011), (Savva et al, 2018).

Οι συγκεντρώσεις του ισοτόπου ⁷Be στον αέρα και στο νερό της βροχής χρησιμοποιούνται συχνά για την εκτίμηση της κύμανσης της απόθεσης του ⁷Be, η οποία επηρεάζεται τόσο από ξηρές όσο και από υγρές διεργασίες. Στην υγρή εναπόθεση οι υγρές κατακρημνίσεις μεταφέρουν το ⁷Be από τα ανώτερα στρώματα της ατμόσφαιρας στο έδαφος. Αυτές οι διεργασίες λαμβάνουν χώρα κατά κύριο λόγο κατά τους θερινούς και εαρινούς μήνες,

οπότε διευκολύνεται η μεταφορά αερίων μαζών από τη στρατόσφαιρα στην τροπόσφαιρα, λόγω αύξησης της θερμοκρασίας στην επιφάνεια της Γης. Μελέτες έχουν αποδείξει την θετική συσχέτιση μεταξύ των επιπέδων των κατακρημνίσεων (βροχοπτώσεις, χιονοπτώσεις) με τον ρυθμό εναπόθεσης του ⁷Be στο έδαφος (Papandreou et al.,2011; Chao et al., 2012). Ο λόγος της συνολικής ξηρής εναπόθεσης προς την ολική εναπόθεση του ⁷Be, εξαρτάται από τις τοπικές κλιματικές συνθήκες και έχει προσδιορισθεί για την περιοχή της Θεσσαλονίκης πειραματικά σε περίπου 10% (Ioannidou et al., 2006). Η βιβλιογραφική ανασκόπηση των μεθόδων αυτών ξεφεύγει από τα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. γι αυτό και δειγματοληψίας που χρησιμοποιούνται.

3.7.1.4 Μελέτη της κατανομής μεγέθους ΑΣ μέσω της κατανομής του ⁷Be στα διάφορα κλάσματα του ατμοσφαιρικού αερολύματος

Η κατανομή των ραδιενεργών ισοτόπων που υπάρχουν στην ατμόσφαιρα πάνω στα ΑΣ του αερολύματος είναι αποτέλεσμα συνδυασμού ατμοσφαιρικών διεργασιών, όπως η σύμπτυξη υπέρλεπτων σωματιδίων, ο σχηματισμός σταγόνων της ομίχλης και των νεφών, η εξάτμιση, η συμπύκνωση, η έκπλυση της ατμόσφαιρας, η απόπλυση μέσω βροχής, καθώς και της συνεισφοράς διεργασιών όπως χιονοθύελλες, και η ύπαρξη προϊόντων καύσης στο μείγμα αερολύματος της τροπόσφαιρας. Η τελική κατανομή μεγεθών των ΑΣ αποτυπώνει όλες αυτές τις επιμέρους ανεξάρτητες διεργασίες (Winkler et al.,1998).

Όπως είναι γνωστό, οι καιρικές συνθήκες επηρεάζουν σημαντικά την κατανομή μεγεθών των ΑΣ (loannidou, 2011). Μάλιστα μελέτες έχουν δείξει ότι υπάρχει αρνητική συσχέτιση μεταξύ της συγκέντρωσης του ⁷Be στην ατμόσφαιρα και της σχετικής υγρασίας, κάτι το αναμενόμενο, καθώς η διάμετρος των υγροσκοπικών σωματιδίων αυξάνει με την προσρόφηση υγρασίας, με αποτέλεσμα την αύξηση της ταχύτητας εναπόθεσης. Αυτός είναι και ο σημαντικότερος λόγος που τα μικρότερου μεγέθους ΑΣ παραμένουν περισσότερο στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα και αργότερα γίνονται φορείς, τόσο του ισοτόπου ⁷Be, όσο και άλλων ραδιενεργών πυρήνων. Υπό αυτή την έννοια, η περιεκτικότητα των ΑΣ σε ⁷Be, θα μπορούσε να συνδεθεί – εκτός των άλλων – τόσο με το μέγεθος του σωματιδίου, όσο και με το χρόνο παραμονής του στην ατμόσφαιρα, δηλαδή την ηλικία του.

3.5.1.5 Χρήση του ισοτόπου ⁷Be ως ιχνηθέτη στη μελέτη της εποχικής διακύμανσης ατμοσφαιρικών μεταβλητών

To ⁷Be που παράγεται στην στρατόσφαιρα εισέρχεται στην τροπόσφαιρα μέσα από την κατακόρυφη κίνηση των αερίων μαζών μεταξύ τροπόσφαιρας και στρατόσφαιρας λόγω ατμοσφαιρικών συνθηκών που σχετίζονται με εποχικές αλλαγές (Viezee and Singh, 1980; Feely et al., 1989).

Εν γένει, οι εποχικές διακυμάνσεις της συγκέντρωσης του ⁷Be στην ατμόσφαιρα έχουν αποδοθεί σε:

- Εναλλαγές αερίων μαζών μεταξύ της στρατόσφαιρας και της τροπόσφαιρας
- Εποχικές εναλλαγές στο ρυθμό της κατακόρυφης ανάμειξης εντός της τροπόσφαιρας
- Εποχικές εναλλαγές στον ρυθμό της μεταφοράς αερίων μαζών στους πόλους από τα μεσαία γεωγραφικά πλάτη
- Εναπόθεση λόγω κατακρημνίσεων
Η τροπόπαυση – το όριο μεταξύ τροπόσφαιρας και στρατόσφαιρας – διαδραματίζει έναν πολύ σημαντικό ρόλο στις διεργασίες ανταλλαγής αερίων μαζών μεταξύ της στρατόσφαιρας και της τροπόσφαιρας. Τα χαμηλότερα επίπεδα της στρατόσφαιρας είναι εμπλουτισμένα σε ραδιενεργούς πυρήνες κοσμικής προέλευσης που προέρχονται από τα ανώτερα ατμοσφαιρικά στρώματα. Καθ' όλη τη διάρκεια της άνοιξης και ειδικά στις αρχές του καλοκαιριού, το επίπεδο της τροπόπαυσης κινείται ανοδικά. Ειδικά για γεωγραφικά πλάτη άνω των 40° N, η άνοδος της τροπόπαυσης κατά τους θερινούς μήνες και η κατακόρυφη κίνηση αερίων μαζών στην τροπόσφαιρα είναι ακόμα πιο έντονη.

Οι σποραδικά «υψηλές» τιμές στις συγκεντρώσεις του ⁷Be την άνοιξη, οφείλονται κατά κύριο λόγο στις εναλλαγές αερίων μαζών μεταξύ στρατόσφαιρας και τροπόσφαιρας (Gustafson et al., 1961; Dutkiewicz and Husain, 1985). Ο συνδυασμός των υψηλών ρυθμών παραγωγής ⁷Be στην στρατόσφαιρα, και η σχετικά γρήγορη απομάκρυνση των σωματιδίων του αερολύματος από την τροπόσφαιρα, έχει ως αποτέλεσμα οι συγκεντρώσεις στρατοσφαιρικού ⁷Be να είναι μία τάξη μεγέθους υψηλότερες από ότι είναι αμέσως κάτω από την τροπόσφαιρας, οδηγεί σε μία σημαντική αύξηση των συγκεντρώσεων ⁷Be της τροπόσφαιρας κατά τους μήνες της άνοιξης.

Μελετώντας τα μετεωρολογικά δεδομένα στον ελληνικό χώρο διαπιστώθηκε ότι η τροπόπαυση φτάνει το υψηλότερό της σημείο (πάνω από 18 km με μέση τιμή τα 12 km) κατά τη θερινή περίοδο και κυρίως κατά τους μήνες Ιούλιο και Αύγουστο. Η κίνηση αυτή ευθύνεται για την διείσδυση αερίων μαζών από την στρατόσφαιρα κατευθείαν στην τροπόσφαιρα, με αποτέλεσμα τον εμπλουτισμό του αέρα κοντά στο επίπεδο της θάλασσας με ⁷Be, έτσι ώστε το καλοκαίρι να παρατηρούνται οι μέγιστες τιμές ⁷Be (Jasiulionis R. et al., 2005). Συγκεκριμένα, οι περισσότερες μελέτες δείχνουν ότι τα επίπεδα συγκέντρωσης του ⁷Be αρχίζουν να αυξάνονται από τον Μάρτιο ως τον Σεπτέμβριο (σχήματα 3.19 και 3.20).



Figure 3.19 Χρονοσειρά συγκεντρώσεων του ⁷Be στον αέρα, σε τρεις διαφορετικούς σταθμούς μέτρησης ποιότητας ατμοσφαιρικού αερολύματος, στο ίδιο γεωγραφικό πλάτος (Aldahan et al., 2001).

Επιπλέον, οι έως σήμερα μελέτες έχουν δείξει ότι στα μέσα γεωγραφικά πλάτη ο συντελεστής τυρβώδους διάχυσης στην ατμόσφαιρα και ο συντελεστής έκπλυσης των ΑΣ του ατμοσφαιρικού αερολύματος αποκτούν τη ελάχιστή τους τιμή κατά την περίοδο αυτή (Aldahan et al., 2001; Steinmann et al.,2013). Μία άλλη πιθανή εξήγηση για τις μειωμένες συγκεντρώσεις κατά τους χειμερινούς μήνες στην ατμόσφαιρα θα μπορούσε να είναι η υγρή εναπόθεση των ΑΣ, φορέων του ισοτόπου ⁷Be.

Συγκρίνοντας τις μέσες διαμέτρους ΑΣ που παρατηρούνται το καλοκαίρι με αυτές που παρατηρούνται τον χειμώνα, διαπιστώνεται ότι προκύπτουν συγκριτικά χαμηλότερες

διάμετροι το καλοκαίρι, γεγονός που καταδεικνύει το ότι τα ΑΣ έχουν μικρότερο χρόνο παραμονής στην ατμόσφαιρα κατά τους θερινούς μήνες (Winkler et al., 1998). Εξάλλου, περίοδοι που χαρακτηρίζονται από υψηλές τιμές ατμοσφαιρικής πίεσης κατά τους χειμερινούς μήνες, συσχετίζονται με σχετικά υψηλές τιμές συγκεντρώσεων ⁷Be και αυτό μπορεί να αποδοθεί σε χαμηλότερους ρυθμούς απομάκρυνσης των ΑΣ από το ατμοσφαιρικό αερόλυμα, μέσω των διαδικασιών που έχουν περιγραφεί προηγουμένως.



Figure 3.20 Χρονοσειρά συγκεντρώσεων του ⁷Be στο επίπεδο του εδάφους σε σταθμό δειγματοληψίας στην Ελβετία, για περίοδο περίπου δώδεκα ετών (Steinmann et al.,2013)

3.7.1.6 Χρήση του ισοτόπου ⁷Be ως ιχνηθέτη της ηλιακής δραστηριότητας

Υπάρχουν πολλές μελέτες που χρησιμοποιούν ισότοπα κοσμικής προέλευσης όπως είναι το ¹⁰Be και το ¹⁴C για τη μελέτη του ενδεκαετούς κύκλου του ήλιου, φτάνοντας πίσω έως το 1610 μ.Χ., καθώς πριν από αυτή τη χρονική περίοδο δεν υπάρχουν πληροφορίες σχετικά με τον καταγεγραμμένο αριθμό των ηλιακών κηλίδων, που αποτελεί μία συνηθισμένη ένδειξη της ηλιακής δραστηριότητας (Kikuchi et al, 2009. Είναι φανερό ότι για τέτοιου είδους μελέτες είναι πολύ σημαντικό να υπάρχουν πληροφορίες σχετικά με: (i) τη συγκέντρωση ενός τουλάχιστον των παραπάνω ισοτόπων κοσμικής προέλευσης στον αέρα, (ii) τον αριθμό των ηλιακών κηλίδων αυτάς ακτινοβολίας κατά το χρονικό διάστημα αυτό (Kikuchi et al, 2009).

Ο μέσος χρόνος παραμονής του ⁷Be στην τροπόσφαιρα είναι περίπου 28.2 ημέρες και μπορεί να φτάσεις έως τα 2 χρόνια στην στρατόσφαιρα, ενώ μόνον ένα πολύ μικρό ποσοστό ~1% από το συνολικά παραγόμενο ⁷Be αποτίθεται στην επιφάνεια του εδάφους, (Stanley, 1982; Rehfeld and Heimann, 1995).

Οι μέχρι τώρα μελέτες έχουν αποδείξει ότι η κοσμική ακτινοβολία και ως εκ τούτου και οι μεταβολές στις συγκεντρώσεις του ⁷Be στην ατμόσφαιρα εξαρτώνται από:

Το πλήθος των ηλιακών κηλίδων. Οι ηλιακές κηλίδες είναι σκουρόχρωμοι σχηματισμοί του εσωτερικού στρώματος της ατμόσφαιρας του ήλιου, όπου εμφανίζονται συγκριτικά χαμηλότερες θερμοκρασίες. Στις περιοχές αυτές σχηματίζεται ισχυρό μαγνητικό πεδίο, που μπορεί να είναι έως και 10³ φορές ισχυρότερο από το μαγνητικό πεδίο του ηλίου. Το πλήθος των ηλιακών κηλίδων μεταβάλλεται περιοδικά και κυμαίνεται μεταξύ ενός μεγίστου πλήθους, έως και της πλήρους απουσίας τους. Η περίοδος του φαινομένου είναι περίπου 11 χρόνια, και ονομάζεται ενδεκαετής κύκλος του ήλιου. Καθώς ο μαγνητικό πεδίο του ηλίου προστατεύει τη Γη από την κοσμική ακτινοβολία γαλαξιακής προέλευσης, όταν οι

ηλιακές κηλίδες φτάσουν το μέγιστό τους (τόσο σε πλήθος όσο και σε ένταση) οπότε το ηλιακό μαγνητικό πεδίο φτάνει στο μέγιστό του, η Γη είναι περισσότερο προστατευμένη από την κοσμική ακτινοβολία. Ως αποτέλεσμα, ο ρυθμός παραγωγής του ⁷Be είναι σε αρνητική συσχέτιση με το πλήθος των ηλιακών κηλίδων, όπως έχει αποδειχθεί πειραματικά (Cannizzaro F. et al, 2004; Hoetzl H.et al., 1991) και διακρίνεται και στα σχήματα 3.21 και 3.22.



Figure 3.21 Συγκεντρώσεις 7Be στον αέρα και πλήθος των ηλιακών κηλίδων μεταξύ των ετών 2000 και 2001 (Sakurai et al., 2005)

- Τον ηλιακό άνεμο (συχνά αναφέρεται και ως ηλιακή σωματιδιακή ακτινοβολία, που είναι κυρίως πρωτόνια και ηλεκτρόνια). Πειραματικά δεδομένα έχουν δείξει ότι όταν το φαινόμενο αυτό εκλείπει στην ατμόσφαιρα παρατηρούνται χαμηλά επίπεδα συγκεντρώσεων ⁷Be (Papastefanou C. et al., 2004).
- Μαγνητικές καταιγίδες. Παράγονται λόγω της σύγκρουσης των νεφών του ηλιακού πλάσματος με την μαγνητόσφαιρα της γης και μπορούν να προκαλέσουν κύμανση του μαγνητικού πεδίου της Γης. Η κύμανση αυτή με τη σειρά της μπορεί να οδηγήσει σε μεταβολές στον ρυθμό παραγωγής του ⁷Be, σε βαθμό που να παρατηρηθούν αλλαγές της συγκέντρωσής του στην ατμόσφαιρα (Lal D. et al., 1967).
- Ηλιακές καταιγίδες. Πρόκειται για βίαιες εκρήξεις στην ατμόσφαιρα του ηλίου, οι οποίες ελευθερώνουν τεράστια ποσά ενέργειας, ηλεκτρομαγνητικής ακτινοβολίας και σωματίδια υψηλών ενεργειών. Αυτό το φαινόμενο οδηγεί σε αύξηση του ρυθμού παραγωγής ισοτόπων κοσμικής προέλευσης και ως εκ τούτου και του ⁷Be. Δεδομένου ότι οι ηλιακές καταιγίδες δεν είναι ένα ιδιαίτερα συνηθισμένο φαινόμενο, μελέτες έχουν δείξει ότι δεν επηρεάζουν το μέσο ρυθμό παραγωγής ισοτόπων κοτην ατμόσφαιρα (Lal D. et al., 1958; Lal D. et al., 1967).

Από όλες τις παραπάνω πληροφορίες προκύπτει ότι κάθε παράγοντας ο οποίος επηρεάζει τα επίπεδα της κοσμικής ακτινοβολίας που φτάνουν στη γη έχει άμεση επίπτωση στον ρυθμό παραγωγής των ισοτόπων κοσμικής προέλευσης και συνεπώς και

του ⁷Be, και εν τέλει στη συγκέντρωσή του στην ατμόσφαιρα. Το εύρος της κύμανσης στον ρυθμό παραγωγής του ⁷Be εξαιτίας του 11ετούς κύκλου του ήλιου στα μέσα γεωγραφικά πλάτη έχει εκτιμηθεί ότι είναι της τάξης του 40% (O'Brien et al., 1991). Κατά συνέπεια, το ισότοπο ⁷Be θα μπορούσε να χρησιμοποιηθεί ως ιχνηθέτης, για την παρακολούθηση της κύμανσης της κοσμικής ακτινοβολίας και εν τέλει της ηλιακής δραστηριότητας (Kikuchi et al., 2009).



Figure 3.22 Μέση ετήσια συγκέντρωση ⁷Be στον αέρα (ρόμβοι) και μέσο ετήσιο πλήθος ηλιακών κηλίδων (κύκλοι) (Steinmann et al., 2013)

Ένας ακόμα παράγοντας που θα μπορούσε θεωρητικά να επηρεάζει τη συγκέντρωση του ⁷Be στην ατμόσφαιρα είναι και ο 27-ήμερος κύκλος της περιστροφής του ηλίου. Πρέπει πάντως να επισημανθεί ότι οι οποίες διακυμάνσεις εξαιτίας του κύκλου αυτού πιθανότατα δεν μπορούν να παρατηρηθούν, λόγω της επίδρασης των μετεωρολογικών συνθηκών, όπως οι κατακρημνίσεις (Gerasopoulous et al.,2003), αλλά και λόγω του μεγάλου χρόνου παραμονής του ⁷Be στην στρατόσφαιρα.

3.7.1.7 Το ισότοπο ⁷Be ως ιχνηθέτης της κίνησης αερίων μαζών και κατακόρυφων εναλλαγών στα ατμοσφαιρικά στρώματα

Ως φυσικό ισότοπο κοσμικής προέλευσης το ⁷Be είναι ιδανικό προκειμένου να χρησιμοποιηθεί ως ιχνηθέτης διάφορων ατμοσφαιρικών διεργασιών, καθώς δεν επηρεάζεται από παράγοντες όπως είναι οι πυρηνικές δοκιμές (Dibb et al., 2003; Jordan et al., 2003; Gerasopoulos et al., 2006; Dibb, 2007), ενώ και η μέτρηση των επιπέδων του είναι σχετικά εύκολη.

To ⁷Be έχει χρησιμοποιηθεί στη μελέτη και στην περιγραφή διάφορων περιβαλλοντικών διεργασιών, όπως η μεταφορά αερίων μαζών και ο χρόνος παραμονής τους στην ατμόσφαιρα (Martell et al., 1974; Papastefanou et al., 1995), η ταχύτητα εναπόθεσης του ατμοσφαιρικού αερολύματος (Young et al., 1980) και ο εγκλωβισμός αερίων μαζών πάνω από περιοχές με έντονη βλάστηση (Bondietti et al., 1984). Δεδομένης μάλιστα της κοσμικής του προέλευσης, οι συγκεντρώσεις του ⁷Be στον αέρα δεν αναμένεται να εμφανίζουν μεγάλη εξάρτηση στα διάφορα είδη του αερολύματος.

Καθώς οι μεγάλες διαβαθμίσεις στο κατακόρυφο προφίλ κατανομής είναι χαρακτηριστικές στα ισότοπα κοσμικής προέλευσης και οι ρυθμοί παραγωγής ισοτόπων κοσμικής προέλευσης είναι γνωστοί με μεγάλη ακρίβεια (Lal et al., 1967), το ⁷Be αποτελεί ιδανικό ιχνηθέτη για την μελέτη της κατακόρυφης κίνησης των αερίων μαζών μεταξύ της τροπόσφαιρας και της στρατόσφαιρας. Η μελέτη του προφίλ της μέσης κατακόρυφης συγκέντρωσης συναρτήσει της συμπεριφοράς των ισοτόπων κοσμικής προέλευσης μπορεί να δώσει πληροφορίες σχετικά με την κατακόρυφη μετακίνηση αερίων μαζών μεταξύ της τροπόσφαιρας και της στρατόσφαιρας, καθώς επίσης και την εναπόθεση ΑΣ μέσω κατακρημνίσεων.

Μελέτες για την συγκέντρωση του ⁷Be στην ατμόσφαιρα, δείχνουν ότι η συνάρτηση κατανομής της πιθανότητας της συγκέντρωσης είναι μη συμμετρική και μπορεί πολύ εύκολα να προσεγγιστεί με τον λογαριθμικό νόμο (Krenevicius, Jasiulionis, 1988)

$$y = y_0 + A \exp\left[-\frac{\ln^2(\frac{x}{x_c})}{2w^2}\right]$$
(Σχέση 3.2)

όπου:

- y : η πιθανότητα του να παρουσιάζεται μια συγκέντρωση στον αέρα
- x : η συγκέντρωση στον αέρα
- y₀, A : παράμετροι που περιγράφουν την κατανομή
- xc : ο αριθμητικός σταθμισμένος μέσος της συγκέντρωσης
- w : η διασπορά της κατανομής.

Πέρα από τη συγκέντρωση του ισοτόπου στην ατμόσφαιρα, μία ακόμα σημαντική παράμετρος είναι και η διάχυση των ΑΣ που φέρουν το ισότοπο. Η εξίσωση η οποία περιγράφει την κάθετη διάχυση των σωματιδίων στην ατμόσφαιρα είναι ουσιαστικά η εξίσωση της συνέχειας:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\vec{\nabla}\vec{j} + S - R$$
 (Σχέση 3.3)

Όπου:

- c : η συγκέντρωση του ⁷Be
- *j* : η ροή του ⁷Be,
- S : ο όρος των πηγών ⁷Be

R : όρος που περιγράφει την απομάκρυνση του ⁷Be

Με την παραδοχή ότι η οριζόντια μεταφορά είναι αμελητέα – οπότε η εξίσωση γίνεται μονοδιάστατη, λαμβάνοντας υπόψη ότι η πυκνότητα του αέρα αλλάζει με το υψόμετρο, θεωρώντας ότι η συνολική ροή είναι το άθροισμα της στρωτής και της τυρβώδους, λαμβάνοντας υπόψη ότι το ⁷Be απομειώνεται με δύο μηχανισμούς, τη ραδιενεργό διάσπαση και την εναπόθεση, και θεωρώντας σταθερές συνθήκες, καταλήγουμε τελικά στην σχέση:

$$0 = \frac{\partial vc}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} \left(K\rho \frac{\partial (c/\rho)}{\partial z} \right) - (\lambda + \sigma)c + S$$
 (Σχέση 3.4)

η οποία είναι μία συνήθης διαφορική εξίσωση, δευτέρου βαθμού, με οριακές συνθήκες:

 ισορροπία μεταξύ της παραγωγής και της ραδιενεργού απομείωσης του ⁷Be σε μεγάλα υψόμετρα, (z=30km) (Jasiulionis and Wershofen, 2005), οπότε η συνιστώσα της ταχύτητας της τυρβώδους ροής είναι μηδέν στο επίπεδο του εδάφους, οπότε

$$K(0)\rho(0)\frac{\partial(c/\rho)}{\partial z}\Big|_{z=0} = 0$$
 (Σχέση 3.6)

όπου Κ ο συντελεστής τριβής κάθετης διάχυσης σε m²/s

Μετά την παραγωγή του οι πυρήνες ⁷Be προσκολλώνται σε σωματίδια του αερολύματος και μέσω της κατακόρυφης κίνησης και των διάφορων μηχανισμών εναπόθεσης τελικά φτάνουν στο έδαφος (Lal and Peters, 1967). Για την κατανόηση και εν συνεχεία την μοντελοποίηση της μεταφοράς των μαζών του ατμοσφαιρικού αερολύματος και τον προσδιορισμό του ρυθμού με τον οποίο τα ισότοπα που βρίσκονται πάνω στα ΑΣ απομακρύνονται, απαιτούνται πληροφορίες σχετικές με την κατανομή μεγεθών τους, συναρτήσει της ενεργότητάς τους και των διάφορων μεταβολών που υπόκεινται συναρτήσει του χρόνου (Winkler et al.,1998).

Οι πληροφορίες σχετικά με την κατανομή μεγεθών των ΑΣ του ατμοσφαιρικού αερολύματος είναι πολύ σημαντικές, καθώς μπορούν να δώσουν πληροφορίες και να βοηθήσουν στην κατανόηση όλων των φυσικών διεργασιών που σχετίζονται με τις διάφορες ατμοσφαιρικές συνθήκες, τη ρύπανση του αέρα, και γενικά τη φυσική του αερολύματος.

Όταν ο χρόνος παραμονής του ⁷Be στην ατμόσφαιρα είναι μεγάλος, τότε η κατανομή μεγεθών των σωματιδίων που το φέρουν κινείται προς μεγαλύτερα μεγέθη, κάτι που ερμηνεύεται καθώς τα ΑΣ που φέρουν το ⁷Be απορροφούν υγρασία και μεγαλώνουν.

3.7.1.8 Συσχέτιση του ισοτόπου ⁷Be με άλλα ισότοπα

Μακροχρόνιες μετρήσεις ισοτόπων κοσμικής και άλλης προέλευσης, όπως για παράδειγμα το ισότοπο γήινης προέλευσης ²¹⁰Pb μπορούν να δώσουν χρήσιμες πληροφορίες για τη μελέτη ατμοσφαιρικών διεργασιών σε παγκόσμια κλίμακα. Ο λόγος της συγκέντρωσης τέτοιων ισοτόπων στην ατμόσφαιρα μπορεί να δώσει πληροφορίες σχετικά με την κατακόρυφη κίνηση των ατμοσφαιρικών μαζών, τη σάρωση των αερολυμάτων, το χρόνο παραμονής των ΑΣ στην τροπόσφαιρα, την ταχύτητα εναπόθεσης των ΑΣ, την πορεία που θα ακολουθήσουν διάφοροι ρύποι και γενικά τον καθορισμό διάφορων περιβαλλοντικών διεργασιών. Επιπλέον, τέτοιου είδους μετρήσεις επιτρέπουν τη συγκριτική εκτίμηση του περιβαλλοντικού αντίκτυπου από φυσικά και τεχνητά ραδιενεργά ισότοπα.

Στα πλαίσια της Δ.Δ. έγινε μία προσπάθεια μελέτης της συμπεριφοράς του λόγου των συγκεντρώσεων του ⁷Be προς άλλα ισότοπα όπως ο ²¹⁰Pb, όπως παρουσιάζεται στο 6° Κεφάλαιο. Πάντως, πρέπει να επισημανθεί ότι λόγω του είδους της ακτινοβολίας που εκπέμπει ο ²¹⁰Pb αλλά και την πολύ χαμηλή ειδική ραδιενέργεια του στην ατμόσφαιρας, υπάρχει μεγάλη δυσκολία στην ανίχνευσή και τον προσδιορισμό του με επαρκή ακρίβεια. Ένα άλλο ισότοπο κοσμικής προέλευσης το οποίο μπορεί να χρησιμοποιηθεί κατά αντίστοιχο τρόπο με το ⁷Be ή και συνδυαστικά με αυτό είναι το ²²Na το οποίο όμως εμφανίζεται με εξαιρετικά χαμηλή ενεργότητα.

Συσχέτιση της ενεργότητας των ισοτόπων ⁷Be και ²¹⁰Pb στον αέρα

Το ισότοπο ²¹⁰Pb, θυγατρικό του ²²²Rn με χρόνο υποδιπλασιασμού 22.6 έτη, χρησιμοποιείται ως ιχνηθέτης των ατμοσφαιρικών διεργασιών που έχουν να κάνουν με την

εναπόθεση σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος, με την παραμονή του αερολύματος πάνω από συγκεκριμένη περιοχή, την ατμοσφαιρική ευστάθεια και την κατακόρυφη κίνηση των αερίων μαζών (Baskaran, 2011). Μπορεί επίσης να χρησιμοποιηθεί και στην αξιολόγηση μοντέλων που περιγράφουν χημικές διεργασίες, προκειμένου να πιστοποιηθεί η αξιοπιστία τους σχετικά με την κυκλοφορία σωματιδίων σε ευρεία ή σε τοπική κλίμακα (Baskaran, 2011). Το πρόβλημα με τη μέτρηση του ²¹⁰Pb έγκειται στο ότι (i) η γ-ακτινοβολία που εκπέμπει είναι πολύ χαμηλής ενέργειας (46.5 keV) και με πολύ μικρό ποσοστό εκπομπής και για την ανίχνευσή τους απαιτούνται ειδικοί ανιχνευτές γερμανίου χαμηλών ενεργειών, και (ii) το ισότοπο ανιχνεύεται στο ραδιενεργό υπόστρωμα της ανιχνευτικής διάταξης, κάτι που εισάγει επιπλέον αβεβαιότητα στον προσδιορισμό του, ενώ ανεβάζει και το κατώτερο όριο ανίχνευσής του.

Τόσο το ⁷Be όσο και το ²¹⁰Pb είναι ισότοπα φυσικής προέλευσης, τα οποία παράγονται σε διαφορετικά ύψη στην ατμόσφαιρα, και αμέσως μετά τη δημιουργία τους προσκολλώνται σε σωματίδια του ατμοσφαιρικού αερολύματος και διασπείρονται με τον ίδιο τρόπο στα διάφορα κλάσματα των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος, ανάλογα και με τις τοπικές συνθήκες. Οι συγκεντρώσεις τους αναμένεται να διαφοροποιούνται με το χρόνο και την περιοχή. Γενικά, και τα δύο ισότοπα, αν και έχουν διαφορετική προέλευση, παρουσιάζουν εν γένει την ίδια εποχική διακύμανση, με μοναδική εξαίρεση την περίοδο της άνοιξης, όπου οι συγκεντρώσεις του ⁷Be είναι υψηλότερες απ' ότι του ²¹⁰Pb. Μακροχρόνιες μετρήσεις των ⁷Be και ²¹⁰Pb δίνουν πολύ χρήσιμες πληροφορίες σχετικά με τη μελέτη διάφορων ατμοσφαιρικών διεργασιών, αλλά και τη σύγκριση των περιβαλλοντικών επιπτώσεων της ραδιενέργειας από τις ανθρωπογενείς και τις φυσικές πηγές. Τα δύο αυτά ισότοπα θα μπορούσαν ενδεχομένως να χρησιμοποιηθούν συνδυαστικά, προκειμένου να παρέχουν πληροφορίες για την κατακόρυφη κίνηση αερίων μαζών και την πορεία που ακολουθούν στην ατμόσφαιρα ει σωματίδια του αερολύματος.

Σύμφωνα με τη βιβλιογραφία, οι συγκεντρώσεις των ⁷Be και ²¹⁰Pb παρουσιάζουν θετική συσχέτιση με την θερμοκρασία και ασθενή αρνητική συσχέτιση με την ταχύτητα του αέρα, τη σχετική υγρασία (καθώς η θερμοκρασία του αέρα και η υγρασία, παρουσιάζουν μια αντίθετη συμπεριφορά) και την ποσότητα της βροχόπτωσης. Επίσης, σύμφωνα με τη βιβλιογραφία (Duenas et., 2009), ο συντελεστής συσχέτισης του λόγου ⁷Be/²¹⁰Pb με τη θερμοκρασία και την ποσότητα της βροχόπτωσης είναι πολύ ασθενής και θετικός, ενώ αντίθετα ο συντελεστής συσχέτισης με την ταχύτητα του ανέμου είναι αρνητικός. Στο σχήμα 3.23 παρουσιάζεται χρονοσειρά του λόγου ⁷Be/²¹⁰Pb και της θερμοκρασίας για μία σειρά μετρήσεων διάρκειας επτά ετών.



Σχήμα 3.23 Χρονοσειρά του λόγου 7Be/²¹⁰Pb και της θερμοκρασίας για μία σειρά ετών (Duenas et al., 2009)

Συσχέτιση της ενεργότητας των ισοτόπων ⁷Be και ²²Na

Ιδιαίτερο ενδιαφέρον παρουσιάζει η χρήση ως ιχνηθέτη ατμοσφαιρικών διεργασιών του λόγου των συγκεντρώσεων δύο ισοτόπων της ίδιας προέλευσης, αλλά με πολύ διαφορετικούς χρόνους υποδιπλασιασμού. Μία τέτοια περίπτωση είναι ο λόγος των συγκεντρώσεων των ισοτόπων κοσμικής προέλευσης ⁷Be (T_{1/2}=53.3 ημέρες) και ²²Na (T_{1/2}=2.60 έτη).

To ²²Na παράγεται και αυτό με διεργασίες κατακερματισμού πυρήνων της ατμόσφαιρας όπως και το ⁷Be και μπορεί να προσδιορισθεί – αν και πολύ δύσκολα – με τεχνικές γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης από τα φωτόνια ενέργειας 1274.5 keV που εκπέμπει. Η μελέτη του λόγου ⁷Be/²²Na παρέχει πληροφορίες σχετικά με την κατακόρυφη κίνηση των αερίων μαζών. Καθώς το μεγαλύτερο μέρος της ατμοσφαιρικής μάζας (περίπου 99%) συγκεντρώνεται σε ένα υψόμετρο ως 30km, η μεγαλύτερη ποσότητα των ⁷Be και του ²²Na συγκεντρώνεται έως αυτό το ύψος. Η ενεργότητα των ισοτόπων ⁷Be και ²²Na στο επίπεδο της θάλασσας επηρεάζεται από την κατακόρυφη κίνηση της τροπόσφαιρας και κυρίως από την υγρή εναπόθεση, ενώ μία τυπική καθ' ύψος κατανομή παρουσιάζεται στο σχήμα 3.24. Δεδομένης της κοσμικής τους προέλευσης των δύο αυτών ισοτόπων η ενεργότητά τους στο επίπεδο της θάλασσας παρουσιάζει μέγιστο κατά τους θερινούς μήνες, ενώ ο ρυθμός εναπόθεσής τους παρουσιάζει μέγιστο τον χειμώνα και ελάχιστο το καλοκαίρι (Tokuyama et al., 1998).

Το πρόβλημα με τον προσδιορισμό του ²²Na έγκειται στο γεγονός ότι η ενεργότητά του στην ατμόσφαιρα είναι της τάξης του 1μBq/m³, περίπου τέσσερις τάξεις χαμηλότερη από αυτήν του ⁷Be (Jasiulionis R. et al., 2005) – συνήθως κάτω από τα όρια ανίχνευσης. Η μελέτη του υπερβαίνει τα όρια της παρούσας Δ.Δ.

Οι βασικοί παράγοντες που καθορίζουν τη μεταβολη της ενεργότητας του ²²Na στην ατμόσφαιρα είναι οι ίδιοι με αυτούς για το ⁷Be, δηλαδή, οι εποχικές μεταβολές, οι μετεωρολογικές συνθήκες, οι κατακρημνίσεις και το πλήθος των ηλιακών κηλίδων



Σχήμα 3.24 Κατανομή της μέσης ενεργότητας των ισοτόπων ⁷Be και ²²Na στο επίπεδο του εδάφους (Jasiulionis et al., 2005)

3.8 γ-φασματοσκοπική ανάλυση δειγμάτων αερολύματος

Στα πλαίσια της Δ.Δ., μετά τη συλλογή των φίλτρων, ακολουθούσε η γ-φασματοσκοπική ανάλυσή τους σε ανιχνευτές γερμανίου, με στόχο τον ποσοτικό προσδιορισμό των ραδιενεργών ισοτόπων στα υπό ανάλυση δείγματα. Για το σκοπό αυτό το δείγμα τοποθετείται πάνω στον ανιχνευτή και μετά από την πάροδο κατάλληλου χρόνου για την επίτευξη καλής στατιστικής στο φάσμα – συνήθως περί τις 24 ώρες – συλλέγεται το γ-φάσμα από την ανάλυση του οποίου προσδιορίζονται τα περιεχόμενα ραδιενεργά ισότοπα.

Μετά το πέρας της συλλογής του φάσματος η συνολική ραδιενέργεια του φίλτρου (Bq/m³) για τα ισότοπα ενδιαφέροντος υπολογίζεται από την καθαρή επιφάνεια φωτοκορυφής (αφαιρώντας δηλαδή το υπόστρωμα της μέτρησης). Αν και υπάρχουν προγράμματα H/Y τα οποία μπορούν να κάνουν αυτοματοποιημένα όλους τους απαραίτητους υπολογισμούς, στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. οι υπολογισμοί έγιναν με χρήση απλών λογιστικών φύλλων. Στη συνέχεια, διαιρώντας την ραδιενέργεια με το συνολικό όγκο αέρα που έχει περάσει μέσα από το φίλτρο υπολογίζεται η ειδική ραδιενέργεια (ή ενεργότητα). Η τελική σχέση που χρησιμοποιείται είναι:

$$Activity = \frac{area}{yield \cdot \varepsilon ff \cdot time \cdot volume}$$
(Σχέση 3.7)

όπου:

area: η καθαρή επιφάνεια της φωτοκορυφής που προκύπτει, έχοντας αφαιρέσει την επιφάνεια του συνεχούς υποστρώματος (πληροφορία που προέρχονται από το φάσμα)⁹

time: η διάρκεια συλλογής του φάσματος (πληροφορία που προέρχονται από το φάσμα)

yield: ποσοστό εκπομπής (το ποσοστό των διασπάσεων που καταλήγουν σε εκπομπή φωτονίων της συγκεκριμένης ενέργειας)

volume: ο όγκος του αερολύματος που πέρασε από το φίλτρο κατά τη διάρκεια της δειγματοληψίας (στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. ο όγκος του αέρα είναι ανηγμένος σε κανονικές συνθήκες, ήτοι 0 °C και 1 atm)

eff : η απόδοση φωτοκορυφής της ανιχνευτικής διάταξης για την ενέργεια ενδιαφέροντος (στα πλαίσια της Δ.Δ. εκτιμήθηκε με χρήση τεχνικών Monte-Carlo που εφαρμόσθηκαν για κάθε χρησιμοποιούμενο ανιχνευτή)¹⁰

Σε περίπτωση ισοτόπων μικρού χρόνου ημιζωής (ιδιαίτερα για την περίπτωση ισοτόπων όπως το ⁷Be), η διάρκεια δειγματοληψίας και φασματοσκοπικής ανάλυσης παίζει πολύ σημαντικό ρόλο για τον υπολογισμό της ειδικής ραδιενέργειας, λόγω της διαρκούς απομείωσης του ισοτόπου στο δείγμα. Για τέτοιες περιπτώσεις πραγματοποιήθηκαν διορθώσεις που βασίζονται στο χρονικό διάστημα t, από το μέσο της δειγματοληψίας ως το μέσο της φασματοσκοπικής ανάλυσης. Η σχέση που χρησιμοποιείται για το σκοπό αυτό είναι η ακόλουθη:

Activity
$$(t_0) = Activity \cdot e^{\frac{\ln(2) \cdot t}{half \, life}}$$
 (Σχέση 3.8)

όπου:

Activity : η ειδική ραδιενέργειας του ισοτόπου όπως προκύπτει από τη σχέση 3.7

⁹ Στην περίπτωση ισοτόπων που ανιχνεύονται και στο φάσμα υποστρώματος της ανιχνευτικής διάταξης θα πρέπει να αφαιρείται κατάλληλα και η συνεισφορά αυτή του υποστρώματος. Κάτι τέτοιο πάντως δεν συμβαίνει για το ⁷Be, το οποίο δεν ανιχνεύεται στο φάσμα υποστρώματος. ¹⁰ Η διαδικασία βαθμονόμησης απόδοσης περιγράφεται στο 5ο κεφάλαιο της Δ.Δ.

t : ο χρόνος που πέρασε από το μέσο της δειγματοληψίας ως το μέσο του γφασματοσκοπικής ανάλυσης

half life: ο χρόνος ημιζωής του εκάστοτε ισοτόπου ενδιαφέροντος (πληροφορία που λαμβάνεται από βιβλιογραφικές αναφορές

Λαμβάνοντας υπόψη το χρόνο υποδιπλασιασμού του ⁷Be, τη διάρκεια δειγματοληψίας και γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης εκτιμάται ότι η διόρθωση αυτή είναι επαρκής. Για ισότοπα με χρόνο ημιζωής τόσο μεγάλο ώστε να μην παίζει σημαντικό ρόλο η απομείωση λόγω ραδιενεργού διάσπασης μεταξύ δειγματοληψίας και ανάλυσης (όπως στις περιπτώσεις των ισοτόπων ⁴⁰K, ¹³⁷Cs κλπ) η ειδική ραδιενέργεια που υπολογίζεται από τη σχέση 3.7 δεν διορθώνεται.

Στα κεφάλαια 4 και 5 που ακολουθούν δίνονται περισσότερες λεπτομέρειες για την τεχνική της γ-φασματοσκοπίας και κυρίως τη βαθμονόμηση των σχετικών ανιχνευτικών διατάξεων, ενώ τα αποτελέσματα από τις αναλύσεις των δειγμάτων αερολύματος που έγιναν στα πλαίσια της Δ.Δ. παρουσιάζονται στο 6° Κεφάλαιο της Δ.Δ.

Προσδιορισμός ραδιενεργών ισοτόπων στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα

4.1 Εισαγωγή

Στο περιβάλλον υπάρχει πλήθος ραδιενεργών ισοτόπων, τόσο φυσικής όσο και τεχνητής προέλευσης. Ανάλογα με την φύση τους, τα ισότοπα αυτά ενδέχεται να εκπέμπουν ακτινοβολία σωματιδιακή (α ή β) ή/και ηλεκτρομαγνητική (-γ ή -Χ). Η γ-φασματοσκοπική ανάλυση είναι μία από τις ευρέως χρησιμοποιούμενες μη καταστρεπτικές μεθόδους για την ανίχνευση και τον ποσοτικό προσδιορισμό των ραδιενεργών ισοτόπων που εκπέμπουν γακτινοβολία.

Στο κεφάλαιο αυτό, θα παρουσιαστούν οι βασικές έννοιες και ορισμοί της γφασματοσκοπίας – με έμφαση τη βαθμονόμηση των σχετικών ανιχνευτικών διατάξεων - και θα γίνει μία μικρή εισαγωγή βασικών όρων στατιστικής οι οποίοι χρησιμοποιούνται στα πλαίσια της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης.

Θα ακολουθήσει μία συνοπτική παρουσίαση των ανιχνευτών γερμανίου του Εργαστηρίου Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος του ΕΚΕΦΕ «ΔΗΜΟΚΡΙΤΟΣ» (Ε.Ρ.Π.-«Δ») και του Εργαστηρίου Πυρηνικής Τεχνολογίας του Εθνικού Μετσοβίου Πολυτεχνείου (Ε.Π.Τ.-Ε.Μ.Π.) οι οποίοι χρησιμοποιήθηκαν για τις αναλύσεις δειγμάτων αερολύματος στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ.

Τέλος, θα παρουσιαστεί η μεθοδολογία βαθμονόμησης απόδοσης ανιχνευτικών διατάξεων μέσω προσομοίωσης Monte-Carlo, καθώς και ο κώδικας προσομοίωσης Monte Carlo PENELOPE, ο οποίος χρησιμοποιήθηκε για τη βαθμονόμηση των ανιχνευτικών διατάξεων και για τις γεωμετρίες των δειγμάτων που αναλύθηκαν στα πλαίσια της ΔΔ. Η διαδικασία βαθμονόμησης για κάθε μία από τις διατάξεις θα περιγραφεί με λεπτομέρεια στο επόμενο Κεφάλαιο.

4.2 Η μέθοδος της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης

4.2.1 Φασματοσκοπία ακτινών-γ

Η μέθοδος της γ-φασματοσκοπίας είναι μία αναλυτική μέθοδος η οποία επιτρέπει την ταυτοποίηση και την ποσοτικοποίηση ισοτόπων (τεχνητών και φυσικών) τα οποία εκπέμπουν γ-ακτινοβολία. Είναι μία πολύ διαδεδομένη μέθοδος, καθώς είναι μη καταστρεπτική και μπορεί να εφαρμοσθεί σε πλήθος δειγμάτων χωρίς ιδιαίτερους

περιορισμούς ως προς το υλικό και τη σύσταση του. Αρκεί μία και μόνο μέτρηση προκειμένου να ανιχνευθούν οι γ-ραδιενεργοί πυρήνες που περιέχει το δείγμα, ενώ συνήθως δεν απαιτείται ιδιαίτερη προετοιμασία του δείγματος.

Η γ-φασματοσκοπία βασίζεται στην ανίχνευση των φωτονίων τα οποία εκπέμπονται από τους ραδιενεργούς πυρήνες των προς ανίχνευση ισοτόπων κατά την διάσπασή τους. Τα παραγόμενα φωτόνια αλληλεπιδρούν με το υλικό του ανιχνευτή παράγοντας κατάλληλο σήμα – ηλεκτρικό παλμό – ο οποίος μέσω κατάλληλων ηλεκτρονικών διατάξεων συνδεδεμένων με τον ανιχνευτή, ενισχύεται και καταγράφεται κατάλληλα. Αποτέλεσμα της όλης διαδικασίας είναι το ενεργειακό φάσμα της ακτινοβολίας που ανιχνεύεται, το οποίο περιέχει πληροφορίες, τόσο για το είδος, όσο και για την ποσότητα των ραδιενεργών πυρήνων που υπάρχουν στο υπόψη δείγμα.

Όπως φαίνεται και στην εικόνα 4.1 που παρουσιάζεται ένα γ-φάσμα που προέκυψε από την ανάλυση πηγής ²²⁶Ra, εμφανίζονται διάφορες αιχμές (κορυφές) οι οποίες αντιστοιχούν στην πλήρη απόθεση της ενέργειας των φωτονίων της αντίστοιχης ενέργειας, κατά την αλληλεπίδρασή τους με τον ανιχνευτή. Αυτές οι κορυφές ονομάζονται «φωτοκορυφές πλήρους απόθεσης ενέργειας» και επιτρέπουν την ποιοτική ανάλυση της πηγής, δηλαδή την ταυτοποίηση των ισοτόπων που περιέχει και τα οποία ανιχνεύονται στο φάσμα, μέσω της θέσης των φωτοκορυφών. Επιπλέον, μέσω της επιφάνειας των φωτοκορυφών μπορεί να υπολογισθεί η ραδιενέργεια του αντίστοιχου ισοτόπου της πηγής.



Εικόνα 4.1: Ενεργειακό φάσμα γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης πηγής ²²⁶Ra. Στο φάσμα διακρίνονται η κορυφή του ²²⁶Ra και των θυγατρικών του.

Η γ-φασματοσκοπία είναι η πλέον διαδεδομένη μέθοδος προσδιορισμού ραδιενεργών ισοτόπων, καθώς τα περισσότερα ραδιενεργά ισότοπα που απασχολούν την έρευνα εκπέμπουν – εκτός των άλλων – και γ-ακτινοβολία. Βρίσκει εφαρμογές σε τομείς που έχουν να κάνουν με παρακολούθηση (monitoring) των επιπέδων της ραδιενέργειας σε πυρηνικές εγκαταστάσεις, στον τομέα υγείας (όπως η παραγωγή ραδιοφαρμάκων), τον έλεγχο νέων υλικών, σε περιβαλλοντικές μελέτες κλπ. Γενικά, οι τεχνικές γ-φασματοσκοπίας εφοαρμόζονται σε πολλά εργαστήρια και εγκαταστάσεις ανά τον κόσμο.

4.2.2 Ανιχνευτική διάταξη γ-φασματοσκοπίας

Η βασικότερη συνιστώσα μία διάταξης γ-φασματοσκοπίας είναι ο ανιχνευτής της ακτινοβολίας. Ο ανιχνευτής παράγει ηλεκτρικό σήμα ως αποτέλεσμα της αλληλεπίδρασης ενός φωτονίου που εκπέμπεται από την πηγή με αυτόν. Υπάρχουν αρκετοί μηχανισμοί με

τους οποίους μπορεί ένα φωτόνιο της πηγής να αλληλεπιδράσει με τον ανιχνευτή, με πιο σημαντικούς: το φωτοηλεκτρικό φαινόμενο, όπου η ενέργεια Ε του φωτονίου αποτίθεται πλήρως στον ανιχνευτή, η σκέδαση Compton όπου το φωτόνιο μεταφέρει μόνο μέρος της ενέργειας Ε στον ανιχνευτή και η δίδυμη γένεση, όπου το φωτόνιο που εκπέμπεται από την πηγή αλληλεπιδρά με το υλικό του ανιχνευτή και παράγονται ένα ηλεκτρόνιο και ένα ποζιτρόνιο. Ειδικά η τελευταία αλληλεπίδραση έχει ως αποτέλεσμα να εμφανίζονται – ενδεχομένως – στο φάσμα, επιπλέον της κορυφής που αντιστοιχεί στα φωτόνια ενέργειας Ε που εκπέμπονται από την πηγή, και αιχμές που αντιστοιχούν στις ενέργειες E-511¹ keV, E-2·511², λόγω της διαφυγής φωτονίων εξαΰλωσης από τον ανιχνευτή. Από τα παραπάνω γίνεται σαφές ότι στη γ-φασματοσκοπία η πλέον επιθυμητή αλληλεπίδραση είναι το φωτοηλεκτρικό φαινόμενο.

Σε μία διάταξη γ-φασματοσκοπίας, πέραν του ανιχνευτή, απαιτείται και εξοπλισμός ο οποίος δρα επικουρικά με τον ανιχνευτή και αναλαμβάνει την επεξεργασία και εκμετάλλευση του σήματος που παράγεται σε αυτόν. Συγκεκριμένα, απαιτείται: τροφοδοτικό υψηλής τάσης, προενισχυτής ο οποίος συνήθως είναι ενσωματωμένος στον ανιχνευτή, ενισχυτής, αναλογικό-ψηφιακός μετατροπέας (Analog to Digital Converter, ADC) και πολυκαναλικός αναλυτής (Multi-Channel Analyzer, MCA), όπως φαίνεται στην εικόνα 4.2.



Εικόνα 4.2: Σχηματικό διάγραμμα των βασικών συνιστωσών ενός συστήματος γ-φασματοσκοπίας.

Στην γ-φασματοσκοπία χρησιμοποιούνται κυρίως ανιχνευτές υπερκαθαρού γερμανίου (High Purity Germanium, HPGe). Ένας ανιχνευτής HPGe είναι στην ουσία μία δίοδος ημιαγωγών με δομή επαφών P-I-N, όπου δημιουργείται περιοχή αντιστάθμισης, η οποία διευρύνεται με την ανάστροφη πόλωση του ανιχνευτή μέσω του τροφοδοτικού Υψηλής Τάσης (YT). Η περιοχή αυτή είναι ευαίσθητη στην ιοντίζουσα ακτινοβολία, όπως ακτίνες-Χ και ακτίνες-γ. Κατά την αλληλεπίδραση της ακτινοβολίας με την ευαίσθητη περιοχή του ανιχνευτή παράγονται ελεύθερα ηλεκτρόνια και οπές, δηλαδή κενές θέσεις ηλεκτρονίων οι οποίες λειτουργούν ως θετικά φορτία. Το πλήθος των φορέων ηλεκτρικού φορτίου που παράγονται είναι ανάλογο τη ενέργειας που αποτίθεται στον ανιχνευτή. Οι παραπάνω φορείς φορτίου κινούνται υπό την επίδραση του ηλεκτρικού πεδίου το οποίο αναπτύσσεται μέσα στον ανιχνευτή εξαιτίας της ΥΤ και συλλέγονται στον προενισχυτή, παράγοντας σήμα τάσης – παλμό – το οποίο είναι ανάλογο με την αποτιθέμενη ενέργεια στον ανιχνευτή. Εν

¹ Αιχμή απλής διαφυγής, εξαιτίας αλληλεπίδρασης δίδυμης γένεσης εντός του ανιχνευτή και διαφυγής ενός φωτονίων ενέργειας 511 keV.

² Αιχμή διπλής διαφυγής, εξαιτίας αλληλεπίδρασης δίδυμης γένεσης εντός του ανιχνευτή και διαφυγής και των δύο φωτονίων ενέργειας 511 keV.

συνεχεία, το σήμα ενισχύεται και διαμορφώνεται στον ενισχυτή, ψηφιοποιείται στον ADC και καταγράφεται στον αναλυτή πολλών καναλιών (MCA).

Ως αποτέλεσμα της παραπάνω διαδικασίας δημιουργίας και επεξεργασίας του σήματος, κάθε φωτόνιο που αποδίδει όλη ή τμήμα της ενέργειας του στον ανιχνευτή αντιστοιχεί σε μία ψηφιακή πληροφορία και καταγράφεται – ως γεγονός – στον MCA σε ένα συγκεκριμένα κανάλι. Το περιεχόμενο του MCA (κανάλια, γεγονότα) οδηγείται εν συνεχεία σε Η/Υ, ο οποίος αποθηκεύει, και εμφανίζει με κατάλληλο τρόπο τα δεδομένα.

4.3 Ανιχνευτικές διατάξεις που χρησιμοποιήθηκαν στη Διατριβή

4.3.1 Ανιχνευτικές διατάξεις Εργαστηρίου Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος»

Στο Ε.Ρ.Π.–«Δ» είναι εγκατεστημένες 4 ανιχνευτικές διατάξεις με ανιχνευτές HPGe που χρησιμοποιούνται για αναλύσεις περιβαλλοντικών δειγμάτων. Όλοι οι ανιχνευτές είναι ρυθμισμένοι και βαθμονομημένοι ώστε να συλλέγουν φάσμα στην ενεργειακή περιοχή 50-2000 keV. Ένας ανιχνευτής από αυτούς, ήταν κατά την εκπόνηση της Δ.Δ. εκτός λειτουργίας λόγω βλάβης και δεν χρησιμοποιήθηκε για αναλύσεις. Παρόλα αυτά, επειδή στα πλαίσια της Δ.Δ. θα αναλύθηκαν και αξιοποιήθηκαν και φάσματα που έχουν συλλεχθεί στο παρελθόν με αυτόν τον ανιχνευτή, θα δοθούν ορισμένες πληροφορίες και για αυτόν.

4.3.1.1 Διάταξη ανιχνευτή HPGe σχετικής απόδοσης 91.5% του Ε.Ρ.Π «Δ».

Η εν λόγω διάταξη συνίσταται από:

- Ομοαξονικό ανιχνευτή υπερκάθαρου γερμανίου (HPGe), σχετικής απόδοσης 91.5% (μοντέλο GC9021) της Canberra Industries (CI), με εξωτερική διάμετρο 80 mm και μήκος 72 mm. Σύμφωνα με το πιστοποιητικό του ανιχνευτή, η διακριτική ικανότητα του είναι: FWHM: 0.938 keV για ενέργεια 122.06 keV, FWHM: 1.99 keV & FWTM:3.78 keV για ενέργεια 1332.5 keV. Ο λόγος peak-to-Compton για φωτόνια ενέργειας 1332.50 keV είναι 75.0:1.
- Κατακόρυφο κρυοστάτης από αλουμίνιο της CI, μοντέλο 7500SL. Εντός του κρυοστάτη βρίσκεται και ο προενισχυτής, μοντέλο 2002CSL της CI. Ο κρυοστάτης είναι βυθισμένος σε δοχείο υγρού αζώτου Dewar χωρητικότητας 30 L.
- Μονάδα DSA 1000 (Digital Signal Analyzer) της Canberra Industries (CI) στην οποία είναι ενσωματωμένες όλες οι ηλεκτρονικές μονάδες που απαιτούνται για την επεξεργασία του σήματος που παράγει ο ανιχνευτής (τροφοδοτικό HV, ενισχυτής, ADC και MCA). Η μονάδα είναι ρυθμισμένη στα 8K κανάλια που οδηγεί σε αντιστοιχία 0.25 keV ανά κανάλι.
- Η μονάδα ελέγχεται μέσα από το πρόγραμμα GENIE 2000 της Canberra.

Η διάταξη φαίνεται στην εικόνα 4.3.

4.3.1.2 Διάταξη ανιχνευτή HPGe σχετικής απόδοσης 29.5 % του Ε.Ρ.Π-«Δ».

Η εν λόγω διάταξη συνίσταται από:

Ομοαξονικό ανιχνευτή υπερκάθαρου γερμανίου (HPGe), σχετικής απόδοσης 29.5% της εταιρίας Eurisys Measures (μοντέλο το PC 30-185-R), με εξωτερική διάμετρο 57.0 mm και μήκος 56.2 mm. Σύμφωνα με το πιστοποιητικό του ανιχνευτή, η διακριτική ικανότητα του είναι: 0.94 keV για ενέργεια 122 keV (FWTM/FWHM=1.83)

και 1.93 keV για ενέργεια 1332 keV (FWTM/FWHM=2.4). Ο λόγος peak-to-Compton για ενέργεια 1332.50 keV είναι 63:1.



Εικόνα 4.3: Ο ανιχνευτής HPGe σχετικής απόδοσης 91.5% του Ε.Ρ.Π. – «Δ»

- Κατακόρυφο κρυοστάτη από αλουμίνιο της Eurisys Measures, μοντέλο SHF 00 30A. Εντός του κρυοστάτη βρίσκεται και ο προενισχυτής, μοντέλο PSC 821 της Eurisys Measures. Ο κρυοστάτης είναι βυθισμένος σε δοχείο υγρού αζώτου Dewar χωρητικότητας 30 L.
- Μονάδα DSA της Eurisys Measures η οποία είναι ενσωματωμένη στον Η/Υ του συστήματος και περιέχει όλες τις ηλεκτρονικές μονάδες που απαιτούνται για την επεξεργασία του σήματος που παράγει ο ανιχνευτής. Η μονάδα είναι ρυθμισμένη στα 8Κ κανάλια που οδηγεί σε αντιστοιχία 0.25 keV ανά κανάλι.
- Η μονάδα ελέγχεται μέσα από το πρόγραμμα InterWinner 7321 της Canberra.
- Θωράκιση του ανιχνευτή κατασκευασμένη από τη εταιρεία Eurisys Measures.

Η διάταξη φαίνεται στην εικόνα 4.4.



Εικόνα 4.4: Ο ανιχνευτής HPGe σχετικής απόδοσης 29.5% του Ε.Ρ.Π. – «Δ»

4.3.1.3 Διάταξη ανιχνευτή υπερκάθαρου γερμανίου τύπου φρέατος (Welltype HPGe) σχετικής απόδοσης 20 % του Ε.Ρ.Π-«Δ».

Η διάταξη εγκαταστάθηκε τον Σεπτέμβρη του 2017 στο Ε.Ρ.Π.-«Δ» και συνίσταται από:

 Ομοαξονικό ανιχνευτή υπερκάθαρου γερμανίου τύπου φρέατος (Well-Type HPGe), σχετικής απόδοσης 20% της CI (μοντέλο GCW2022), με εξωτερική διάμετρο 54.4 mm και μήκος 57 mm. Η διάμετρος του «φρέατος» είναι 22.5 mm και το βάθος του 35.5 mm. Σύμφωνα με το πιστοποιητικό του ανιχνευτή, η διακριτική του ικανότητα σε όρους FWHM είναι: 1.4 keV για ενέργεια 122.06 keV και 2.2 keV για ενέργεια 1332.5 keV.

- Οριζόντιο κρυοστάτη από αλουμίνιο της CI, μοντέλο 7905-30U/S. Εντός του κρυοστάτη βρίσκεται και ο προενισχυτής, μοντέλο 2002C της CI. Ο κρυοστάτης είναι βυθισμένος σε δοχείο υγρού αζώτου Dewar χωρητικότητας 30 L.
- Μονάδα DSALX (Digital Signal Analyzer) της CI στην οποία είναι ενσωματωμένες οι ηλεκτρονικές μονάδες που απαιτούνται για την επεξεργασία του σήματος του ανιχνευτή. Λειτουργεί στα 8k για την ανάλυση φάσματος με 0.25 keV ανά κανάλι.
- Η μονάδα ελέγχεται μέσα από το πρόγραμμα GENIE 2000 της Canberra.
- Θωράκιση κατασκευασμένη από τη εταιρεία Electronic Counter Corporation.

Ο ανιχνευτής φαίνεται στην εικόνα 4.5.



Εικόνα 4.5: Ο ανιχνευτής τύπου φρέατος σχετικής απόδοσης 20% του Ε.Ρ.Π. – «Δ»

4.3.2 Ανιχνευτικές διατάξεις του Εργαστηρίου Πυρηνικής Τεχνολογίας του Εθνικού Μετσοβίου Πολυτεχνείου

Στο Εργαστήριο Πυρηνικής Τεχνολογίας του Εθνικού Μετσοβίου Πολυτεχνείου (Ε.Π.Τ. – Ε.Μ.Π.) είναι εγκατεστημένες και χρησιμοποιούνται πέντε ανιχνευτικές διατάξεις με ημιαγωγούς ανιχνευτές υπερκάθαρου γερμανίου με σκοπό τις αναλύσεις με τεχνικές γφασματοσκοπίας. Τέσσερεις από αυτές τις διατάξεις χρησιμοποιούνται για μετρήσεις εντός του εργαστηρίου, ενώ υπάρχει και μία ακόμα που δίνει την δυνατότητα μετρήσεων στο πεδίο (in situ). Στη συνέχεια θα δοθούν στοιχεία για δύο εκ των διατάξεων αυτών, οι οποίες χρησιμοποιήθηκαν στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ.

4.3.2.1 Διάταξη ανιχνευτή HPGe σχετικής απόδοσης 40% του Ε.Π.Τ.-Ε.Μ.Π.

Η εν λόγω διάταξη εγκαταστάθηκε στο ΕΠΤ-ΕΜΠ το 2012 και συνίσταται από:

- Ομοαξονικό ανιχνευτής υπερκάθαρου γερμανίου (HPGe), σχετικής απόδοσης 40.9% της CI (μοντέλο GC4018), με εξωτερική διάμετρο 59.5 mm και μήκος 61 mm. Σύμφωνα με το πιστοποιητικό του ανιχνευτή, η διακριτική ικανότητα του είναι: FWHM: 0.875 keV για ενέργεια 122.06 keV και FWHM: 1.8 keV για ενέργεια 1332.5 keV. Ο λόγος peak-to-Compton για ενέργεια 1332.50 keV είναι 63:1.
- Κατακόρυφο κρυοστάτη από αλουμίνιο της CI. Εντός του κρυοστάτη βρίσκεται και ο προενισχυτής, μοντέλο 2002CSL της CI. Ο κρυοστάτης είναι βυθισμένος σε δοχείο υγρού αζώτου Dewar χωρητικότητας 30 L.
- Μονάδα Lynx DSA (Digital Signal Analyzer) της Canberra Industries (CI) στην οποία είναι ενσωματωμένες όλες οι ηλεκτρονικές μονάδες που απαιτούνται για την

επεξεργασία του σήματος που παράγει ο ανιχνευτής. Η μονάδα ελέγχεται μέσα από το πρόγραμμα GENIE 2000 της Canberra.

Θωράκιση του ανιχνευτή κατασκευασμένη από τη εταιρεία ITECO.

Ο εν λόγω ανιχνευτής φαίνεται στην εικόνα 4.6.



Εικόνα 4.6: Ο ανιχνευτής HPGe σχετικής απόδοσης 40.9% του Ε.Π.Τ. - Ε.Μ.Π.

4.3.2.2 Διάταξη ανιχνευτή HPGe σχετικής απόδοσης 33.8% του Ε.Π.Τ.-Ε.Μ.Π.

Η διάταξη εγκαταστάθηκε στο ΕΠΤ-ΕΜΠ το 1983 και συνίσταται από:

- Ομοαξονικό ανιχνευτή υπερκάθαρου γερμανίου (HPGe) της Cl, διαμέτρου 55.3 mm, και ύψους 65 mm, σχετικής απόδοσης 33.8%. Η διακριτική ικανότητα σε όρους FWHM είναι: 0.85 keV για ενέργεια 122.06 keV, και 1.78 keV για ενέργεια 1332.5 keV. Ο λόγος peak-to-Compton για ενέργεια 1332.5 keV είναι 66.5:1
- Κρυοστάτη ΑΙ
- Τροφοδοτικό υψηλής τάσης τύπου 3106D της εταιρίας Cl
- Προενισχυτή τύπου 2001 της CI
- Ενισχυτή ύψους παλμών, τύπου 2020 της Cl
- Αναλογικοψηφιακό μετατροπέα τύπου 8701 της CI
- Πολυκαναλικό αναλυτή ΑΙΜ-550 της CI
- Ελεγκτή στάθμης υγρού αζώτου τύπου 1786 της Cl

Ο ανιχνευτής φαίνεται στην εικόνα 4.7



Εικόνα 4.7: Ο ανιχνευτής HPGe σχετικής απόδοσης 33.8% του Ε.Π.Τ. - Ε.Μ.Π και η θωράκιση του.

4.4 Βαθμονόμηση ανιχνευτών γερμανίου

Η βαθμονόμηση μίας γ-φασματοσκοπικής διάταξης κατά βάση αποτελείται από:

- Ενεργειακή βαθμονόμηση
- Βαθμονόμηση διακριτικής ικανότητας
- βαθμονόμηση απόδοσης φωτοκορυφής

Στις επόμενες παραγράφους ακολουθεί ανάλυση των ανωτέρω.

4.4.1 Ενεργειακή Βαθμονόμηση

Όταν πραγματοποιούνται αναλύσεις με τεχνικές γ-φασματοσκοπίας πρέπει να είναι γνωστή η σχέση που συνδέει την ενέργεια που αποδίδει ένα φωτόνιο στον ανιχνευτή και τη θέση που το αντίστοιχο γεγονός καταγράφεται στο ενεργειακό φάσμα. Γενικά η σχέση είναι ικανοποιητικά γραμμική³, οπότε ισχύει η παρακάτω σχέση:

$$E = m \cdot K + c$$
 (Σχέση 4.1)

όπου:

E : η αποτιθέμενη ενέργεια στον ανιχνευτή (keV)

- Κ : το κανάλι όπου αποθηκεύεται το αντίστοιχο γεγονός (αύξων αριθμός καναλιού)
- M, c : οι παράμετροι της γραμμικής σχέσης

Για την ενεργειακή βαθμονόμηση του ανιχνευτή απαιτείται η χρήση κατάλληλων πηγών βαθμονόμησης, οι οποίες εκπέμπουν φωτόνια που καλύπτουν επαρκώς όλο το ενεργειακό εύρος λειτουργίας του ανιχνευτή. Θα μπορούσε κάλλιστα να χρησιμοποιηθεί και πηγή ενός ισοτόπου, το οποίο όμως εκπέμπει χαρακτηριστικές γ-ακτινοβολίες σε διαφορετικές ενέργειες (όπως για παράδειγμα το ¹⁵²Eu). Στο σχήμα 4.8 που ακολουθεί παρατίθεται μία τυπική καμπύλη ενεργειακής βαθμονόμησης ανιχνευτή που καλύπτει την ενεργειακή περιοχή 0-2000keV με το ελάχιστο πλήθος (τρία) πειραματικών σημείων.



Σχήμα 4.8: Τυπικό γράφημα ενεργειακής βαθμονόμησης ανιχνευτή HPGe.

Καμπύλες σαν αυτή του σχήματος 4.8 χρησιμοποιούνται για την εύρεση της ενέργειας των φωτονίων που σχηματίζουν αιχμή σε συγκεκριμένες θέσης του φάσματος μίας αγνώστου πηγής.

³ Σε ορισμένες περιπτώσεις μπορεί να χρησιμοποιείται και δευτεροβάθμιος όρος, με τον αντίστοιχο συντελεστή όμως να έχει πολύ χαμηλή τιμή.

Η ενεργειακή βαθμονόμηση είναι μία διαδικασία που θα πρέπει να επαναλαμβάνεται σε τακτά χρονικά διαστήματα, καθώς λόγω των ηλεκτρονικών συστημάτων της διάταξης αλλά και της μεταβολής των συνθηκών του περιβάλλοντος – κυρίως της θερμοκρασίας – δεν είναι πάντα βέβαιο ότι η σχέση 4.1 διατηρείται σταθερή.

4.4.2 Βαθμονόμηση ενεργειακής διακριτικής ικανότητας της ανιχνευτικής διάταξης

Ένα μέγεθος το οποίο εκφράζει την ικανότητα μίας ανιχνευτικής διάταξης να διακρίνει φωτόνια με παραπλήσιες ενέργειες είναι η ενεργειακή διακριτική ικανότητα. Όταν καταγράφονται από την ανιχνευτική διάταξη φωτόνια μίας ενέργειας, τα παραγόμενα σήματα από τα φωτόνια που αποθέτουν ολόκληρη την ενέργειά τους στον ανιχνευτή δεν έχουν το ίδιο ακριβώς ύψος, αλλά τα ύψη τους ακολουθούν μία κατανομή (φωτοκορυφή) η οποία μπορεί να θεωρηθεί κανονική. Το εύρος της φωτοκορυφής στο μισό του ύψους της (Full Width at Half the Maximum height - FWHM) καθορίζει την ενεργειακή διακριτική ικανότητα της διάταξης και μπορεί να εκφραστεί ως σχετικό μέγεθος (%) ή ως απόλυτο μέγεθος σε keV.



Σχήμα 4.10: Γράφημα που δείχνει τη διαφορά μεταξύ υψηλής και χαμηλής διακριτικής ικανότητας ενός ανιχνευτή

Συνεπώς, μία φωτοκορυφή έχει τη μορφή καμπύλης κανονικής κατανομής, με ενδεχομένως με μία ελαφριά «ουρά» στη χαμηλή ενεργειακά περιοχή. Αυτή η ασυμμετρία συνήθως αναφέρεται ως παράμετρος «ουράς» (tailing parameter). Τόσο το FWHM όσο και το μέγεθος tailing parameter εξαρτώνται από την ενέργεια του φωτονίου, τις ιδιότητες και τα χαρακτηριστικά του ανιχνευτή και τις ρυθμίσεις των ηλεκτρονικών του. Η διακριτική ικανότητα μίας ανιχνευτικής διάταξης συνήθως εξαρτάται γραμμικά από τη θέση της φωτοκορυφής μέσα στο φάσμα (κανάλι, K) και προσδιορίζεται πειραματικά με χρήση προτύπων πηγών, από σχέση της μορφής:

Επισημαίνεται ότι η διακριτική ικανότητα μία διάταξης δεν είναι σταθερή, αλλά πρέπει να ελέγχεται κατά τακτά χρονικά διαστήματα και ιδιαίτερα ότι γίνονται αλλαγές στη συγκρότηση ή τις ρυθμίσεις της διάταξης.

4.4.3 Βαθμονόμηση απόδοσης της ανιχνευτικής διάταξης

Γενικά, η ευαισθησία μίας ανιχνευτικής διάταξης ανίχνευσης φωτονίων περιγράφεται με το μέγεθος «απόδοση του ανιχνευτή». Η απόδοση (*ε*) ενός ανιχνευτή εκφράζει ουσιαστικά το

πλήθος των γεγονότων που καταγράφονται από την ανιχνευτική διάταξη, για ένα ορισμένο πλήθος φωτονίων οι οποίες εκπέμπονται από μία πηγή, είναι δηλαδή το ποσοστό των φωτονίων που εκπέμπονται από την πηγή ή από το δείγμα (Α), που παράγουν σήμα (παλμό) στον ανιχνευτή (Ν) και κατά συνέπεια καταγράφονται. Συνεπώς, για την απόδοση ενός ανιχνευτή ισχύει η σχέση (4.3).

$$N = \varepsilon \cdot A$$
 (Σχέση 4.3)

Υπάρχουν πολλοί και διαφορετικοί ορισμοί της απόδοσης, οι οποίοι χρησιμοποιούνται κατά τη μελέτη της απόκρισης μίας γ-φασματοσκοπικής ανιχνευτικής διάταξης. Το ποιόν ορισμό θα χρησιμοποιήσει κάθε φορά ο χρήστης, εξαρτάται από μία σειρά παραμέτρων. Στο σημείο αυτό θα πρέπει να λεχθεί ότι η απόδοση η οποία χρησιμοποιεί συνήθως ο χρήστης δεν είναι ένα χαρακτηριστικό που δίνεται ως πιστοποιημένο μέγεθος από τον κατασκευαστή, αλλά προσδιορίζεται είτε πειραματικά είτε με προσομοιώσεις από το χρήστη, λαμβάνοντας υπόψη κάθε φορά την συγκρότηση της ανιχνευτικής διάταξης, τη γεωμετρία του δείγματος-πηγής και την απόστασή του από τον ανιχνευτή, ενώ επιπλέον αυτή εξαρτάται και από την ενέργεια των φωτονίων. Σε κάθε περίπτωση, όλοι οι ορισμοί της απόδοσης ενός ανιχνευτή δίνονται για μία συγκεκριμένη γεωμετρία δείγματος-πηγής, το οποίο είναι τοποθετημένο σε συγκεκριμένη θέση σε σχέση με τον ανιχνευτή. Δίνονται δηλαδή για μία συγκεκριμένη «γεωμετρία πηγής-ανιχνευτή». Οι πιο συνηθισμένοι ορισμοί της απόδοσης είναι:

- <u>Απόδοση Φωτοκορυφής (Full energy peak efficiency):</u> είναι ο λόγος του πλήθους των παλμών που παράγεται από τον ανιχνευτή από τα φωτόνια τα οποία έχουν αποθέσει το σύνολο της ενέργειάς τους στον κρύσταλλο, προς το συνολικό πλήθος των ακτινών-γ που εκπέμπονται από την πηγή. Πρακτικά, αυτό το μέγεθος εκφράζει την ικανότητα ενός ανιχνευτή να ανιχνεύει πλήρως την ενέργεια ενός φωτονίου, και αυτό έχει ως αποτέλεσμα την καταγραφή τους στο ενεργειακό φάσμα, έτσι ώστε να σχηματίζουν τις λεγόμενες «φωτοκορυφές» ή αλλιώς «αιχμές» πλήρους απορρόφησης. Το μέγεθος αυτό επιτρέπει τον ποιοτικό και ποσοτικό προσδιορισμό ενός ραδιενεργού ισοτόπου που ανιχνεύεται κατά την ανάλυση ενός δείγματος, από την ανάλυση του ενεργειακού φάσματος των ακτινών-γ που αυτό εκπέμπει. Η απόδοση αυτή ενδεχομένως θα πρέπει να διορθωθεί προκειμένου να ληφθούν υπόψη το φαινόμενο της αυτοαπορρόφησης και το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης (true coincidence). Σε επόμενες παραγράφους και κεφάλαια της Δ.Δ. θα γίνει εκτενής μελέτη του θέματος της διόρθωσης και θα παρουσιαστεί και η σχετική μεθοδολογία.
- Εσωτερική απόδοση (intrinsic efficiency): είναι ο λόγος του πλήθους των παλμών που παράγονται από τον ανιχνευτή προς το πλήθος των ακτινών-γ της πηγής οι οποίες προσπίπτουν σε αυτόν. Συχνά χρησιμοποιείται στην σύγκριση διαφορετικών ανιχνευτών και δεν έχει ιδιαίτερη χρησιμότητα κατά τον προσδιορισμό της ραδιενέργειας του δείγματος που αναλύεται.
- Ολική Απόδοση (total efficiecny): είναι ο λόγος των γεγονότων που καταγράφονται από την ανιχνευτική διάταξη από φωτόνια που αποθέτουν σε αυτήν έστω και ένα κλάσμα της αρχικής τους ενέργειας, προς το συνολικό πλήθος φωτονίων της ίδιας ενέργειας που εκπέμπονται από την πηγή. Το μέγεθος αυτό εκφράζει την ικανότητα μίας διάταξης να ανιχνεύσει έστω και ένα κλάσμα της αρχικής ενέργειας ενός φωτονίου που προσπίπτει σε αυτήν. Όπως είναι γνωστό, ένα φωτόνιο λόγω σκέδασης Compton στον ανιχνευτή ή στα περιβάλλοντα με αυτόν υλικά κυρίως τη θωράκιση είναι δυνατό να αποθέσει τελικά στον ανιχνευτή κλάσμα μόνο της αρχικής του ενέργειας. Σε αυτές τις περιπτώσεις όπου η ενέργειας εκπομπής του φωτονίου

φωτονίων, αυτό θα καταγραφεί μεν στο ενεργειακό φάσμα του ανιχνευτή, αλλά ως φωτόνιο με ενέργεια ίση με την ενέργεια την οποία απόθεσε στον ανιχνευτή. Από τον ορισμό, γίνεται σαφές ότι για δεδομένη ενέργεια φωτονίου, γεωμετρία πηγήςανιχνευτή και ανιχνευτική διάταξη, η απόδοση φωτοκορυφής είναι πάντα μικρότερη της ολικής απόδοσης. Το μέγεθος αυτό δεν χρησιμοποιείται συχνά κατά τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση, παρά μόνο στις περιπτώσεις που απαιτείται διόρθωση για το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης. Η ολική απόδοση δεν είναι ένα μέγεθος που είναι πάντα εύκολο να προσδιορισθεί πειραματικά. Ειδικά στην περίπτωση που η πηγή που χρησιμοποιείται εκπέμπει και άλλες ακτίνες–γ ή ακτίνες–Χ είναι πρακτικά ανέφικτο. Στην περίπτωση μονοενεργειακής πηγής, ο προσδιορισμός της ολικής απόδοσης είναι ευκολότερος, αρκεί να ληφθεί υπόψη και το υπόστρωμα της ανιχνευτικής διάταξης.

• Σχετική απόδοση (relative efficiency): Είναι ένα σημαντικό μέγεθος καθώς είναι και η μοναδική πληροφορία η οποία δίνεται από τον κατασκευαστή του ανιχνευτή και η οποία μπορεί να χρησιμοποιηθεί για τη σύγκριση ανιχνευτικών διατάξεων. Πρόκειται για το λόγο των αποδόσεων φωτοκορυφής του συγκεκριμένου ανιχνευτή και ενός ανιχνευτή αναφοράς για ορισμένη γεωμετρία πηγής ανιχνευτή και ενέργεια φωτονίων. Ως ανιχνευτής αναφοράς θεωρείται ένας ανιχνευτής Nal(Tl) 3"x3", ενώ ως γεωμετρία πηγής-ανιχνευτή θεωρείται μία σημειακή πηγή ⁶⁰Co τοποθετημένη σε απόσταση 25cm κεντρικά πάνω από τον ανιχνευτή. Η σχετική απόδοση υπολογίζεται για τα φωτόνια ενέργειας 1332.5 keV του ⁶⁰Co. Όπως προκύπτει από τα παραπάνω, για πολύ μεγάλους ανιχνευτές η σχετική απόδοση μπορεί να πάρει τιμή υψηλότερη από 100%.

Η απόδοση φωτοκορυφής πλήρους απόθεσης είναι η πιο σημαντική παράμετρος στις μετρήσεις με τεχνικές γ-φασματοσκοπίας και συνήθως συμβολίζεται με το ελληνικό γράμμα «ε». Ορίζεται ως ο λόγος των φωτονίων συγκεκριμένης ενέργειας που καταγράφονται κάτω από μία φωτοκορυφή, προς το συνολικό πλήθος των φωτονίων της αντίστοιχης ενέργειας που εκπέμπονται από την πηγή. Υπολογίζεται από σχέση της μορφής 4.4:

Η απόδοση φωτοκορυφής εξαρτάται από την ενέργεια των φωτονίων, τη γεωμετρία πηγήςανιχνευτή, τα χαρακτηριστικά του δείγματος (υλικό και πυκνότητα) και μπορεί να προσδιοριστεί είτε με πειραματικές διαδικασίες που βασίζονται στη χρήση κατάλληλων πηγών βαθμονόμησης, είτε με υπολογιστικές μεθόδους, όπως για παράδειγμα μέσω της σχέσης 4.5:

$$ε = f_g \cdot f_s \cdot f_d$$
 (Σχέση 4.5)

όπου:

 f_g : Παράγοντας γεωμετρίας πηγής-ανιχνευτή, ο οποίος εκφράζει τη στερεά γωνία Ω, η οποία προσδιορίζεται από τη σχετική θέση δείγματος-ανιχνευτή και αντιστοιχεί στο ποσοστό των εκπεμπόμενων φωτονίων που κατευθύνονται προς τον ανιχνευτή.

f_s : Παράγοντας δείγματος ο οποίος εκφράζει την αυτοαπορρόφηση των φωτονίων μέσα στο δείγμα. Έχουν αναπτυχθεί διάφορες μέθοδοι για τον προσδιορισμό του, πειραματικές (Chouak A., 1978), ημιεμπειρικές (Coles D.G. et al., 1976), αναλυτικές (Sima O., 1992), αριθμητικές (Debertin K. and Helmer R.G., 1988), μέσω προσομοίωσης Monte Carlo (Sima O., 1996), (Sima O. and Arnold D., 1996), (Haase G. et al., 1993) ενώ στο ΕΠΤ-ΕΜΠ έχει αναπτυχθεί και χρησιμοποιείται πειραματική-υπολογιστική μέθοδος (Anagnostakis M.J. and Simopoulos S.E., 1995). f_d : Παράγοντας ανιχνευτή ο οποίος εκφράζει την εσωτερική απόδοση του ανιχνευτή, δηλαδή την πιθανότητα τα φωτόνια που φτάνουν στον ανιχνευτή να εναποθέσουν όλη την ενέργεια τους σε αυτόν. Εξαρτάται από την ενέργεια των φωτονίων, τα ηλεκτρόνια της ανιχνευτικής διάταξης και τη μορφή του ανιχνευτή.

Για τον πειραματικό προσδιορισμό της απόδοσης φωτοκορυφή απαιτείται η ύπαρξη προτύπων πηγών βαθμονόμησης της ίδια γεωμετρία με τα προς ανάλυση δείγματα, οι οποίες εκπέμπουν φωτόνια σε κατάλληλες ενέργειες που καλύπτουν επαρκώς όλο το εύρος της περιοχής βαθμονόμησης. Ο προσδιορισμός της απόδοσης *ε* για κάθε μία από τις ενέργειες γίνεται από τη σχέση:

$$\varepsilon = \frac{area}{time \cdot yield \cdot activity}$$
(Σχέση 4.6)

όπου:

area : η καθαρή επιφάνεια της φωτοκορυφής που σχηματίζεται στο φάσμα λόγω της πλήρους απόθεσης ενέργειας των υπόψη φωτονίων

time : η χρονική διάρκεια συλλογής του φάσματος σε sec

yield : το ποσοστό εκπομπής των φωτονίων της υπόψη ενέργειας που εκπέμπονται από την πηγή

activity: η ραδιενέργεια (σε Bq) της πηγής που εκπέμπει τα φωτόνια της υπόψη ενέργειας κατά τη στιγμή συλλογής του φάσματος. Στην περίπτωση που απαιτούνται υπολογισμοί διόρθωσης της ενεργότητας της πηγής, εξαιτίας απομείωσης (decay) της πηγής μπορεί να χρησιμοποιηθεί η ακόλουθη σχέση:

$$A(t) = A(0) \cdot e^{-\frac{\ln 2 \cdot time}{T_{1/2}}}$$
 (Σχέση 4.7)

όπου:

A(t) : η ενεργότητα της πηγής κατά τη στιγμή της μέτρησης

A(0) : η ενεργότητα της πηγής κατά τη στιγμή αναφοράς

time : το χρονικό διάστημα απομείωσης

T_{1/2} : ο χρόνος υποδιπλασιασμού του ισοτόπου

Η απόδοση μίας ανιχνευτικής διάταξης για συγκεκριμένη γεωμετρία πηγής-ανιχνευτή και για συγκεκριμένη ενέργεια είναι συνάρτηση των παρακάτω παραμέτρων:

- Του ποσοστού των φωτονίων που εκπέμπονται από την πηγή και αλληλεπιδρούν απευθείας με τον όγκο του ανιχνευτή και μόνο. Αυτό καθορίζεται από τις διαστάσεις και την μορφή της πηγής-δείγματος και του ανιχνευτή και από την μεταξύ τους απόσταση.
- Του ποσοστού των φωτονίων που αλληλεπιδρούν με τον ανιχνευτή και συνεισφέρουν στην δημιουργία κορυφής πλήρους απόθεσης ενέργειας. Αυτό καθορίζεται από το μέγεθος του ανιχνευτή και από την ενέργεια των φωτονίων.
- Της αυτοαπορρόφησης των φωτονίων μέσα στο υλικό της πηγής. Το φαινόμενο αυτό ενδεχομένως να μπορεί να αμεληθεί για ορισμένες ενέργειες φωτονίων, πάχη δείγματος, υλικά και πυκνότητες δείγματος.
- Της εξασθένησης των φωτονίων λόγω του υλικού του παραθύρου του ανιχνευτή. Η ένταση του φαινομένου μεταβάλλεται ανάλογα και με την ενέργεια των φωτονίων.

Κατά τη διαδικασία πειραματικού προσδιορισμού της καμπύλης απόδοσης ενός ανιχνευτή πρέπει να πληρούνται οι παρακάτω προϋποθέσεις κατά την επιλογή των πηγών βαθμονόμησης:

- Οι πηγές θα πρέπει να έχουν την ίδια γεωμετρία με τα προς ανάλυση δείγματα και να έχουν κατά το δυνατό παραπλήσια σύσταση και πυκνότητα.
- Πρέπει να περιέχουν κατάλληλα επιλεγμένα ισότοπα που εκπέμπουν φωτόνια διαφορετικών ενεργειών προκειμένου να καλύπτεται με επάρκεια η ενεργειακή περιοχή ενδιαφέροντος.
- Οι ραδιενέργεια των περιεχομένων στις πηγές ισοτόπων πρέπει να είναι γνωστές με ακρίβεια και να συνοδεύονται από κατάλληλο πιστοποιητικό στο οποίο θα αναγράφεται και η αβεβαιότητά τους.
- Θα πρέπει να είναι ομοιογενείς και η ομοιογένειά τους να μην μεταβάλλεται με το χρόνο.

Δυστυχώς, δεν είναι πάντα διαθέσιμες πηγές βαθμονόμησης που να ικανοποιούν όλες τις παραπάνω προϋποθέσεις, οπότε στην περίπτωση που ο χρήστης επιθυμεί να προχωρήσει σε πειραματική βαθμονόμηση θα πρέπει ενδεχομένως να τις παρασκευάσει. Στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. παρασκευάσθηκαν τέτοιες πηγές βαθμονόμησης και στο επόμενο κεφάλαιο αναλύονται οι λόγοι που οδήγησαν στην επιλογή αυτή, αλλά και οι δυσκολίες και οι περιορισμοί που υπήρξαν και οι δρόμοι που ακολουθήθηκαν προκειμένου να εξαλείφουν.

Μία άλλη δυνατότητα για την εκτίμηση της απόδοσης φωτοκορυφής είναι η χρήση κωδίκων προσομοίωσης. Υπάρχουν πολλές διαθέσιμες επιλογές, που βασίζονται συνήθως στην τεχνική προσομοίωσης Monte Carlo (όπως ο κώδικας PENELOPE που χρησιμοποιήθηκε στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ.) και ο χρήστης μπορεί να επιλέξει έναν κώδικα ανάλογα με τις ανάγκες αλλά και την εμπειρία του.

Ανεξάρτητα από τη διαδικασία προσδιορισμού της απόδοσης (πειραματικά, με προσομοίωση κλπ) σε κάθε περίπτωση προκύπτουν ζεύγη πειραματικών σημείων (ενέργεια φωτονίου, απόδοση ανιχνευτή). Τα πειραματικά αυτά σημεία χρησιμοποιούνται για την εκτίμηση καμπύλης απόδοσης του ανιχνευτή συναρτήσει της ενέργειας. Εννοείται ότι η καμπύλη αυτή θα ισχύει για συγκεκριμένη γεωμετρία πηγής-ανιχνευτή. Με χρήση της καμπύλης αυτής, μπορεί να εκτιμηθεί η απόδοση του ανιχνευτή για οποιαδήποτε ενέργεια, κάτι που είναι απαραίτητο στις γ-φασματοσκοπικές αναλύσεις.

Η βιβλιογραφία δίνει πολλές επιλογές ως προς τη μορφή της κατάλληλης συνάρτησης βαθμονόμησης απόδοσης. Οι συναρτήσεις που προτείνονται είναι είτε εμπειρικές, είτε ημιεμπειρικές. Γενικά, η μορφή της συνάρτησης αναδρομής εξαρτάται από το είδος του ανιχνευτή και την ενεργειακή περιοχή βαθμονόμησής του (Nix D.W et al., 1979; Tsoulfanides N., 1983; Sanchez-Reyes A.F. et al., 1987; Debertin K.M. and Helmer R.G., 1988; Aksoy A. et al., 1993; Gilmore G. and Hemingway J., 1995). Στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. χρησιμοποιείται η σχέση 4.6 που είναι και από τις πλέον συνηθισμένες για όλες τις ενεργειακές περιοχές και όλους τους τύπους ανιχνευτών:

$$ln(ε) = a_0 + a_1 \cdot ln(E) + \alpha_2 \cdot [ln(E)]^2 + \alpha_3 \cdot [ln(E)]^3 + ...$$
 (Σχέση 4.8)

Οι συντελεστές της συνάρτησης προσδιορίζονται με τη μέθοδο των ελαχίστων τετραγώνων. Ο χρήστης μπορεί να επιλέξει τον βαθμό της συνάρτησης. Επισημαίνεται όμως ότι επιθυμητό είναι η συνάρτηση να έχει μικρό σχετικά βαθμό, ώστε η σχετική καμπύλη που προκύπτει να έχει φυσική σημασία και να επηρεάζεται όσο γίνεται λιγότερο από την τυχαία κύμανση των πειραματικών σημείων.

Στο σχήμα 4.8 που ακολουθεί παρουσιάζεται μία θεωρητική τυπική καμπύλη απόδοσης για ομοαξονικό ανιχνευτή γερμανίου.



Σχήμα 4.8: Τυπική καμπύλη απόδοσης ανιχνευτή γερμανίου υψηλής καθαρότητας (Canberra Industries).

Κατά τη διαδικασία βαθμονόμησης απόδοσης θα πρέπει να λαμβάνεται υπόψη ότι:

- Για μία σειρά από λόγους⁴ μόνο ένα σχετικά μικρό ποσοστό των ραδιενεργών ισοτόπων που συνήθως είναι διαθέσιμα στα ερευνητικά εργαστήρια μπορούν να χρησιμοποιηθούν για την παρασκευή πηγών βαθμονόμησης και δεν είναι πάντα εύκολο να καλυφθεί με επάρκεια όλο το επιθυμητό ενεργειακό εύρος στο οποίο θα λειτουργεί ο ανιχνευτής.
- Ειδικότερα, όταν είναι επιθυμητό η καμπύλη βαθμονόμησης να επεκτείνεται στην περιοχή των «υψηλών ενεργειών» τα ισότοπα τα οποία είναι διαθέσιμα είναι περιορισμένα. Συγκεκριμένα, συνήθως μόνο το ⁶⁰Co (1173, 1332keV), ¹⁵²Eu (1407 keV) και το ⁸⁸Y (1836 keV) είναι διαθέσιμα.
- Στην περίπτωση πυρήνων που αποδιεγείρονται εκπέμποντας φωτόνια σε σειρά (⁶⁰Co, ¹⁵²Eu, ⁸⁸Y, ¹³⁴Cs) εμφανίζεται το πρόβλημα της πραγματικής σύμπτωσης (true coincidence) το οποίο θα πρέπει να λαμβάνεται υπόψη.
- Η πηγή βαθμονόμησης δεν θα πρέπει να έχει υψηλή ραδιενέργεια γιατί τότε υπάρχει ο κίνδυνος να είναι σημαντικό το φαινόμενο της τυχαίας άθροισης (random summing) οπότε απαιτούνται κατάλληλες διορθώσεις.

Θα πρέπει να επισημανθεί στο σημείο αυτό ότι ένας ανιχνευτής υψηλής απόδοσης παρουσιάζει και αυξημένα προβλήματα λόγω των φαινομένων της πραγματικής σύμπτωσης (true coincidence) και της τυχαίας άθροισης (random summing).

Ένα μέγεθος που έχει πολύ σημασία για τον υπολογισμό συντελεστών διόρθωσης για το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης είναι ο λόγος **peak to total** (ptt), καθώς και ο αντίστροφός του **total to peak** (ttp) που υπολογίζονται από τις σχέσεις:

$$ptt = rac{\mathcal{E}_{peak}}{\mathcal{E}_{total}}$$
 και $ttp = rac{\mathcal{E}_{total}}{\mathcal{E}_{peak}}$ (Σχέσεις 4.9.α,β)

Όπου *Epeak* είναι η απόδοση φωτοκορυφής για μία ενέργεια και *Etotal* η αντίστοιχη ολική απόδοση.

Οι λόγοι αυτοί είναι ανεξάρτητοι από το ποσοστό εκπομπής γ_i, την ενεργότητα της πηγής Α και από τη διάρκεια συλλογής του φάσματος και έχουν να κάνουν μόνο με τις επιφάνειες

⁴ Όπως μικρό ποσοστό εκπομπής, μικρός χρόνος υποδιπλασιασμού, ενέργεια φωτονίων παραπλήσια με την ενέργεια φωτονίων άλλης πηγής κλπ.

του φάσματος, αφού πρώτα έχει αφαιρεθεί από αυτές το φυσικό υπόστρωμα της ανιχνευτικής διάταξης. Οπότε και οι σχέσεις αυτές μπορούν να γραφούν και ως λόγοι των αντίστοιχων επιφανειών:

$$ptt = \frac{area_{peak}}{area_{total}}$$
 και $ttp = \frac{area_{total}}{area_{peak}}$ (Σχέσεις 4.10.α,β)

Επισημαίνεται ότι οι σχέσεις αυτές μπορούν να εφαρμοστούν μόνο στην περίπτωση μονοενεργειακής πηγής.

4.5 Προσδιορισμός καμπύλης βαθμονόμησης απόδοσης μέσω προσομοίωσης

Για τον προσδιορισμό της καμπύλης βαθμονόμησης απόδοσης μίας ανιχνευτικής διάταξης, πέραν των πειραματικών μεθόδων μπορεί να χρησιμοποιηθεί και η μέθοδος προσομοίωσης Monte-Carlo. Στις παραγράφους που ακολουθούν περιγράφεται αναλυτικά η διαδικασία βαθμονόμησης με εφαρμογή τεχνικών προσομοίωσης Monte-Carlo. Στα πλαίσια της Δ.Δ. οι βαθμονομήσεις που έγιναν βασίστηκαν στη μέθοδο αυτή. Επισημαίνεται ότι για τη βαθμονόμηση πολύ συχνά χρειάζεται και η χρήση συμπληρωματικών πειραματικών τεχνικών, κυρίως για το χαρακτηρισμό του ανιχνευτή που προσομοιώνεται. Στο επόμενο Κεφάλαιο περιγράφεται με λεπτομέρεια η διαδικασία βαθμονόμησης απόδοσης των ανιχνευτικών διατάξεων του ΕΡΠ και του ΕΠΤ που πραγματοποιήθηκαν στα πλαίσια της Δ.Δ.

4.5.1 Μέθοδος προσομοίωσης με τεχνικές Monte Carlo

Η μέθοδος προσομοίωσης «Monte Carlo» είναι ουσιαστικά μία μέθοδος αριθμητικής επίλυσης προβλημάτων που στηρίζονται στην τυχαιότητα. Ο όρος χρησιμοποιήθηκε για πρώτη φορά τη δεκαετία του '40 από επιστήμονες που εργάζονταν πάνω στην κατασκευή πυρηνικών όπλων στο Los Alamos. Ο τρόπος λειτουργίας της μεθόδου προσομοιάζει σε ένα παιχνίδι τύχης, γι' αυτό άλλωστε και η ονομασία προέρχεται από το ομώνυμο καζίνο στο Movακό. Σήμερα, οι τεχνικές επίλυσης με κώδικες Monte Carlo χρησιμοποιούνται ευρέως για την επίλυση πολύπλοκων φυσικών και μαθηματικών προβλημάτων (James F., 1980; Rubinstein R. Y., 1981; Kalos M. H. and Whitlock P. A., 1986) τα οποία, λόγω του μεγάλου αριθμού ανεξάρτητων μεταβλητών που περιέχουν, οι πιο συμβατικές αριθμητικές μέθοδοι θα απαιτούσαν τεράστια ποσά υπολογιστικής μνήμης και χρόνου για να επιτύχουν την επίλυση τους – εφόσον αυτό ήταν δυνατόν.

Οι κώδικες προσομοίωσης οι οποίοι βασίζονται σε τεχνικές Monte Carlo χρησιμοποιούνται και στα προβλήματα που αφορούν τις αλληλεπιδράσεις των ακτινοβολιών με την ύλη, λόγω της τυχαιότητας που τις διέπει. Κατά την προσομοίωση της πορείας ενός σωματιδίου ή ενός φωτονίου και των όποιων αλληλεπιδράσεων του με την ύλη, από τη στιγμή της εκπομπής του μέχρι και το τέλος της πορείας του δημιουργείται τεχνητά μία «ιστορία» (σχήμα 4.9).

Το τέλος της ιστορίας ορίζεται με διάφορους τρόπους π.χ. διαφυγή του σωματιδίου από τα όρια του συστήματος που εξετάζεται, ή πλήρης απορρόφηση της ενέργειας του. Η ιστορία αυτή περιλαμβάνει μια τυχαία ακολουθία ελεύθερων διαδρομών του σωματιδίου, κάθε μία από τις οποίες καταλήγει σε μία αλληλεπίδραση, η οποία έχει ως συνέπεια το σωματίδιο να αλλάζει την κατεύθυνση της κίνησης του, να χάνει ενέργεια και ενίοτε να παράγει ένα δευτερεύων σωματίδιο ή φωτόνιο. Δηλαδή προσομοιώνονται όλα τα πιθανά σενάρια που μπορεί να συμβούν σε ένα πραγματικό σωματίδιο, τηρώντας πάντα τους φυσικούς νόμους αλλά και τους μηχανισμούς που διέπουν τα φαινόμενα αλληλεπίδρασης ακτινοβολίας και ύλης.



Σχήμα 4.9: Σχηματική αναπαράσταση των αλληλεπιδράσεων της ακτινοβολίας-γ με την ύλη

Η παραγωγή των ιστοριών αυτών βασίζεται στην επιλογή τυχαίων αριθμών με χρήση κατάλληλης γεννήτριας. Η διαδικασία αυτή επαναλαμβάνεται για μεγάλο αριθμό ιστοριών (οι οποίες ορίζονται από τον χρήστη). Στη συνέχεια από το πλήθος των ιστοριών αντλούνται οι κατάλληλες κάθε φορά πληροφορίες και υπολογίζονται τα μεγέθη που ενδιαφέρουν. Όσο αυξάνεται το πλήθος των προσομοιωμένων ιστοριών, οι τιμές των μεγεθών που προκύπτουν πλησιάζουν τις πραγματικές, ενώ παράλληλα μειώνεται και η αβεβαιότητα τους (Sobol, 1994).

Έχουν αναπτυχθεί διάφοροι κώδικες προσομοίωσης Monte Carlo, ανάλογα με το είδος της ακτινοβολίας (πχ., ETRAN (Berger and Seltzer, 1988), ITS3 (Halbleib et al., 1992), EGS4 (Nelson et al., 1985), GEANT3 (Brun et al., 1986), EGSNRC (Kawrakow and Rogers, 2001), MCNP (X-5 Monte Carlo Team, 2003), GEANT4 (Agostinelli et al., 2003; Allison et al., 2006), FLUKA (Ferrari et al., 2005), EGS5 (Hirayama et al., 2005). Οι κώδικες αυτοί Monte Carlo χρησιμοποιούνται ευρύτατα για την προσομοίωση πολύπλοκων γεωμετριών και αποτελούν μοναδικό εργαλείο για την επίλυση προβλημάτων όπου είναι εξαιρετικά δύσκολη ή και αδύνατη η διεξαγωγή πειραμάτων. Έτσι, βρίσκουν εφαρμογή στον υπολογισμό δόσεων, στον προσδιορισμό του παράγοντα επαύξησης της έκθεσης (exposure build-up factor), στον υπολογισμό και σχεδιασμό θωρακίσεων και στη μελέτη και σχεδίαση συστημάτων στα οποία εμπλέκονται ιοντίζουσες ακτινοβολίες, ιατρικές εφαρμογές, ανιχνευτικά συστήματα κλπ.

Οι προσομοιώσεις με μέθοδο Monte Carlo χρησιμοποιούνται ευρέως για την επίλυση προβλημάτων που αφορούν την αλληλεπίδραση ακτινοβολιών με την ύλη, ιδιαίτερα στις περιπτώσεις που δεν είναι εύκολο ή εφικτό το πείραμα. Παράδειγμα τέτοιας εφαρμογής είναι και η προσομοίωση της απόκρισης και ο η βαθμονόμηση ανιχνευτικών συστημάτων (Wainio et al., 1966). Επίσης ευρεία χρήση γίνεται και σε περιπτώσεις που το προς μέτρηση δείγμα είναι διαφορετικής φύσης και γεωμετρίας από την πηγή βαθμονόμησης (υλικό ή/και γεωμετρία). Στην πραγματικότητα αυτό δεν είναι πάντα εφικτό, οπότε λύση στο θέμα αυτό έρχονται να δώσουν οι προσομοιώσεις με τεχνικές Monte Carlo (Wang, et al., 2002; Sebastiao, et al., 2007; Sima, et al., 2009).

Στο πλαίσιο της παρούσας Δ.Δ. χρησιμοποιήθηκε ο κώδικας PENELOPE 2011 (Baro, et al., 1995) και συγκεκριμένα το πρόγραμμα χρήστη⁵ PENMAIN που διατίθεται με τον κώδικα.

⁵ User code

4.5.2 Ο κώδικας PENELOPE 2011

Στο Εργαστήριο Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος» χρησιμοποιήθηκαν για πρώτη φορά στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. τεχνικές προσομοίωσης Monte Carlo – και συγκεκριμένα ο κώδικας PENELOPE 2011 – για τη βαθμονόμηση ανιχνευτών HPGe.

Ο κώδικας PENELOPE 2011 είναι ένας υπολογιστικός κώδικα Monte Carlo για την προσομοίωση της μετάδοσης στην ύλη σωματιδίων-β και φωτονίων. Αναπτύχθηκε από τους F.Salvat, J.M.Fernandez-Varea και J.Sempau, για πρώτη Φορά το 1996, στο Πανεπιστήμιο της Βαρκελώνης. Από τότε έχει ακολουθήσει σειρά νέων εκδόσεων του κώδικα, καθώς συνεχίζει να εμπλουτίζεται σε επίπεδο βιβλιοθηκών και δυνατοτήτων. Το όνομα του κώδικα είναι ακρωνύμιο του τίτλου PENetration and Energy Loss of Positrons and Electrons, και αναπτύχθηκε αρχικά για να προσομοιώνει την διάδοση ποζιτρονίων και ηλεκτρονίων μέσα στην ύλη. Η προσομοίωση φωτονίων προστέθηκε αργότερα στο πρόγραμμα (Sempau et al., 1997). Ο κώδικας στηρίζεται σε ένα μοντέλο διασποράς και συνδυάζει αριθμητικές βάσεις δεδομένων με αναλυτικά μοντέλα ενεργών διατομών για τους διαφορετικούς μηχανισμούς αλληλεπιδράσεων, στην ενεργειακή περιοχή από μερικές εκατοντάδες eV έως περίπου 1GeV. Η μετάδοση φωτονίων προσομοιώνεται μέσω της συμβατικής λεπτομερούς μεθόδου. Η προσομοίωση της διάδοσης ηλεκτρονίων και ποζιτρονίων αναπαριστάται μέσω μιας συνδυαστικής διαδικασίας. Ο κώδικας λαμβάνει υπόψη τις εξής αλληλεπιδράσεις για τα φωτόνια: σκέδαση Compton, φωτοηλεκτρικό φαινόμενο, δίδυμη γένεση και μη ελαστική σκέδαση. Είναι γραμμένος σε γλώσσα προγραμματισμού FORTRAN 77 και αποτελείται από διάφορες υπορουτίνες, αρχεία εισόδου και αρχεία εξόδου, στα οποία μπορεί να έχει και την δυνατότητα να επέμβει και ο χρήστης, ή και να τα δημιουργήσει από την αρχή.

Στη βιβλιογραφία αναφέρονται πολλές εφαρμογές όπου χρησιμοποιήθηκαν κώδικες Monte Carlo για τη βαθμονόμηση μέσω προσομοιώσεων ανιχνευτικών διατάξεων και πιο συγκεκριμένα τον υπολογισμό της απόδοσης φωτοκορυφής και της ολικής απόδοσής τους. Τέτοια παραδείγματα αποτελούν οι εργασίες των (Karamanis, 2003; Rodenas, 2000; Hernandez, 2003; Saegusa, 2004) με χρήση του κώδικα MCNP, και των (Karamanis, 2003; Vidmar, 2005) με χρήση του κώδικα GEANT. Ο κώδικας CYLTRAN χρησιμοποιείται στις εργασίες των Hardy (2002) και Helmer (2003) ενώ ο κώδικας EFFTRAN σε αυτή του T.Vidmar (2005). Στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ., για τη βαθμονόμηση τεσσάρων Coaxial HPGe και ενός well type HPGe χρησιμοποιήθηκε ο κώδικας PENELOPE, ο οποίος έχει χρησιμοποιηθεί συχνά και στη βιβλιογραφία (Agrafiotis et al., 2011) και συγκεκριμένα η έκδοση του 2011.

Ο κώδικας PENELOPE δομείται πάνω σε ένα κυρίως πρόγραμμα το οποίο καλείται κώδικας χρήστη (user code) το οποίο συνδέεται με συγκεκριμένους πηγαίους κώδικες (penelope.f, pengeom.f, penvared.f, material.f, timer.f, rita.f) που περιλαμβάνουν το σύνολο των υπορουτινών προσομοίωσης των φυσικών φαινομένων και των μηχανισμών που εμφανίζονται στα προβλήματα αλληλεπίδρασης των σωματιδίων και φωτονίων με την ύλη. Τα παραπάνω είναι ουσιαστικά και το σύνολο του κώδικα και λειτουργούν προκειμένου να επιτευχθεί η προσομοίωση. Το κυρίως πρόγραμμα, για την σύνταξη του οποίου είναι κατά βάση υπεύθυνος ο χρήστης, εξασφαλίζει την επικοινωνία του κώδικα με τα αρχεία εισόδου, τις υπορουτίνες που περιέχονται στον κώδικα προσομοίωσης PENELOPE, αλλά και για την εξαγωγή αποτελεσμάτων μέσω των αρχείων εξόδου.

Η περιγραφή του προς προσομοίωση προβλήματος γίνεται μέσω των αρχείων εισόδου τα οποία είναι τύπου .in, .geo, και .mat. στα οποία γίνεται η είσοδος πληροφοριών σχετικών με το είδος της ακτινοβολίας και της ενέργειας σωματιδίων ή φωτονίων, με την γεωμετρία του προς επίλυση προβλήματος, και με τα υλικά που απαρτίζουν την προς προσομοίωση διάταξη. Τα αρχεία αυτά συνδυάζονται με έναν κώδικα χρήστη, οποίος δίνει παράλληλα και πληροφορίες για την πορεία της προσομοίωσης και για τα αποτελέσματά της. Στην έκδοση του 2011 περιέχονται δύο κώδικες χρήστη: pencyl.f που αφορά προσομοίωση σε κυλινδρικές γεωμετρίες και penmain.f που αφορά γενικά προβλήματα πιο πολύπλοκων γεωμετριών.

Τέλος, ένα πολύ σημαντικό πλεονέκτημα του κώδικα PENELOPE είναι το ότι είναι ανοιχτός και όλοι οι πηγαίοι κώδικες είναι διαθέσιμοι, οπότε μπορούν να αποτελέσουν τη βάση για τη δημιουργία ενός κώδικα πιο κοντά στις ανάγκες του χρήστη, με διάφορες βελτιώσεις ή προσθήκες οι οποίες θα επεκτείνουν το εύρος της λειτουργίας του και θα δώσουν απαντήσεις στα προβλήματα τα οποία ο χρήστης θέλει κάθε φορά να επιλύσει.

Στο Σχήμα 4.10 δίνεται η δομή του κώδικα, προκειμένου να γίνει κατανοητός ο τρόπος λειτουργίας του.



Σχήμα 4.10α: Δομή λειτουργίας του κώδικα PENELOPE 2011





4.5.3 Αρχεία εισόδου του κώδικα PENMAIN

Τα αρχεία εισόδου συντάσσονται με συγκεκριμένο τρόπο και δίνουν τη δυνατότητα στον χρήστη να ορίσει τις παραμέτρους της προσομοίωσης. Υπάρχουν τρείς τύπους αρχείων εισόδου.

4.5.3.1 Αρχείο τύπου .in

Είναι το βασικό αρχείο εισόδου δεδομένων του προβλήματος. Δίνει τη δυνατότητα στον χρήστη να καθορίσει τα βασικά χαρακτηριστικά της προσομοίωσης. Μέσω αυτού περιγράφονται:

- Η πηγή ακτινοβολίας: Δηλαδή το είδος εκπεμπόμενης ακτινοβολίας (φωτόνια, ηλεκτρόνια, ποζιτρόνια), η αρχική ενέργεια των σωματιδίων (δυνατότητα εισόδου είτε μίας ενέργειας είτε ενεργειακού φάσματος), οι συντεταγμένες της πηγής όπως και τη γωνία εκπομπής. Επίσης, δίνεται η δυνατότητα επιλογής για κάθε υλικό και είδος σωματιδίων των ενεργειών κάτω από τις οποίες ο κώδικας παύει να παρακολουθεί το εν λόγω σωματίδιο (cut-off energies) ολοκληρώνοντας την ιστορίας του. Ακόμη, στην έκδοση PENELOPE 2011, ο χρήστης μπορεί ως πηγή ακτινοβολίας να ορίσει τριδιάστατο σώμα, το οποίο εκπέμπει ομοιόμορφα από όλο τον όγκο του.
- <u>Οι εικονικοί ανιχνευτές:</u> Πρόκειται για συγκεκριμένες περιοχές μέσα στη γεωμετρία που προσομοιώνεται⁶. Στο αρχείο δεδομένων δηλώνεται απλά ο αύξων αριθμός που αντιστοιχεί στα σώματα «bodies» που αναπαριστούν τον ανιχνευτή στο αρχείο γεωμετρίας.
- <u>Αρχεία εισόδου & εξόδου:</u> Επιλέγονται τα ονόματα των αρχείων αρχεία όπου ο κώδικας θα καταγράφει περιοδικά τα αποτελέσματα των προσομοιώσεων (showers) και το χρονικό βήμα αυτής της διαδικασίας προσωρινής αποθήκευσης. Μετά την κατασκευή των αρχείων εισόδου υλικών .mat μέσω του προγράμματος material.exe γίνεται η καταγραφή τους στο αρχείου εισόδου, με τη σειρά που έχει οριστεί στο αρχείο. Τέλος, γίνεται και η δήλωση των υλικών της ανιχνευτικής διάταξης.
- <u>Η γεωμετρία του προβλήματος</u>: Ορίζονται οι ονομασίες του αρχείου περιγραφής της γεωμετρίας (τύπου .geo) και του αρχείου περιγραφής των υλικών (τύπου .mat). Από τα ξεχωριστά αυτά αρχεία ο κώδικας θα «αναζητήσει» και θα «διαβάσει» όλα τα δεδομένα που αφορούν το πρόβλημα.
- <u>Οι παράμετροι της προσομοίωσης</u>: Ορίζεται το είδος και ο αριθμός των εικονικών ανιχνευτών, η ενεργειακή διαμέριση, το κατώφλι ενέργειας. Ορίζεται επίσης η επιθυμητή διάρκεια της προσομοίωσης και ο επιθυμητός αριθμός ιστοριών που θα προσομοιωθούν (προεπιλέγεται δηλαδή ο χρόνος που θα διαρκέσει η προσομοίωση και ο αριθμός των ιστοριών που θα προσομοιωθούν) καθώς και ορισμένες ακόμα παράμετροι που αφορούν τα αρχεία εξόδου της προσομοίωσης (όπως το κάθε πότε θα καταγράφονται τα αποτελέσματα στα αρχεία εξόδου).

Στο Παράρτημα Β παρατίθεται παράδειγμα αρχείου .in

4.5.3.2 Αρχείο τύπου .geo

Είναι το αρχείο στο οποίο περιγράφεται η γεωμετρία του προβλήματος. Ορίζονται με λεπτομέρειες τόσο η ανιχνευτική διάταξη, όσο και η πηγή εκπομπής, ώστε στη συνέχεια να μπορεί το πρόγραμμα penmain να προσομοιώσει το πρόβλημα. Για την περιγραφή της

⁶ Περισσότερες λεπτομέρειες δίνονται στην παράγραφο 4.6.5

γεωμετρίας, ο χρήστης χρησιμοποιεί έτοιμες επιφάνειες και μπορεί να εκφράσει με δικές του εξισώσεις το κάθε σώμα. Στο αρχείο .geo όλα τα τμήματα της διάταξης μπορούν με τη βοήθεια επιφανειών (surfaces) να αναλυθούν σε απλούστερα γεωμετρικά σώματα (bodies) και ενδεχομένως να αποτελέσουν ένα σύνολο (module) με συγκεκριμένες ιδιότητες. Δίνεται επίσης η δυνατότητα στον χειριστή του προγράμματος να ορίσει και τα υλικά τα οποία αντιστοιχούν στα διάφορα σώματα τα οποία έχει εισάγει στο αρχείο. Με χρήση των προγραμμάτων απεικόνισης GVIEW2D και GVIEW3D γίνεται απεικόνιση της γεωμετρίας που περιγράφεται στο αρχείο .geo σε δύο και τρεις διαστάσεις αντίστοιχα.

Στο τέλος της Δ.Δ. στο Παράρτημα Β παρατίθεται παράδειγμα αρχείου .geo

4.5.3.3 Αρχείο τύπου .mat

Πρόκειται για αρχεία ορισμού όλων των υλικών που χρησιμοποιούνται στην περιγραφή του προβλήματος. Περιέχουν όλες τις απαραίτητες φυσικές σταθερές και παραμέτρους που χρειάζεται να ληφθούν υπόψη στη διαδικασία προσομοίωσης. Το αρχείο .mat παράγεται από το πρόγραμμα material του κώδικα, το οποίο εκτελείται μέσω της εντολής:

> material.exe

Ως υλικά για την κατασκευή της γεωμετρίας μπορούν να χρησιμοποιηθούν έτοιμα υλικά από μία πλούσια βιβλιοθήκη που διαθέτει ο κώδικας. Σε περίπτωση που είναι επιθυμητή η χρήση υλικού το οποίο δεν περιέχεται στη βιβλιοθήκη υπάρχει δυνατότητα δημιουργίας του από τον χρήστη, εισάγοντας πληροφορίες όπως σύσταση πυκνότητα κλπ. Το αρχείο .mat το οποίο προκύπτει είναι μοναδικό για κάθε υλικό το οποίο προσομοιώνεται. Στη συνέχεια τα αρχεία .mat που χρησιμοποιούνται στην προσομοίωση ορίζονται με σειρά στο αρχείο εισόδου .in, η οποία σειρά πρέπει να τηρείται και στο αρχείο .geo προκειμένου να κωδικοποιηθεί με αυτόν τον τρόπο η αντιστοίχιση του κάθε στοιχείο body ή module με το αντίστοιχό του material.

Ανάλογα με το είδος του προβλήματος που πρόκειται να επιλυθεί, διαμορφώνονται κάθε φορά από το χρήστη τα αντίστοιχα αρχεία εισόδου. Σημειώνεται ότι είναι απαραίτητο, για την πραγματοποίηση της προσομοίωσης να είναι αποθηκευμένα όλα τα παραπάνω αρχεία δεδομένων στο ίδιο directory.

4.5.4 Γραφικά προγράμματα GVIEW2D και GVIEW3D

Όπως αναφέρθηκε προηγουμένως, μαζί με τον κώδικα PENELOPE διατίθενται και τα προγράμματα γραφικής απεικόνισης GVIEW2D και GVIEW3D. Με την χρήση των προγραμμάτων αυτών επιτυγχάνεται η απεικόνιση της κατασκευής που έχει δημιουργήσει ο χρήστης στα αρχεία τύπου .geo σε διδιάστατη (2d) και τριδιάστατη (3d) απεικόνιση αντίστοιχα. Τα προγράμματα GVIEW2D και GVIEW3D, τρέχουν μόνο υπό το λειτουργικό περιβάλλον Windows.

Το πρόγραμμα GVIEW2D δίνει την δυνατότητα στον χρήστη να επιλέξει αν στην απεικόνιση θα εμφανιστούν τα υλικά (materials) από τα οποία αποτελείται η κατασκευή που έχει δημιουργήσει στο .geo αρχείο, ή αν θα παρουσιαστούν μόνο τα διαφορετικά τμήματασώματα που έχουν οριστεί στο αρχείο γεωμετρίας. Ειδικά με το πρόγραμμα GVIEW3D, υπάρχει η δυνατότητα απεικόνισης από διάφορες αποστάσεις, σε τομή ή υπό γωνία, με χαμηλότερη ή υψηλότερη ανάλυση της εικόνας κλπ.

Εξυπακούεται ότι με τα προγράμματα GVIEW2D και GVIEW3D είναι δυνατή η απεικόνιση μόνο εφόσον δεν υπάρχει κάποιο σφάλμα κατά την δημιουργία του αρχείου γεωμετρίας

.geo. Στην αντίθετη περίπτωση, εμφανίζουν μήνυμα σφάλματος, δίνοντας την ευκαιρία στον χρήστη να αντιληφθεί το λάθος πριν ξεκινήσει η προσομοίωση.

4.5.5 Εικονικοί ανιχνευτές του κώδικα PENMAIN

Για την καταγραφή των πληροφοριών οι οποίες είναι χρήσιμες στο χρήστη, ο κώδικας χρήστη penmain χρησιμοποιεί εικονικούς ανιχνευτές. Ως εικονικοί ανιχνευτές ορίζονται τμήματα του κώδικα τα οποία καθορίζουν τις παραμέτρους και πληροφορίες που καταγράφονται ή υπολογίζονται σε ορισμένες περιοχές της γεωμετρίας, τις οποίες ο χρήστης έχει επιλέξει στο αρχείο .in. Στο αρχείο .in ο χρήστης έχει τη δυνατότητα να επιλέξει τόσο το είδος όσο και το πλήθος των σωμάτων που απαρτίζουν τον εικονικό ανιχνευτή. Υπάρχουν τρία είδη εικονικών ανιχνευτών: ο ανιχνευτής αποτιθέμενης ενέργειας (energy deposition detector), ο ανιχνευτής αλληλεπίδρασης (impact detector) και ο ανιχνευτής δόσης (dose enclosure). Ο χρήστης μπορεί να επιλέξει έναν ή περισσότερους εκ των ανωτέρω προκειμένου να καταγράψει την πληροφορία που τον ενδιαφέρει στο πρόβλημα το οποίο επιθυμεί να προσομοιώσει.

- Εικονικός ανιχνευτής αποτιθέμενης ενέργειας (energy deposition detector): Στον ανιχνευτή αποτιθέμενης ενέργειας καταγράφεται σε μορφή φάσματος η αποτιθέμενη ενέργεια σε ένα σώμα ή ομάδα σωμάτων της γεωμετρίας από την αλληλεπίδρασή με αυτήν φωτονίων ή σωματιδίων. Το σώμα ή η ομάδα σωμάτων έχει οριστεί με επιφάνειες και περιγραφεί από τον χρήστη στο αρχείο .geo, και εν συνεχεία έχει οριστεί ως ανιχνευτής στο αρχείο εισόδου .in. Μπορούν να χρησιμοποιηθούν έως 5 εικονικοί ανιχνευτές. Τα αποτελέσματα από την προσομοίωση βρίσκονται πάντα στο εκάστοτε αρχείο εξόδου. Στο Παράρτημα Β παρατίθεται ένα τυπικό αρχείο εξόδου εικονικού ανιχνευτή αποτιθέμενης ενέργειας.
- Εικονικός ανιχνευτής αλληλεπίδρασης (impact detector): Στον ανιχνευτή αλληλεπίδρασης καταγράφεται το ενεργειακό φάσμα των σωματιδίων ή των φωτονίων που εισέρχονται στο σώμα ή στην ομάδα σωμάτων, ανεξάρτητα από το εάν θα υπάρξει ή όχι αλληλεπίδραση. Το σώμα ή η ομάδα σωμάτων έχει οριστεί με επιφάνειες και περιγραφεί από τον χρήστη στο αρχείο .geo, και εν συνεχεία έχει οριστεί ως ανιχνευτής στο εισόδου .in. Ο χρήστης μπορεί να επιλέξει το κατά πόσο επιθυμεί την δημιουργία ενός ακόμα αρχείου το οποίο θα περιέχει άλλα χαρακτηριστικά της προσομοίωσης, για παράδειγμα το είδος, την ενέργεια, την θέση, την κατεύθυνση κλπ των σωματιδίων που εισέρχονται στο εκάστοτε αριστεί ως ανιχνευτής. Μπορούν να χρησιμοποιηθούν έως πέντε εικονικοί ανιχνευτές. Τα αποτελέσματα από την προσομοίωση βρίσκονται στο εκάστοτε αρχείο εξόδου.
- Εικονικός ανιχνευτής δόσης (dose enclosure): Στον εικονικό ανιχνευτή δόσης καταγράφεται η απορροφώμενη δόση που αποδίδεται από το σωματίδιο ή φωτόνιο σε μία καθορισμένη περιοχή της γεωμετρίας, στη θέση δηλαδή στην οποία βρίσκεται μέσα στο χώρο που ορίζεται ως ανιχνευτής. Η περιοχή αυτή ορίζεται ως ένα πλέγμα ορθογωνικής διατομής το οποίο ορίζεται στο αρχείο εισόδου .in (γραμμές GRIDX, GRIDY, GRIDZ, GRIDN) και δεν απαιτείται να οριστεί κάτι στο αρχείο .geo. Με το πέρας της προσομοίωσης τα αποτελέσματα που προκύπτουν είναι ουσιαστικά η κατανομή δόσης στο χώρο όπου ορίστηκε ο ανιχνευτής.

Στη Δ.Δ. έγινε χρήση του ανιχνευτή αποτιθέμενης ενέργειας, καθώς παρέχει την πληροφορία που οδηγεί στο ενεργειακό φάσμα που συλλέγεται σε μία ανιχνευτική διάταξη.

4.5.6 Αρχεία εξόδου του κώδικα PENMAIN

Από τη στιγμή που θα αρχίσει η προσομοίωση μέχρι την ολοκλήρωσή της, τα αποτελέσματα της καταγράφονται περιοδικά σε αρχεία εξόδου τα οποία δημιουργούνται για το σκοπό αυτό. Η συχνότητα ενημέρωσης των αρχείων αυτών καθορίζεται από το χρήστη στο αρχείο εισόδου .in στην γραμμή DUMP. Ακολουθεί περιγραφή των βασικών αρχείων εξόδου τα οποία χρησιμοποιήθηκαν στην παρούσα Δ.Δ.:

- dump.dmp: πρόκειται για το αρχείο όπου καταχωρούνται οι τρέχουσες κάθε στιγμή τιμές των διαφόρων μεταβλητών κατά τη διάρκεια της προσομοίωσης. Το σημαντικό πλεονέκτημα με αυτό το αρχείο είναι ότι σε περίπτωση που η προσομοίωση για οποιοδήποτε λόγο διακοπεί, δίνεται η δυνατότητα στον χρήστη να συνεχίσει από το σημείο όπου σταμάτησε, καθώς ο κώδικας θα ξεκινήσει να διαβάζει το αρχείο αυτό από το σημείο που έγινε η διακοπή. Αυτό δίνει και τη δυνατότητα στο χρήστη να διακόπτει την προσομοίωση προσωρινά όποτε θέλει και στη συνέχεια να συνεχίζει από το ίδιο σημείο.
- geometry.rep: είναι το αρχείο που περιέχει την γεωμετρική περιγραφή της κατασκευής όπως αυτή ορίστηκε από το χρήστη στο αρχείο .geo.
- material.dat: είναι το αρχείο που περιλαμβάνει όλες τις απαραίτητες πληροφορίες για τα χαρακτηριστικά και τις ιδιότητες των υλικών της προσομοίωσης.
- penmain.dat: είναι το αρχείο που περιλαμβάνει αναλυτικά τις παραμέτρους της προσομοίωσης όπως αυτές ορίστηκαν από το χρήστη στο αρχείο .in. Πιο συγκεκριμένα περιέχει πληροφορίες σχετικά με την ημερομηνία και την ώρα της έναρξης της προσομοίωσης, τον τίτλο της διεργασίας, την περιγραφή της πηγής, τις παραμέτρους των υλικών της κατασκευής, την ονομασία του αρχείου γεωμετρίας, το μέγιστο μήκος του βήματος για κάθε σώμα, τις παραμέτρους της εξαναγκασμένης αλληλεπίδρασης, τις διαστάσεις των καναλιών, τα χαρακτηριστικά των ανιχνευτών, τις ονομασίες των αρχείων dump και το χρονικό βήμα ενημέρωσης των αρχείων εξόδου, το πλήθος ιστοριών (showers) και τη χρονική διάρκεια της προσομοίωσης.
- penmain-res.dat: είναι αρχείο το οποίο ανανεώνεται κάθε φορά με βήμα το οποίο ορίζει ο χρήστης στο αρχείο .in στην γραμμή dump με τις νέες τιμές των αποτελεσμάτων της προσομοίωσης. Πρέπει να αναφερθεί ότι όσο πιο μικρό είναι το χρονικό βήμα, τόσο μεγαλύτερο γίνεται τελικά το αρχείο αυτό. Περιλαμβάνει πληροφορίες για το χρόνο και την ταχύτητα της προσομοίωσης, το συνολικό αριθμό των πρωτογενών σωματιδίων που έχουν προσομοιωθεί καθώς και όσων εξήλθαν της κατασκευής, οπισθοσκεδάσθηκαν και απορροφήθηκαν, όπως και το ποσοστό αυτών ως προς το συνολικό αριθμό των ιστοριών που προσομοιώθηκαν, τις πιθανότητες να εκπεμφθούν, οπισθοσκεδασθούν ή απορροφηθούν τα δευτερογενή σωματίδια ή φωτόνια που προέκυψαν από την προσομοίωση, τη μέση τιμή της αποτιθέμενης ενέργειας (σε eV) σε κάθε σώμα (body) της διάταξης και σε κάθε ανιχνευτή αποτιθέμενης ενέργειας και τις τιμές που προέκυψαν από τις γεννήτριες τυχαίων αριθμών.
- spc-enddet-01.dat: είναι το αρχείο στο οποίο καταγράφεται η κατανομή της αποτιθέμενης ενέργειας στον αντίστοιχο ανιχνευτή ο οποίος έχει οριστεί από τον χρήστη στο αρχείο .in. Στην περίπτωση που έχουν οριστεί περισσότεροι του ενός ανιχνευτές (όπως έχει ήδη αναφερθεί μπορούν να οριστούν ως 5 ανιχνευτές) προκύπτουν ισάριθμα τέτοια αρχεία. Κάθε διαφορετική γραμμή αντιστοιχεί σε ένα ενεργειακό κανάλι (bin). Η πρώτη στήλη αναφέρεται στην πιθανότητα ύπαρξης σωματιδίου με την αντίστοιχη εναπόθεση ενέργειας μέσα στον ανιχνευτή, σε 1/(eV-particle), και υπολογίζεται ως:

όπου:

bin particles : ο αριθμός των σωματιδίων ή φωτονίων που απέθεσαν ενέργεια στον ανιχνευτή εντός των ορίων του ενεργειακού καναλιού.

total particles : το συνολικό πλήθος των σωματιδίων και φωτονίων που προσομοιώθηκαν.

bin_width : το εύρος του ενεργειακού καναλιού (eV), όπως αυτό ορίζεται από τις επιλογές του χρήστη στο αρχείο .in.

Η τρίτη στήλη αναφέρεται στην αβεβαιότητα του μεγέθους της δεύτερης στήλης σε επίπεδο 3σ.

4.5.7 Υπολογισμός της απόδοσης φωτοκορυφής μέσω προσομοίωσης με τον κώδικα PENMAIN

Για τον υπολογισμό της απόδοσης φωτοκορυφής ενός ανιχνευτή (full energy peak efficiency) για συγκεκριμένη γεωμετρία πηγής-ανιχνευτή μέσω προσομοίωσης, μπορεί να χρησιμοποιηθεί ο κώδικας χρήστη penmain και ένας εικονικός ανιχνευτής αποτιθέμενης ενέργειας. Τα αποτελέσματα της προσομοίωσης θα καταγράφονται στο αρχείο spc-enddet-01.dat που προκύπτει με το πέρας της προσομοίωσης. Παρατηρώντας το αρχείο διαπιστώνεται ότι ουσιαστικά περιέχει τις πληροφορίες που προκύπτουν από ένα πειραματικό φάσμα.

4.5.7.1 Υπολογισμός της απόδοσης φωτοκορυφής

Θεωρητικά, σε ένα φάσμα που προκύπτει με τεχνικές γ-φασματοσκοπίας, τα φωτόνια τα οποία καταγράφονται σε μία φωτοκορυφή είναι αυτά τα οποία εναποθέτουν ολόκληρη την αρχική τους ενέργεια κατά την αλληλεπίδρασή τους με τον ανιχνευτή. Συνεπώς, η απόδοση φωτοκορυφής είναι η τιμή της πιθανότητας πλήρους απόθεσης ενέργειας που καταγράφεται στο ενεργειακό παράθυρο που αντιστοιχεί στην αρχική ενέργεια των φωτονίων Ε. Καθώς στο αρχείο εξόδου του εικονικού ανιχνευτή καταγράφεται το μέγεθος αυτό ανηγμένο στο εύρος του ενεργειακού παραθύρου, για τον υπολογισμό της απόδοσης αρκεί απλά να χρησιμοποιηθεί η σχέση 4.15.

$$eff_{peak} = pdf_E \cdot bin_width$$
 (Sxéon 4.12)

όπου:

eff_{peak} : είναι η απόδοση φωτοκορυφής για την εκάστοτε ενέργεια εκπομπής των φωτονίων

 pdf_{E} :είναι η τιμή της πιθανότητας εναπόθεσης ενέργειας στο κανάλι που αντιστοιχεί στην ενέργεια εκπομπής των φωτονίων Ε (η τιμή αυτή καταγράφεται στη δεύτερη στήλη του αρχείου spc-enddet-01.dat

bin_width : είναι το ενεργειακό εύρος των καναλιών το οποίο προκύπτει με την αφαίρεση δύο διαδοχικών ενεργειακών επιπέδων (σχέση 4.11)

$$bin_width = E_{n+1} - E_n$$
 (Σχέση 4.13)

Τα παραπάνω περιγράφουν ικανοποιητικά την διαδικασία για τον προσδιορισμό της απόδοσης φωτοκορυφής στις περιπτώσεις φωτονίων υψηλών ενεργειών. Στην περίπτωση φωτονίων χαμηλών ενεργειών η πιθανότητα σκέδασης η οποία να συνοδεύεται από μικρή απώλεια ενέργειας (near elastic scattering) είναι αξιόλογη, οπότε είναι δυνατόν στον ανιχνευτή να αποθέτουν πλήρως την ενέργειά τους και φωτόνια με ελαφρά μειωμένη ενέργεια από την αρχική, λόγω προηγούμενης σκέδασης π.χ. μέσα στην πηγή. Τα φωτόνια αυτά στο πειραματικό φάσμα μπορεί να καταγράφονται κάτω από τη φωτοκορυφή, συμμετέχοντας στη δημιουργία μικρής ασυμμετρίας⁷ (low energy tail). Το φαινόμενο αυτό έχει ιδιαίτερη σημασία για ενέργειες χαμηλότερες των 100 keV και ειδικά για δείγματα μεγάλου πάχους και υψηλής πυκνότητας. Κατά συνέπεια, προκειμένου η απόδοση που υπολογίζεται μέσω προσομοίωσης να είναι συγκρίσιμη με αυτήν που υπολογίζεται πειραματικά, πρέπει κατά την προσομοίωση να λαμβάνονται υπόψη και τα φωτόνια με ελαφρώς μειωμένη ενέργεια. Αυτό γίνεται λαμβάνοντας υπόψη το εύρος της φωτοκορυφής, όπως εκφράζεται από την διακριτική του ικανότητα (fwhm). Κατά συνέπεια, η σχέση (4.12) θα μπορούσε να ισχύει μόνο στην περίπτωση ενός ιδανικού ανιχνευτή, δηλαδή ενός ανιχνευτή στον οποίο όλα τα φωτόνια της ίδιας ενέργειας θα απέδιδαν σήμα του ίδιου ακριβώς πλάτους, οπότε και το FWHM θα ήταν απειροστά μικρό. Στην πραγματικότητα όμως, μέσα στην φωτοκορφή καταγράφονται και φωτόνια που έχουν χάσει μέρος της ενέργειας τους λόγω προηγούμενης σκέδασης που πραγματοποιούν με τα υλικά τα οποία παρεμβάλλονται μεταξύ της πηγής και του κρυστάλλου ανίχνευσης (Sima O. and Arnold D., 2009; Karfopoulos K.L. and Anagnostakis M.J., 2009).

Με μία προσεκτική παρατήρηση του αρχείου εξόδου spc-enddet-01.dat διαπιστώνεται ότι στα κανάλια που αντιστοιχούν σε υψηλότερες ενέργειες από την ενέργεια εκπομπής υπάρχει μηδενική πιθανότητα εναπόθεσης ενέργειας – κάτι φυσικό και αναμενόμενο. Αντίθετα, σε κανάλια μικρότερων αλλά παραπλήσιων ενεργειών ενδεχομένως παρουσιάζονται αυξημένες τιμές της πιθανότητας απόθεσης ενέργειας, κάτι που επιβεβαιώνει την ύπαρξη σκεδάσεων με πολύ μικρή απώλεια ενέργειας. Στην περίπτωση αυτή για τον υπολογισμό της απόδοση της φωτοκορυφής μέσω προσομοίωσης θα πρέπει να χρησιμοποιείται η σχέση (Karfopoulos K.L. and Anagnostakis M.J., 2009) :

$$eff_{peak} = (\sum_{n} pdf_{i}) bin_{width}$$
 (Sxéon 4.14)

όπου:

eff_{peak} : η απόδοση της φωτοκορυφής

pdf; : η πιθανότητα απόθεσης ενέργειας εντός ορίων του ενεργειακού παραθύρου i

bin_width: το εύρος των χρησιμοποιούμενων ενεργειακών παραθύρων

n : το πλήθος των ενεργειακών παραθύρων που πρέπει να αθροιστούν ώστε να προκύψει η ενεργειακή περιοχή μέσα στην οποία καταγράφονται όλα τα φωτόνια τα οποία καταγράφονται κάτω από την αντίστοιχη φωτοκορυφή πλήρους απόθεσης στο πραγματικό φάσμα. Δεδομένου ότι μία φωτοκορυφή πλήρους απόθεσης πρακτικά οριοθετείται στην περιοχή [κεντροειδές ± 1.5·FWHM], το πλήθος αυτό των ενεργειακών παραθύρων εξαρτάται από τη διακριτική ικανότητα της ανιχνευτικής διάταξης για τη συγκεκριμένη ενέργεια φωτονίων και δίνεται από τη σχέση (4.15):

$$n = \frac{1.5 \cdot FWHM}{bin_width}$$
 (Σχέση 4.15)

Το αποτέλεσμα που δίνει η σχέση 4.13 είναι η πιθανότητα ανά αρχικά εκπεμπόμενο φωτόνιο, να καταγραφεί κάτω από τη φωτοκορυφή πλήρους απόθεσης του φάσματος, που στην πραγματικότητα είναι η απόδοση φωτοκορυφής για την αντίστοιχη ενέργεια.

⁷ Αυτή η ασυμμετρία είναι συνήθως αόρατη με το μάτι στις υψηλές ενέργειες

Για τον υπολογισμό της αβεβαιότητας της απόδοσης της φωτοκορυφής σε επίπεδο 1σ θα χρησιμοποιηθεί ο νόμος διάδοσης σφαλμάτων και οι τιμές της αβεβαιότητας της πιθανότητας απόθεσης ενέργειας (pdf) για κάθε ενεργειακό παράθυρο:

$$unc_{eff_{peak}} = \frac{\sqrt{\sum_{n} (\sigma^{2}_{pdf_{i}}) \cdot bin_{width}}}{3}$$
(Σχέση 4.16)

όπου:

 unc_{eff}_{peak} : είναι η αβεβαιότητα απόδοσης φωτοκορυφής σε επίπεδο 1σ

 σ_{pdf_i} : είναι η απόλυτη αβεβαιότητα της πιθανότητας απόθεσης ενέργειας (pdf) στο –i ενεργειακό παράθυρο

n : είναι το πλήθος των ενεργειακών καναλιών, όπως δίνεται από τη σχέση (4.15)

Συνοψίζοντας, για τον υπολογισμό της απόδοσης φωτοκορυφής (αιχμής) κάνοντας χρήση των αποτελεσμάτων που προκύπτουν από το αρχείο εξόδου του κώδικα penmain, spc-enddet-01.dat χρησιμοποιείται η σχέση (4.17):

$$eff_{peak} = \Sigma pdfi \cdot bin_width$$
 (Sxéon 4.17)

όπου:

Σpdfi : το άθροισμα του περιεχομένου της δεύτερης στήλης του αρχείου, που αντιστοιχεί στο ενεργειακό εύρος της φωτοκορυφής.

Υπενθυμίζεται ότι το εύρος του καναλιού (bin_width) εξαρτάται από τις επιλογές του χρήστη στο αρχείο δεδομένων και δίνεται από τη σχέση (4.13).

4.5.7.2 Υπολογισμός της ολικής απόδοσης του ανιχνευτή

Η ολική απόδοση μίας ανιχνευτικής διάταξης για ενέργεια εκπομπής φωτονίων Ε είναι η πιθανότητα να αποτεθεί **οποιοδήποτε** ποσό ενέργειας στον ανιχνευτή από τα φωτόνια της εν λόγω αρχικής ενέργειας⁸. Επομένως, πρέπει να αντιστοιχεί με το συνολικό άθροισμα των πιθανοτήτων της 2^{ης} στήλης του αρχείου εξόδου penmain, spc-enddet-01.dat. Το αποτέλεσμα του αθροίσματος είναι η πιθανότητα/eV να αποτεθεί οποιαδήποτε ενέργεια στον ανιχνευτή εξαιτίας ενός φωτονίου που εκπέμπεται από την πηγή. Συνεπώς, το άθροισμα που προκύπτει προκειμένου να αντιστοιχεί στην ολική απόδοση πρέπει να πολλαπλασιάζεται με το εύρος του καναλιού bin_width σύμφωνα με τη σχέση:

όπου:

 $eff_{total} = \sum pdf \cdot bin_width$ (Sxéon 4.18)

eff_{total} : η ολική απόδοση του ανιχνευτή

Σpdf: το άθροισμα όλων των τιμών της δεύτερης στήλης του αρχείου εξόδου.

4.7 Στατιστική επεξεργασία και προσδιορισμός των επιπέδων ανίχνευσης μίας γ-φασματοσκοπικής ανιχνευτικής διάταξης

Όπως σε κάθε περίπτωση μέτρησης, έτσι και κατά τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση η στατιστική των μετρήσεων παίζει σημαντικό ρόλο. Στην παράγραφο αυτή παρατίθενται

⁸ Υπενθυμίζεται ότι η ενέργεια που θα αποτεθεί στον ανιχνευτή μπορεί να είναι μειωμένη λόγω σκέδασης στην πηγή, τη θωράκιση ή και στον ίδιο τον ανιχνευτή

ορισμένα βασικά μεγέθη και ορισμοί από τη στατιστική, καθώς και βασικές διαδικασίες στατιστικής επεξεργασίας μετρήσεων.

Επιπλέον, συχνά κατά τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση ενός φάσματος τίθεται το ερώτημα κατά πόσον σε μία περιοχή του φάσματος διακρίνεται μία φωτοκορυφή (είναι υπαρκτή) ή κατά πόσον αυτό που διακρίνεται στο φάσμα είναι απλά κύμανση του συνεχούς υποστρώματος. Η σχετική θεωρία και η αντίστοιχη μεθοδολογία προκειμένου να αξιολογείται η κύμανση του συνεχούς υποστρώματος ως υπαρκτή φωτοκορυφή ή όχι έχει αναπτυχθεί εδώ και πολλά χρόνια (Currie L.A., Anal. Chem. 40:586, 1968). Τα κύρια σημεία της και η μεθοδολογία εφαρμογής της παρουσιάζονται στην παράγραφο που ακολουθεί.

4.7.1 Υπολογισμός αβεβαιοτήτων

Όταν πραγματοποιούνται μετρήσεις οι τιμές που προκύπτουν συνοδεύονται από μία αβεβαιότητα η οποία πρέπει να εκτιμάται. Η αβεβαιότητα αυτή είναι σημαντική γιατί είναι ένας δείκτης της ποιότητας της μέτρησης, ενώ μπορεί να χρησιμοποιηθεί και προκειμένου να γίνει σύγκριση μετρήσεων μεταξύ τους. Υπάρχουν εν γένει τρεις τρόποι έκφρασης της αβεβαιότητας:

- Η απόλυτη αβεβαιότητα, δ(x), που εκφράζεται σε μονάδες του μεγέθους x
- Η σχετική αβεβαιότητα, η οποία είναι καθαρός αριθμός:

$$\sigma(x) = \frac{\delta(x)}{x}$$
 (Σχέση 4.19)

• Η % σχετική αβεβαιότητα, η οποία εκφράζεται ως ποσοστό (%):

$$\sigma(x)\% = \sigma(x) \cdot 100 = \frac{\delta(x)}{x} \cdot 100$$
 (Σχέση 4.20)

Σε κάθε περίπτωση που δίδεται η αβεβαιότητα ενός μεγέθους, αυτή αναφέρεται σε ορισμένο επίπεδο εμπιστοσύνης. Ο συνηθέστερος τρόπος έκφρασης της αβεβαιότητας είναι σε επίπεδο εμπιστοσύνης 68% που αντιστοιχεί σε $1 \cdot \sigma(x)^9$. Ένας άλλος τρόπος έκφρασης της αβεβαιότητας είναι σε επίπεδο εμπιστοσύνης 99.7% που αντιστοιχεί σε $3 \cdot \sigma(x)^{10}$.

Τα παραπάνω ισχύουν στην περίπτωση υπολογισμού αβεβαιότητας μίας και μόνο μεταβλητής. Συνήθως, αντιμετωπίζεται θέμα υπολογισμού της αβεβαιότητας ενός μεγέθους που υπολογίζεται μέσω άλλων μεγεθών, καθένα εκ των οποίον συνοδεύεται από τη δική του αβεβαιότητα. Στην περίπτωση αυτή, η συνολική αβεβαιότητα προκύπτει ως συνδυασμένη αβεβαιότητα¹¹ των επί μέρους αβεβαιοτήτων. Τέτοια περίπτωση αντιμετωπίζεται για παράδειγμα κατά τον υπολογισμό της αβεβαιότητας της απόδοσης ενός ανιχνευτή, λόγω της εμπλοκής των αβεβαιοτήτων της ενεργότητας (Α) της πηγής και της καθαρής επιφάνειας φωτοκορυφής (Ν). Σε αυτή τη περίπτωση η συνδυασμένη αβεβαιότητα υπολογίζεται από τη σχέση :

$$\sigma(eff) = \sqrt{(\sigma(N))^2 + (\sigma(A))^2}$$
 (Σχέση 4.21)

Αντίστοιχα γίνεται ο υπολογισμός και σε οποιαδήποτε άλλη περίπτωση.

⁹ Πρόκειται για το μέγεθος που ορίζεται ως standard uncertainty

 $^{^{10}}$ Πρόκειται για το μέγεθος που ορίζεται ως expanded uncertainty με coverage factor k=3

¹¹ Πρόκειται για το μέγεθος που ορίζεται ως combined uncertainty σε κάποιο επίπεδο
4.7.2 Στατιστικός έλεγχος, U-test

Συχνά, απαιτείται η σύγκριση δύο μεγεθών που συνοδεύονται από αβεβαιότητα προκειμένου, να προκύψει συμπέρασμα για το κατά πόσον αυτά διαφέρουν ή όχι μεταξύ τους στατιστικά. Στην περίπτωση αυτή τη λύση δίνει ένας στατιστικός έλεγχος (τεστ), όπως ένα δίπλευρο στατιστικό τεστ, το γνωστό και ως U-test. Τα βήματα για την εκτέλεση του τεστ είναι τα ακόλουθα:

1. Ορίζεται μηδενική και εναλλακτική υπόθεση (δηλαδή της ισότητας και της ανισότητάς τους)

> $H_0: x_1 = x_2$ $H_1: x_1 \neq x_2$

 Υπολογίζεται α μεταβλητή U η οποία ακολουθεί κανονική κατανομή με βάση την ακόλουθη σχέση:

$$U = \frac{x_1 - x_2}{\sqrt{(\delta(x_1))^2 + (\delta(x_2))^2}}$$
 (Σχέση 4.22)

- 3. Γίνεται η σύγκριση βάσει της τιμής της μεταβλητής U, συγκεκριμένα:
 - Για |U| ≤ 1.96 οι δύο τιμές δε διαφέρουν στατιστικά, με βαθμό εμπιστοσύνης 95%
 - Για τιμή του |U| ≥ 2.58 διαπιστώνεται στατιστική διαφορά μεταξύ των δύο μεγεθών
 - iii. Για 1.96 ≤ |U| ≤ 2.58 | δεν μπορούν να εξαχθούν ασφαλή συμπεράσματα (περιοχή αβεβαιότητας)

4.7.3 Κατώτερα όρια ανίχνευσης μίας διάταξης

Κατά τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση ενδιαφέρει, πέραν της ανίχνευσης του είδους των ισοτόπων στο δείγμα και η ποσότητας των ραδιενεργών πυρήνων που περιέχονται σε αυτό. Το πρόβλημα είναι ότι οι ανιχνευτικές διατάξεις δεν έχουν την δυνατότητα να δίνουν πάντοτε (σωστή) απάντηση στην αναζήτησή αυτή, καθώς δεν έχουν απεριόριστες ικανότητες ανίχνευσης, ιδιαίτερα όταν πρόκειται για πολύ χαμηλά επίπεδα ραδιενέργειας. Σε αυτές τις περιπτώσεις είναι ενδεχόμενο να λαμβάνονται τιμές που είτε υποεκτιμούν τα επίπεδα του ανιχνευόμενου ραδιενεργού ισοτόπου, είτε οδηγούν λανθασμένα στο συμπέρασμα ότι αυτό απουσιάζει από το δείγμα, καθώς δεν δύναται να ανιχνευτεί από τη διάταξη. Καθίσταται λοιπόν ιδιαίτερα σημαντικός ο προσδιορισμός ενός μεγέθους που θα ορίζει τον ελάχιστο αριθμό γεγονότων και εν τέλει την ελάχιστη ραδιενέργεια του δείγματος την οποία μπορεί να εντοπίσει η ανιχνευτική διάταξη, με ορισμένη βεβαιότητα. Για το σκοπό αυτό ορίζονται και χρησιμοποιούνται μία σειρά από μεγέθη (Gilmore 1995):

το L_c που πρόκειται για την απόκριση του οργάνου, δηλαδή το όριο πάνω από το οποίο μπορούμε να θεωρήσουμε ότι το όποιο σήμα μπορεί να θεωρηθεί ανιχνεύσιμο. Από τη στιγμή που μετράται ένα σήμα, είναι σημαντικό το να στοιχειοθετηθεί η στατιστική του σημασία. Δεδομένου ότι ένα σήμα γίνεται στατιστικά μη σημαντικό από τη στιγμή που θα χαθεί στο υπόβαθρο της μέτρησης, γίνεται φανερό ότι σημαντικό ρόλο στον ορισμό αυτού του ορίου διαδραματίζουν οι αβεβαιότητες του υποβάθρου. Πρακτικά, είναι το όριο το οποίο δηλώνει αν μία αιχμή που υπάρχει στο φάσμα η οποία βρίσκεται κοντά στο μηδέν αποτελεί πραγματικό σήμα ή όχι.

- Το μέγεθος L_u, στην περίπτωση που το σήμα δεν μπορεί να θεωρηθεί στατιστικά σημαντικό, δίνει το μέγιστο στατιστικό λογικό ύψος. Το όριο αυτό χρησιμοποιείται για την αξιολόγηση της στατιστικής ορθότητας μία υπολογισμένης καθαρής επιφάνειας. Στην περίπτωση που η επιφάνεια είναι μικρότερη ή και ίση με το L_c πρέπει να ορισθεί ως μη ανιχνεύσιμο και να ορισθεί ένα ανώτερο όριο.
- το L_D το πραγματικό σήμα το οποίο μπορεί να θεωρηθεί εκ των προτέρων ότι θα ανιχνευθεί.
- το L_Q που πρόκειται για το επίπεδο πάνω από το οποίο η ακρίβεια της μέτρησης μπορεί να θεωρηθεί επαρκής όταν θέλουμε να κάνουμε ποσοτικό προσδιορισμό και
- MDA (Minimum Detectable Activity) είναι το ελάχιστο ποσό της ανιχνευόμενης ενεργότητας.

Τα παραπάνω μεγέθη παρουσιάζονται παραστατικά στο ακόλουθο σχήμα, το οποίο δείχνει ουσιαστικά τη διαφορά τους.



Σχήμα 4.13: Διάταξη των ορίων ανίχνευσης μετά από μέτρηση ραδιενεργού δείγματος (Currie L.A., Anal. Chem. 40:586, 1968)

Ένα μέγεθος το οποίο παρουσιάζει ιδιαίτερο ενδιαφέρον στις μελέτες με τεχνικές γφασματοσκοπίας είνια το **κατώτερο όριο ανίχνευσης (LLD**) ενός ραδιοϊσοτόπου. Πρόκειται για το όριο επιφάνειας της σχηματιζόμενης φωτοκορυφής που, σε συγκεκριμένο επίπεδο εμπιστοσύνης, ανιχνεύεται μετά βεβαιότητας. Στην περίπτωση μέτρησης δείγματος, το κατώτερο όριο ανίχνευσης αποτελεί την ελάχιστη επιφάνεια που πρέπει να έχει μία φωτοκορυφή ώστε να ανιχνευτεί με βεβαιότητα, σε ένα συγκεκριμένο επίπεδο εμπιστοσύνης.

Με το θέμα αυτό ασχολήθηκαν αρκετοί ερευνητές οπότε και προέκυψαν αντιστοίχως πολλές διαφορετικές σχέσεις υπολογισμού. Στην Δ.Δ. χρησιμοποιήθηκε η ακόλουθη σχέση (Gilmore 1995):

$$L_D = 2.71 + 3.29 \left[B \left(1 + \frac{N}{2m} \right) \right]^{1/2}$$
 (5χέση 4.23)

όπου:

Β : το συνεχές υπόστρωμα που αντιστοιχεί στην εξεταζόμενη φωτοκορυφή.
Υπολογίζεται με τη μέθοδο του τραπεζίου με χρήση *m* καναλιών αριστερά και δεξιά από τα Ν κανάλια στα οποία κατανέμεται η φωτοκορυφή.

M : το πλήθος των καναλιών αριστερά και δεξιά της φωτοκορυφής τα οποία χρησιμοποιούνται και για τον προσδιορισμό του συνεχούς υποστρώματος B.

N : το πλήθος των καναλιών στα οποία κατανέμεται η εξεταζόμενη φωτοκορυφή, δηλαδή των καναλιών που χρησιμοποιούνται για τον υπολογισμό του μεγέθους area.

Η σχέση αυτή δίνει το κατώτερο όριο ανίχνευσης σε επίπεδο εμπιστοσύνης 95%, ενώ παράλληλα μας δείχνει στο ίδιο ποσοστό εμπιστοσύνης το ότι δεν υπάρχει πιθανότητα ανίχνευσης ραδιενέργειας σε ένα «καθαρό» δείγμα.

Το κατώτερο όριο ανίχνευσης, δύναται να βελτιωθεί (ουσιαστικά να μειωθεί) με την αύξηση της ανιχνευτικής ικανότητας του οργάνου, μειώνοντας το υπόβαθρο των μετρήσεων για μια δεδομένη πειραματική διάταξη με την αύξηση του χρόνου μέτρησης ή και του μεγέθους του δείγματος.

4.7.4 Ελάχιστη ανιχνεύσιμη ραδιενέργεια

Ως ελάχιστη ανιχνεύσιμη ραδιενέργεια (Minimum Detectable Activity – MDA) ορίζεται η ελάχιστη ποσότητα ραδιενέργειας ενός ισοτόπου που πρέπει να περιέχεται σε ένα δείγμα ώστε να υπάρχει δεδομένη πιθανότητα για την ανίχνευσή του (συνήθως σε επίπεδο εμπιστοσύνης 95%. Με άλλα λόγια ως MDA ορίζεται η ραδιενέργεια που αντιστοιχεί σε επιφάνεια φωτοκορυφής ίση με L_D.

Το MDA δίνεται από την ακόλουθη σχέση:

$$MDA = \frac{L_D}{time \cdot yield \cdot efficiency}$$
(Σχέση 4.24)

όπου:

 L_D : το κατώτερο όριο ανίχνευσης

time : ο χρόνος συλλογής του φάσματος

yield : το ποσοστό των γεγονότων που καταλήγουν σε εκπομπή φωτονίων της συγκεκριμένης ενέργειας

efficiency: είναι η απόδοση φωτοκορυφής

Σε περίπτωση που το μέγεθος MDA αναφέρεται σε ισότοπο το οποίο υπάρχει στο υπόστρωμα της ανιχνευτικής διάταξης (πχ ⁴⁰K), αυτό θα πρέπει να λαμβάνεται υπόψη και να αφαιρείται.

Το μέγεθος αυτό είναι ένα ποσοτικό μέτρο σύγκρισης τόσο μεταξύ διαφορετικών ανιχνευτικών συστημάτων όσο και μεταξύ διαφορετικών μεθοδολογιών μέτρησης.

Βαθμονόμηση απόδοσης των γ-φασματοσκοπικών διατάξεων

5.1 Εισαγωγή

Στο κεφάλαιο αυτό παρουσιάζεται η βαθμονόμηση απόδοσης των ανιχνευτικών διατάξεων που χρησιμοποιήθηκαν στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. Βαθμονομήθηκαν συνολικά 5 ανιχνευτικές διατάξεις. Δύο ανιχνευτές του ΕΠΤ–ΕΜΠ και τρεις ανιχνευτές του ΕΡΠ, εκ των οποίων οι δύο ήταν ομοαξονικοί ανιχνευτές και ο τρίτος ήταν ανιχνευτής τύπου φρέατος (Well – type).

Θα παρουσιαστεί ο τρόπος εργασίας τόσο για την πειραματική βαθμονόμηση των διατάξεων, όσο και για τη βαθμονόμησή τους με εφαρμογή τεχνικών προσομοίωσης Monte-Carlo. Στις περιπτώσεις που χρειάζεται θα αναλυθεί και η διαδικασία εκτίμησης συντελεστών διόρθωσης με χρήση των προγραμμάτων TrueCoinc και EFFTRAN, προκειμένου να αντιμετωπισθούν τα προβλήματα που δημιουργούνται λόγω των φαινομένων πραγματικής σύμπτωσης.

Προκειμένου να χρησιμοποιηθεί ο κώδικας προσομοίωσης Monte-Carlo PENELOPE, έπρεπε να προσδιορισθούν τα ακριβή γεωμετρικά χαρακτηριστικά των ανιχνευτών, διαδικασία που περιγράφεται αναλυτικά για κάθε περίπτωση. Τα αποτελέσματα των προσομοιώσεων θα συγκριθούν τόσο μεταξύ τους, όσο και με τα αντίστοιχα πειραματικά, με σκοπό την επιβεβαίωση της ορθότητας των διαδικασιών που ακολουθήθηκαν και την αξιολόγηση των χρησιμοποιούμενων κωδίκων και προγραμμάτων – στην περίπτωση που χρησιμοποίηθηκαν περισσότερα από ένα.

5.2 Προσδιορισμός της απόδοσης φωτοκορυφής μέσω προσομοίωσης

Ιστορικά, οι πρώτες μελέτες των φαινομένων των σχετικών με τις αλληλεπιδράσεις της ακτινοβολίας με την ύλη και τις βαθμονομήσεις ανιχνευτικών διατάξεων είχαν βασισθεί στην εξίσωση μεταφοράς του Boltzman. Όμως η διαδικασία αυτή ενέχει δυσκολίες, ιδίως στις περιπτώσεις πολύπλοκων γεωμετριών, δεδομένου ότι οι εξισώσεις αυτές αφορούν στην επίλυση απλών γεωμετριών (Zheng-Ming and Brahme, 1993).

Στα τέλη της δεκαετίας του 1950, δεδομένης της ύπαρξης των ηλεκτρονικών υπολογιστών, αναπτύχθηκαν μέθοδοι υπολογισμού με τεχνικές Monte Carlo, οι οποίες χρησιμοποιήθηκαν ως εναλλακτική επιλογή στην μελέτη των φαινομένων αλληλεπίδρασης της ακτινοβολίας με την ύλη. Οι τεχνικές αυτές είναι ιδανικές, κυρίως λόγω της τυχαιότητας η οποία διέπει την εξέλιξη των φαινομένων αυτών. Η πρώτη χρήση των τεχνικών Monte Carlo για την μελέτη της αλληλεπίδρασης φωτονίου με την ύλη είναι αυτή των Hayward and Hubbell (1954) οι οποίοι δημιούργησαν 67 ιστορίες με την χρήση H/Y.

Με τις σημερινές υπολογιστικές δυνατότητες είναι εφικτές σύνθετες προσομοιώσεις για πολύπλοκες γεωμετρίες δείγματος-ανιχνευτή, καθιστώντας δυνατή την ικανοποιητική προσομοίωση και μελέτη, εκτός των πρωτογενών σωματιδίων ή φωτονίων και όλων των δευτερογενών ακτινοβολιών οι οποίες παράγονται.

Ανάλογα με το είδος της ακτινοβολίας υπάρχουν διάφοροι κώδικες Monte Carlo με διάφορα επίπεδα ακρίβειας κατά την προσομοίωση. Στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. για τη βαθμονόμηση των ανιχνευτικών διατάξεων χρησιμοποιήθηκε ο κώδικας PENELOPE 2011. Ο κώδικας περιέχει δύο βασικά προγράμματα: το PENCYL που χρησιμοποιείται αποκλειστικά για κυλινδρικές γεωμετρίες και το PENMAIN που χρησιμοποιείται γενικά για πιο πολύπλοκες γεωμετρίες. Στην Δ.Δ. χρησιμοποιήθηκε το πρόγραμμα PENMAIN, δεδομένου ότι δίνει στον χρήστη τη δυνατότητα να προσομοιώσει εύκολα κάθε γεωμετρία πηγήςανιχνευτή-θωράκισης.

5.2.1 Προσδιορισμός του γεωμετρικού μοντέλου της γ-ανιχνευτικής διάταξης

Οι τεχνικές προσομοίωσης Monte Carlo, π.χ. με χρήση του κώδικα PENELOPE μπορούν να δώσουν αποτελέσματα για την απόδοση της προς μελέτη ανιχνευτικής διάταξης. Όμως, η χρήση των τεχνικών προσομοιώσεων δεν είναι πανάκεια, και καλό θα ήταν να γίνονται πάντα σε συνδυασμό με πείραμα. Ο κώδικας PENELOPE, όπως και όλοι ο κώδικες προσομοίωσης, χρησιμοποιούν ως βασικό δεδομένο εισόδου τη γεωμετρία της ανιχνευτικής διάταξης και της πηγής βαθμονόμησης. Η πληροφορία αυτή όσον αφορά στην ανιχνευτική διάταξη δίνεται από την εταιρία κατασκευής του ανιχνευτή. Είναι όμως δυνατόν η πληροφορία αυτή να μην είναι πλήρης, καθώς ενδέχεται ορισμένα μεγέθη να δίνονται κατ' εκτίμηση, κάποια άλλα λόγω της φύσης τους να έχουν προσδιοριστεί με μεγάλη αβεβαιότητα κ.ο.κ. Έχοντας ως βασική παραδοχή το γεγονός ότι ο κώδικας προσομοίωσης που χρησιμοποιείται είναι αξιόπιστος και ακριβής, είναι εύκολα κατανοητό το πόσο σημαντικό είναι η γεωμετρία που θα προσομοιωθεί να είναι γνωστή με τη μεγαλύτερη δυνατή ακρίβεια.

Η ορθή επιλογή της γεωμετρίας της πηγής και του ανιχνευτή (δηλαδή τελικά η δημιουργία του κατάλληλου αρχείου .geo) είναι ίσως το βασικότερο βήμα για μία ακριβή προσομοίωση (Vargas J., et al., 2006), καθώς η γεωμετρία είναι η κύρια αιτία εμφανισης πολύ σημαντικών αποκλίσεων, μεταξύ της πειραματικής τιμής της απόδοσης και της αντίστοιχης τιμής που προκύπτει από την προσομοίωση. Συνήθως, μέσω της προσομοίωσης οδηγούμαστε σε τιμές υψηλότερης απόδοσης από τις πραγματικές, κάτι που παρατηρήθηκε και στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. Ένας από τους λόγους αυτής της υπερεκτίμησης έχει να κάνει με την ελλιπή γνώση των γεωμετρικών χαρακτηριστικών του ανιχνευτή που παρέχονται από τον κατασκευαστή, συνήθως σε ένα σκαρίφημα, σαν αυτά που παρουσιάζονται στο Παράρτημα Γ στο τέλος της Δ.Δ. για τους ανιχνευτές που βαθμονομήθηκαν. Το γεγονός αυτό έχει απασχολήσει τη βιβλιογραφία (Rodenas, et al., 2007; Boson, et al., 2008) και αναφέρεται ότι μεγέθη όπως η διάμετρος του κρυστάλλου του ανιχνευτή, το πάχος του, αλλά και διάφορες άλλες διαστάσεις του, δεν έχουν την απαιτούμενη ακρίβεια. Ακόμα, προβλήματα στην προσομοίωση μπορούν να προκύψουν και από ελλιπή γνώση των ακριβών διαστάσεων της πηγής που χρησιμοποιείται, της πυκνότητας αλλά και πιθανής ανομοιογένειας της. Το πρόβλημα αυτό εντείνεται όταν χρησιμοποιούνται πηγές

βαθμονόμησης του ανιχνευτή οι οποίες είναι κατασκευασμένες στο εργαστήριο (όπως συνέβη και στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ.).

Όσον αφορά στο κομμάτι της διαστασιολόγησης της πειραματικής διάταξης, σημαντικό σφάλμα εισάγεται κατά τον σχεδιασμό των νεκρών ζωνών (dead layers) στον κρύσταλλο (Rodenas et al., 2003). Οι νεκρές ζώνες είναι τμήματα του κρυστάλλου γερμανίου, στα οποία, εάν υπάρξει αλληλεπίδραση της ακτινοβολίας δεν καταγράφεται σχετικό σήμα από την ανιχνευτική διάταξη. Η ύπαρξή των dead layers έχει να κάνει με τον σχηματισμό της ζώνης αντιστάθμισης (intrinsic region) που δημιουργείται στον ανιχνευτή κατά την αντίστροφη πόλωσή του και η οποία αποτελεί την ενεργό περιοχή του. Το πάχος τους εξαρτάται από τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά και τον τύπο του ανιχνευτή, το είδος και το βάθος της επαφής (P+ ή N+ conctact) και την υψηλή τάση πόλωσης του ανιχνευτή (High Voltage). Οι νεκρές ζώνες ενός ανιχνευτή – στο σχήμα 5.1 παρουσιάζονται οι νεκρές ζώνες ενός ομοαξονικού κρυστάλλου γερμανίου – μπορούν να δοθούν μόνο κατ'εκτίμηση από τον κατασκευαστή, ενώ επιπλέον δεν έχουν απαραίτητα το ίδιο πάχος σε όλη την επιφάνεια του ανιχνευτή. Ένα άλλο πρόβλημα είναι ότι οι διαστάσεις τους μπορεί να αυξάνονται με την πάροδο του χρόνου, ειδικά όταν οι κρύσταλλοι παραμένουν χωρίς ψύξη για μεγάλα χρονικά διαστήματα, ή υποβάλλονται συχνά σε θερμικούς κύκλους ψύξης-θέρμασνης (Laborie et al., 2000).



Σχήμα 5.1 Σκαρίφημα νεκρών ζωνών (dead layer) ομοαξονικού κρυστάλλου γερμανίου (Δ.Ε. Παπαδιονυσίου, 2015)

Αν αυτός ο παράγοντας δεν ληφθεί υπόψη, δηλαδή θεωρηθεί ότι όλος ο κρύσταλλος γερμανίου είναι ενεργός ανιχνευτής, το αποτέλεσμα είναι η υπερεκτίμηση της απόδοσης της ανιχνευτικής διάταξης, καθώς η ύπαρξη των νεκρών ζωνών οδηγεί στη μείωση του ενεργού όγκου του ανιχνευτή. Τέλος, σημαντικό πρόβλημα αποτελεί και η ανομοιομορφία που παρουσιάζει το ηλεκτρικό πεδίο στο εσωτερικό του κρυστάλλου του ανιχνευτή, με αποτέλεσμα ο χρόνος συλλογής των φορέων εντός του κρυστάλλου να αυξάνεται, κάτι που κάτω από ορισμένες συνθήκες έχει ως συνέπεια να μην καταγράφεται η αλληλεπίδραση στο φάσμα του ανιχνευτή (Bohund et al., 2006; Friedman et al., 2001). Το φαινόμενο αυτό η προσομοίωση δεν το λαμβάνει υπόψη, με αποτέλεσμα και πάλι την υπερεκτίμηση της απόδοσης.

Από τα παραπάνω γίνεται εμφανές ότι δεν αρκούν τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά τα οποία παρέχει ο κατασκευαστής, και είναι απαραίτητο, προκειμένου η προσμομοίωση να δώσει ακριβή αποτελέσματα, να χρησιμοποιηθούν ελαφρώς τροποποιημένες τιμές για ορισμένα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του. Για τον προσδιορισμό τους, μπορεί να χρησιμοποιηθεί ως αφετηρία το σκαρίφημα και το πιστοποιητικό του κατασκευαστή και να πραγματοποιούνται

διάφορες τροποποιήσεις της γεωμετρίας, κάνοντας σύγκριση με αντίστοιχα πειραματικά δεδομένα.

Το πιο βασικό κομμάτι της διαδικασίας προσδιορισμού των νέων αυτών διαστάσεων του ανιχνευτή, που θα δώσουν όσο γίνεται μία τιμή απόδοσης πιο κοντά στην πειραματική, είναι ο προσδιορισμός της νεκρής περιοχής (dead layer). Ο προσδιορισμός των διαστάσεων αλλά και της μορφής του dead layer είναι ένα πεδίο στο οποίο έχουν γίνει πολλές μελέτες. Ενδεικτικά αναφέρονται οι (Herold, et al., 1991; Kamboj, et al., 1996; Korun, et al., 1997; Clouvas, et al., 1998; Ashrafi, et al., 1999; Ewa, et al., 2001; Vidmar, et al., 2001; Hardy, et al., 2002 ; Karamanis, et al., 2002 ; Laborie, et al., 2002 ; Wang, et al., 2002 ; Helmer, et al., 2003 ; Rodenas, et al., 2003 ; Hurtado, et al., 2004 ; Sima, et al., 2004 ; Maleka, et al., 2005 ; Bochud, et al., 2006; Huy, et al., 2007; Peyres, et al., 2007; Agrafiotis et al., 2011). Ou διαστάσεις της νεκρής ζώνης υπόκεινται σε αυξομειώσεις εντός ενός ορισμένου εύρους, το οποίο προβλέπεται και στη βιβλιογραφία για διάφορους τύπους ανιχνευτή. Κρίνεται σκόπιμο στο σημείο αυτό να τονισθεί ότι, όταν προσπαθούμε να προσδιορίσουμε τα χαρακτηριστικά της γεωμετρίας πηγής-ανιχνευτή τα οποία θα ικανοποιούν τη συγκεκριμένη περίπτωση (διαστάσεις πηγής, διαστάσεις ανιχνευτή, σχετική μεταξύ τους απόσταση κλπ), στην πραγματικότητα προσπαθούμε να προσδιορίσουμε έναν κατάλληλο συνδυασμό διαστάσεων που θα έχουν ως συνέπεια τα αποτελέσματα της προσομοίωσης να προσεγγίζουν με όσο γίνεται μικρότερη απόκλιση τις πειραματικές τιμές. Είναι πολύ σημαντικό, οι ενέργειες των φωτονίων που θα προσομοιωθούν να είναι κατάλληλα επιλεγμένες και να καλύπτουν το εύρος λειτουργίας του ανιχνευτή, ώστε τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του ανιχνευτή στα οποία θα καταλήξει ο χρήστης να περιγράφουν με τον κλαύτερο δυνατό τρόπο συνολικά την λειτουργία του ανιχνευτή.

Σχετικές Διδακτορικές Διατριβές που έχουν εκπονηθεί από το Ε.Π.Τ.-Ε.Μ.Π. (Δ.Δ. Καρφόπουλου, 2010; Δ.Δ. Σάββα, 2017) αλλά και Διπλωματικές Εργασίες (Βασιλοπούλου, 2008; Παπαδιονυσίου, 2015) δείχνουν ότι, το να προσδιορίσει κανείς τον κατάλληλο συνδυασμό γεωμετρικών χαρακτηριστικών που θα δώσουν αποτελέσματα όσο γίνεται πιο κοντά στις πειραματικές τιμές δεν είναι εύκολο, και κυρίως, ότι ο συνδυασμός αυτός των γεωμετρικών χαρακτηριστικών δεν είναι και ο μοναδικός. Επίσης, ορισμένες φορές δεν είναι καν εφικτό το να προσδιορίσει ο χρήστης το κατάλληλο γεωμετρικό μοντέλο με την επιθυμητή ακρίβεια.

Η μεθοδολογία που ακολουθήθηκε στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. είναι αυτή που συστηματικά χρησιμοποιείται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ, η οποία έχει αναλυθεί εκτενώς από τον Agrafiotis et al., 2011. Με σημείο αφετηρίας τις αρχικές διαστάσεις που δίνει ο κατασκευαστής και μία αρχική υπόθεση για τις διαστάσεις των νεκρών ζωνών του (πάντα μέσα στο εύρος τιμών της βιβλιογραφίας, ή με βάση την εμπειρία από προσομοιώσεις σε αντίστοιχους ανιχνευτές) πραγματοποιείται μία πρώτη προσομοίωση για κατάλληλες ενέργειες οι οποίες καλύπτουν το ενεργειακό εύρος στο οποίο λειτουργεί ο ανιχνευτής. Οι τιμές της απόδοσης οι οποίες προκύπτουν από την προσομοίωση αυτή συγκρίνονται στη συνέχεια με τις αντίστοιχες πειραματικές τιμές. Ανάλογα με την απόκλιση των αποτελεσμάτων της προσομοίωσης από τις πειραματικές τιμές, οι διαστάσεις της νεκρής ζώνης τροποποιούνται και ακολουθεί νέος κύκλος προσομοιώσεων. Η παραπάνω διαδικασία θα επαναληφθεί όσο χρειάζεται προκειμένου να επιτευχθεί κατάλληλη σύγκλιση μεταξύ αποτελεσμάτων προσομοίωσης και πειραματικών. Στο τέλος της επαναληπτικής αυτής διαδικασίας θα έχει επιτευχθεί ένα ικανοποιητικό μοντέλο γεωμετρίας, το οποίο θα συγκλίνει με ακρίβεια στα πειραματικά αποτελέσματα (Vargas and Guera, 2006). Ως κριτήριο ολοκλήρωσης της διαδικασίας συνήθως γίνονται δεκτές αποκλείσεις της τάξης του 1-3% (Schlager, 2007) και σε ορισμένες περιπτώσεις της τάξης του 5% (Liu, et al., 2006). Στην εργασία αυτή το κριτήριο ολοκλήρωσης ορίστηκε το 1 – 3%.

5.3 Βαθμονόμηση της απόδοσης ανιχνευτών υπερκάθαρου γερμανίου με χρήση τεχνικών Monte Carlo και τον κώδικα PENELOPE

Στην παράγραφο που ακολουθεί παρουσιάζεται η διαδικασία βαθμονόμησης των πέντε ανιχνευτών υπερκάθαρου γερμανίου (δύο ανιχνευτές του ΕΠΤ-ΕΜΠ και τρεις του ΕΡΠ, εκ των οποίον ο ένας ήταν τύπου φρέατος, ενώ όλοι οι υπόλοιποι ομοαξονικοί).

Αρχικά, παρουσιάζεται η διαδικασία προσδιορισμού των γεωμετρικών χαρακτηριστικών του εκάστοτε ανιχνευτή που ακολουθήθηκε και αναλύονται οι όποιες δυσκολίες αντιμετωπίσθηκαν και οι αποφάσεις που λήφθηκαν σε κάθε περίπτωση για να δοθεί λύση. Στη συνέχεια, παρατίθενται οι καμπύλες βαθμονόμησης που προσδιορίζονται μέσω προσομοίωσης.

5.3.1 Βαθμονόμηση των ανιχνευτών HPGe του ΕΡΠ – «Δ»

5.3.1.1 Βαθμονόμηση του ανιχνευτή HPGe του ΕΡΠ – «Δ» με σχετική απόδοση 91.5 %

Για τη βαθμονόμηση του κρυστάλλου του ΕΡΠ με σχετική απόδοση 91.5% – στο εξής θα αναφέρεται ως HPGe(α) – χρειάστηκε αρχικά να προσδιοριστούν οι διαστάσεις του, οι οποίες δεν ήταν πλήριες από το πιστοποιητικό που τον συνόδευε. Για να γίνει αυτό ακολουθήθηκε η παρακάτω διαδικασία:

- Πραγματοποιήθηκε πειραματική βαθμονόμηση απόδοσης του ανιχνευτή με χρήση πηγών που εκπέμπουν φωτόνια για μία σειρά από ενέργειες που καλύπτουν το εύρος λειτουργίας του ανιχνευτή 0-2000MeV.
- Δημιουργήθηκε αρχείο εισόδου τύπου .geo του κώδικα PENELOPE 2011, το οποίο είχε ως γεωμετρικά χαρακτηριστικά αυτά τα οποία δίνονται από τα πιστοποιητικά του κατασκευαστή. Όσα από τα μεγέθη δεν προσδιορίζονταν στο σκαρίφημα του HPGe(α) εκτιμήθηκαν με βάση αντίστοιχες τιμές που δίνονται στην βιβλιογραφία για ανιχνευτές με αντίστοιχη σχετική απόδοση και ενεργό όγκο.
- Ακολούθησε η πραγματοποίηση των προσομοιώσεων του ανιχνευτή που προσδιορίστηκε στο αρχείο .geo για κάθε μία από τις ενέργειες που εκπέμπει η πηγή που χρησιμοποιήθηκε στο πείραμα.
- Τέλος, έγινε σύγκριση των αποτελεσμάτων της προσομοίωσης με αυτών του πειράματος με τη γνωστή πηγή και αξιολογήθηκε στατιστικά η διαφορά μεταξύ των τιμών της προσομοίωσης και του πειράματος
- Σε περίπτωση που οι διαφορές μεταξύ πειραματικών και τιμών προσομοίωσης διαφέρουν περισσότερο από 2-3% ακολούθησε κατάλληλη τροποποίηση των διαστάσεων του ανιχνευτή προκειμένου να προσεγγίζονται καλύτερα τα πειραματικά αποτελέσματα και η προσομοιώσεις επαναλήφθηκαν.

Έτσι, μετά από κάθε επανάληψη προκύπτει μια νέα ομάδα τιμών για τις άγνωστες διαστάσεις, η οποία ελέγχεται με τον ίδιο τρόπο έως ότου δημιουργηθεί ένα γεωμετρικό μοντέλο που να καλύπτει τις προδιαγραφές που έχουν τεθεί και να προσεγγίζει με ακρίβεια τα αποτελέσματα των πειραμάτων.

Το μοντέλο αυτό που έχει τελικά προκύψει από την επαναληπτική διαδικασία δεν μπορεί, σε καμία περίπτωση να θεωρηθεί διαστατικά ακριβές αντίγραφο του ανιχνευτή. Δηλαδή, οι διαστάσεις που προέκυψαν με αυτόν τον τρόπο δεν είναι απαραίτητα οι πραγματικές διαστάσεις του ανιχνευτή αλλά μια ικανοποιητική προσέγγιση. Αυτό συμβαίνει κυρίως γιατί προσδιορίζοντας με αυτή τη μεθοδολογία τις διαστάσεις του ανιχνευτή μπορούμε να λάβουμε υπόψη φαινόμενα που δεν είναι εφικτό να ενταχθούν στους υπολογισμούς με άλλο τρόπο, όπως η ανομοιογένεια του ανιχνευτή και των dead layers, το πάχος των μεταλλικών επαφών κλπ.

5.3.1.1.1 Αρχικές διαστάσεις του ανιχνευτή HPGe(α)

Πρόκειται για έναν ομοαξονικό (coaxial) ανιχνευτή υπερκάθαρου γερμανίου (HPGe) με σχετική απόδοση 91.5% της εταιρίας Canberra Industries (CI). Τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του όπως αναφέρονται στο πιστοποιητικό που τον συνοδεύει παρατίθενται στον πίνακα που ακολουθεί (το πιστοποιητικό παρατίθεται στο παράρτημα Γ):

Απόδοση ανιχνευτή	91.5 %
Γεωμετρία ανιχνευτή	ομοαξονικός
Διάμετρος ανιχνευτή	80 mm
Μήκος ανιχνευτή	72 mm
Απόσταση από το παράθυρο	5 mm
Μήκος κυλινδρικής οπής (finger length)	61 mm
Διάμετρος κυλινδρικής οπής (finger diameter)	12 mm
Απόσταση κρυστάλλου από περίβλημα	4.5 mm
Πάχος παραθύρου ανιχνευτή	1.5 mm
Πάχος περιβλήματος	1.5 mm

<u>ΗΡGe(α) του ΕΡΠ</u>

Πίνακας 5.1: Χαρακτηριστικά ανιχνευτή Γερμανίου σύμφωνα με το πιστοποιητικό του

Πέρα από τα βασικά χαρακτηριστικά ενός ανιχνευτή γερμανίου, για μία ακριβή προσομοίωση, σημαντικό ρόλο διαδραματίζει και ο ορισμός της θωράκισης του. Συνήθως, οι ανιχνευτές γερμανίου βρίσκονται εντός μίας θωράκισης η οποία έχει ως στόχο να απομονώνει τον ανιχνευτή από το περιβάλλον μειώνοντας το υπόστρωμα που οφείλεται στην κοσμική ακτινοβολία, οικοδομικά υλικά και στο περιβάλλον του ανιχνευτή γενικότερα.

Υπάρχουν πολλοί και διαφορετικοί τύποι θωράκισης. Τα υλικά κατασκευής της θωράκισης ενός ανιχνευτή υπερκάθαρου γερμανίου είναι προσεκτικά επιλεγμένα. Πρόκειται για υλικά τα οποία έχουν την ικανότητα να εξασθενούν τα φωτόνια τα οποία δύνανται να αλληλεπιδράσουν με τον ανιχνευτή, δηλαδή υλικά με υψηλό ατομικό αριθμό. Συνήθως οι θωρακίσεις αποτελούνται από 3 στρώματα μετάλλου. Ξεκινώντας από το εσωτερικό της θωράκισης, πηγαίνοντας προοδευτικά προς το εξωτερικό, υπάρχει ένα λεπτό στρώμα χαλκού, το οποίο ακολουθείται από ένα λεπτό στρώμα κασσίτερου. Τα στρώματα αυτά είναι για να θωρακίζουν τον ανιχνευτή από τις χαρακτηριστικές ακτίνες-Χ που παράγονται από την αλληλεπίδραση της ακτινοβολίας με το τρίτο και τελευταίο στρώμα της θωράκισης από μόλυβδο ή ατσάλι πάχους της τάξης αρκετών εκατοστών. Οι θωρακίσεις έχουν στην κάτω τους πλευρά μία οπή, η οποία επιτρέπει τη διέλευση του κρυοστάτη του ανιχνευτή και τη συνδέσή του με το σύστημα ψύξης του (στην συγκεκριμένη περίπτωση πρόκειται για δοχείο υγρού αζώτου).

Στην περίπτωση του συγκεκριμένου ανιχνευτή έπρεπε να προσομοιθεί μία κυλινδρική θωράκιση με τρία στρώματα όπως περιγράφεται παραπάνω.

Ως παράμετροι οι οποίες θα τροποποιούνται στο νέο γεωμετρικό μοντέλο μετά τη σύγκριση των αποτελεσμάτων της προσομοίωσης με τα πειραματικά, επελέγησαν εκείνες για τις οποίες υπήρχε μικρότερη βεβαιότητα, όσον αφορά τις πραγματικές διαστάσεις τους, αλλά και εκείνες που κρίθηκε ότι έχουν τη μεγαλύτερη επίδραση στην ανιχνευτική ικανότητα της διάταξης. Με αυτό το σκεπτικό επιλέχθηκαν:

- το πάχος του εμπρόσθιου (front) dead layer (θεωρείται ότι έχει ομοιόμορφο πάχος σε όλη την έκτασή του)
- το πάχος του περιφερειακού (side) dead layer (θεωρείται ότι έχει ομοιόμορφο πάχος σε όλη την έκτασή του)
- το ύψος της κυλινδρικής οπής του ανιχνευτή (finger)
- η διάμετρος της οπής (finger)

Από τον πίνακα 5.1 διαπιστώνεται ότι ο κατασκευαστής δεν δίνει πληροφορίες σχετικά με τις διαστάσεις του πάχους του dead layer αλλά και τη μορφή του. Οι τιμές εκκίνησης που επιλέχθηκαν για το dead layer ήταν για το πρόσθιο στα 0.6 mm και για το περιφερειακό στα 0.7 mm. Οι τιμές αυτές επιλέχθηκαν με βάση την εκτίμηση που δίνεται στα σχετικά έγγραφα που συνοδεύουν τον ανιχνευτή για το πάχος του εξωτερικού ηλεκτροδίου που εκτιμάται να είναι της τάξης των 0.9 mm και αντίστοιχα το πάχος του εσωτερικού να κυμαίνεται περί τα 0.3μm. Οπότε επιλέχθηκαν τιμές κοντά σε αυτή τη διάσταση, προκειμένου να γίνει μια πρώτη διερευνητική προσέγγιση της απόδοσης με την διεξαγωγή των αντίστοιχων προσομοιώσεων.

5.3.1.1.2 Εκτίμηση του γεωμετρικού μοντέλου με πηγή όγκου

Για την εκτίμηση του γεωμετρικού μοντέλου του ανιχνευτή HPGe(α), χρησιμοποιήθηκε πηγή όγκου η οποία περιείχε τα ισότοπα: ²⁴¹Am, ¹⁰⁹Cd, ¹³⁰Ce, ⁵⁷Co, ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs, ¹¹³Sn, ⁸⁵Sr, ⁸⁸Y. Τα ισότοπα αυτά καλύπτουν το ενεργειακό εύρος στο οποίο λειτουργεί ο ανιχνευτής. Το υλικό της πηγής είναι ομοιόμορφα κατανεμημένο (ομοιογένεια καλύτερη από 1%, σύμφωνα με το πιστοποιητικό της πηγής) σε πυριτιούχα ρητίνη με αναλογία μάζας C 32.4%, H₂ 8.16%, O₂ 21.6%, Si 37.9%. Η πηγή σύμφωνα με το πιστοποιητικό της έχει μάζα 56.84g, πυκνότητά της 0.98 ± 0.01 g/cm³ και όγκο 58.00 ± 0.6 cm³ και είναι τοποθετημένη σε δοχείο από ουρία (παρουσιάζει χαμηλή εξασθένιση των φωτονίων χαμηλών ενεργειών, κυρίως για ενέργειες μεγαλύτερες των 50 keV), με διαστάσεις όπως φαίνεται στο Σχήμα 5.2.



Σχήμα 5.2 Σκαρίφημα γεωμετρίας πηγής με διαστάσεις. Το σκαρίφημα είναι από το πρόγραμμα απεικόνισης του κώδικα Monte Carlo Penelope, GVIEW2D. Η επιφάνεια με το λαδί χρώμα αντιστοιχεί στο υλικό της πηγής

Η γεωμετρία της πηγής αυτής είναι παραπλήσια στις γεωμετρίες που χρησιμοποιούνται για την μέτρηση περιβαλλοντικών δειγμάτων στο ΕΡΠ και για το λόγο αυτό κρίθηκε απαραίτητο ο προσδιορισμός του γεωμετρικού μοντέλου του ανιχνευτή να γίνει με πηγή τέτοιας

γεωμετρίας. Κατά την εκτέλεση των πειραμάτων η πηγή τοποθετήθηκε κεντρικά πάνω στον ανιχνευτή.

Στο σημείο αυτό θα πρέπει να αναφερθεί ότι οι προσομοιώσεις για τον προσδιορισμό του γεωμετρικού μοντέλου του HPGe(α) δεν έγιναν αρχικά για όλα τα ραδιοϊσότοπα τα οποία υπήρχαν στην πηγή βαθμονόμησης. Συγκεκριμένα, δεν προσομοιώθηκαν οι ακτινοβολίες που εκπέμπουν τα ισότοπα ⁸⁸Y και ⁶⁰Co λόγω των φαινομένων πραγματικής σύμπτωσης που παρουσιάζονται. Αρχικά, οι προσομοιώσεις έγιναν για τα υπόλοιπα ραδιενεργά ισότοπα της πηγής και όταν πλέον υιοθετήθηκε το γεωμετρικό μοντέλο, τότε πραγματοποιήθηκαν προσομοιώσεις και για τα ισότοπα ⁸⁸Y και ⁶⁰Co και εξετάστηκε το κατά πόσον αυτά, μετά τη διόρθωση της απόδοσης λόγω του φαινομένου της πραγματικής σύμπτωσης, μπορούν ικανοποιητικά να ενταχθούν στην καμπύλη απόδοσης. Η μεθοδολογία εκτίμησης των συντελεστών διόρθωσης για το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης, παρουσίαζεται εκτενώς σε επόμενη παράγραφο του παρόντος κεφαλαίου.

Τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του ανιχνευτή ανιχνευτή HPGe(α) (γεωμετρικό μοντέλο) τα οποία προσδιορίσθηκαν τελικά με την επαναληπτική διαδικασία που περιγράφηκε προηγουμένως παρουσιάζονται στον πίνακα 5.2.

Απόδοση ανιχνευτή	91.5 %
Γεωμετρία ανιχνευτή	ομοαξονικός
Διάμετρος ανιχνευτή	80 mm
Μήκος ανιχνευτή	72 mm
Απόσταση από το παράθυρο	5 mm
Μήκος κυλινδρικής οπής (finger length)	61 mm
Διάμετρος κυλινδρικής οπής (finger diameter)	12 mm
Απόσταση κρυστάλλου από περίβλημα	4.5 mm
Πάχος παραθύρου ανιχνευτή	1.5 mm
Πάχος περιβλήματος	1.5 mm
Εμπρόσθιο dead layer	1.3 mm
Περιφερειακό dead layer	0.05 mm

<u>Γεωμετρικό μοντέλο του ανιχνευτή HPGe(α) του ΕΡΠ</u>

Πίνακας 5.2: Γεωμετρικά χαρακτηριστικά του ανιχνευτή HPGe(α). Με έντονα γράμματα είναι τα στοιχεία τα οποία προσδιορίσθηκαν μέσω της επαναληπτικής διαδικασίας.

Στο σχήμα 5.3 που ακολουθεί, παρουσιάζεται η ανιχνευτική διάταξη όπως ορίστηκε από το τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του πίνακα 5.2., όπως κατασκευάστκε για την προσομοίωση.

Στον πίνακα 5.3 παρουσιάζονται για κάθε ενέργεια φωτονίου, οι πειραματικές τιμές της απόδοσης, οι τιμές της απόδοσης που προκύπτουν από τις προσομοιώσεις με τις αβεβαιότητές τους (σε επίπεδο 1σ), η μεταξύ τους απόκλιση και οι τιμές της μεταβλητής U (U-test). Οι τιμές δεν αναγράφονται με το κατάλληλο πλήθος σημαντικών ψηφίων, ώστε να είναι ευχερέστερη η σύγκρισή τους. Οι τιμές του πίνακα που εμφανίζονται σε γκρι υπόβαθρο αντιστοιχούν στα ισότοπα ⁸⁸Υ και ⁶⁰Co τα οποία παρουσιάζουν προβλήματα λόγω των φαινομένων πραγματικής σύμπτωσης.



Σχήμα 5.3 Γεωμετρία ανιχνευτή HPGe (α) μαζί με την πηγή βαθμονόμησής του. Το σχήμα είναι από το πρόγραμμα απεικόνισης GVIEW2D. Η απεικόνιση γίνεται κατά σώμα, ώστε να διακρίνονται τα dead layers.

Ισότοπο	E [keV]	eff πειραματική	σ %(1σ)	simulation efficiency	σ %(1σ)	deviation (%)	U - test
²⁴³ Am	59.54	0.0224	1.1014	0.0251	0.0326	-12.0982	0.2459
¹⁰⁹ Cd	88.03	0.0827	1.5004	0.0856	0.0179	-3.4579	0.1906
⁵⁷ Co	122.06	0.1174	1.1003	0.1175	0.0214	-0.0681	0.0073
⁵⁷ Co	136.47	0.1208	1.1054	0.1211	0.0278	-0.2484	0.0271
¹³⁹ Ce	165.86	0.1217	1.2002	0.1203	0.0386	1.1260	0.1141
¹¹³ Sn	255.13	0.1001	2.3050	0.1007	0.0756	-0.6495	0.0282
¹¹³ Sn	391.70	0.0776	2.3001	0.0771	0.1234	0.6701	0.0226
⁸⁵ Sr	514.00	0.0691	1.5000	0.0648	0.1426	6.2536	0.2867
¹³⁷ Cs	661.66	0.0557	1.3002	0.0554	0.2064	0.5565	0.0235
⁸⁸ Y	898.04	0.0397	1.2001	0.0460	0.2337	-15.7272	0.5112
⁶⁰ Co	1173.23	0.0322	1.1003	0.0390	0.2617	-21.0739	0.6004
⁶⁰ Co	1332.49	0.0292	1.1003	0.0363	0.3479	-24.4513	0.6179
⁸⁸ Y	1836.06	0.0238	1.2001	0.0290	0.3991	-21.9605	0.4127

Πίνακας 5.3: Σύγκριση πειραματικών τιμών απόδοσης του ανιχνευτή HPGe (α) και τιμών απόδοσης μέσω προσομοίωσης. Στις πειραματικές τιμές δεν έχει γίνει διόρθωση λόγω πραγματικής σύμπτωσης.

5.3.1.1.3 Καμπύλες βαθμονόμησης απόδοσης του ανιχνευτή

Από τα αποτελέσματα του πίνακα 5.3 μπορεί να κατασκευασθεί η καμπύλη βαθμονόμησης απόδοσης φωτοκορυφής για τον ανιχνευτή που καλύπτει όλο το ενεργειακό εύρος. Η σχέση που χρησιμοποιήθηκε στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. για τη βαθμονόμηση απόδοσης φωτοκορυφής για κάθε γεωμετρία είναι πολυώνυμο της μορφής:

$$\ln(\varepsilon) = a_0 + a_1 (lnE_{\gamma})^1 + a_2 (lnE_{\gamma})^2 + a_3 (lnE_{\gamma})^3 + \cdots$$
 (\$\chi_{\chi_{\sigma}}\$) (\$\chi_{\sigma}\$) (\$\chi_{\s

όπου οι συντελεστές α_i της παραπάνω εξίσωσης εκτιμούνται με εφαρμογή της μεθόδου ελαχίστων τετραγώνων (Montgomery D.C. and Runger G.C., 2003).

Εκτός από τη βαθμονόμηση της ανιχνευτικής διάταξης ως προς την απόδοση φωτοκορυφής, συχνά χρήσιμη είναι η γνώση και της καμπύλης ολικής απόδοσης, η οποία δίνεται συνήθως ως λόγος απόδοσης φωτοκορυφής προς ολική (peak-to-total ratio, ptt) ή το αντίστροφο (total-to-peak ratio, ttp). Η καμπύλη αυτή μπορεί να χαραχθεί από τα αποτελέσματα των προσομοίωσεων, καθώς ο πειραματικός προσδιορισμός της ολικής απόδοσης με χρήση πολυενεργειακών πηγών δεν είναι εύκολος. Όσον αφορά στην εξάρτηση του λόγου ttp (total-to-peak ratio) από την ενέργεια, αυτή προσδιορίζεται για όλο το ενεργειακό φάσμα (0-2000 keV) από γραμμική συνάρτηση μεταξύ των λογαρίθμων της ενέργειας και του λόγου ttp, της μορφής :

$$\ln(ttp) = a_0 + a_1(lnE_{\gamma})^1 + a_2(lnE_{\gamma})^2 + a_3(lnE_{\gamma})^3 + \cdots$$
 (Σχέση 5.2)

Ανάλογης μορφής συνάρτηση μπορεί να προκύψει και για το λόγο ptt (peak-to-total ratio).

Για την εύρεση της βέλτιστης συνάρτησης που περιγράφει την καμπύλη βαθμονόμησης απόδοσης φωτοκορυφής του ανιχνευτή χρησιμοποιήθηκε το πρόγραμμα ORIGIN. Ο βαθμός του πολυωνύμου που επιλέχθηκε, είναι ο μικρότερος δυνατός για τον οποίο η καμπύλη προσεγγίζει με βέλτιστο τρόπο τα σημεία. Στο σχήμα που ακολουθεί, παρουσιάζεται η καμπύλη απόδοσης του ανιχνευτή HPGE(α) στην οποία φαίνονται μαζί τα πειραματικά σημεία αλλά και αυτά που προέκυψαν μετά τις προσομοιώσεις.



Σχήμα 5.4 Τιμές απόδοσης του ανιχνευτή HPGe(α). Τα σημεία με κόκκινο χρώμα, αντιστοιχούν σε φωτόνια τα οποία αντιμετωπίζουν προβλήματα πραγματικής σύμπτωσης

Εξετάζοντας το παραπάνω, παρατηρείται ότι οι τιμές των αποδόσεων όπως προέκυψαν με πειραματική βαθμονόμηση και βαθμονόμηση με χρήση τεχνικών Monte Carlo και τον κώδικα PENELOPE 2011 είναι πρακτικά οι ίδιες (δηλαδή δεν διαφέρουν στατιστικά σημαντικά). Αυτό όμως δεν ισχύει για τις τιμές της απόδοσης που αφορούν στα ισότοπα ⁶⁰Co και ⁸⁸Y, όπου παρατηρείται μία συστηματική και έντονη διαφοροποίηση μεταξύ των δύο διαφορετικών σετ τιμών για τις ενέργειες αυτές. Η απόκλισή τους κυμαίνεται από 15% ως σχεδόν 25%. Συγκεκριμένα, παρατηρείται ότι οι πειραματικές αποδόσεις είναι σταθερά υποεκτιμημένες. Βέβαια παρατηρώντας τις τιμές της μεταβλητής U του στατιστικού ελέγχου, διαπιστώνεται ότι παρά τις αποκλίσεις, οι τιμές της απόδοσης (πειραματικές και υπολογιστικές) δε διαφέρουν στατιστικά σημαντικά και αιτία γι' αυτό είναι η μεγάλη τιμή της αβεβαιότητας (τυχαίο σφάλμα της μέτρησης).

Η πραγματική σύμπτωση εντείνεται όσο αυξάνεται η σχετική απόδοση του ανιχνευτή, αλλά και για μετρήσεις που γίνονται σε ανιχνευτή τύπου φρέατος (Well-type detector) (Reyss et al., 1995; Sima and Arnold, 1996; Laborie et al., 2000,2002; Gurriaran et al., 2004). Το φαινόμενο αυτό μπορεί να εξαλείφει με χρήση συντελεστών που υπολογίζονται συνήθως από υπολογιστικά πακέτα. Η διαδικασία για την ανεύρεση συντελεστών διόρθωσης πραγματικής σύμπτωσης παρουσιάζεται στην παράγραφο που ακολουθεί. Γιά την εκτίμηση αυτών των συντελεστών διόρθωσης είναι απαραίτητη η γνώση της ολικής απόδοσης του ανιχνευτή. Στη συνέχεια της παραγράφου παρουσιάζεται η διαδικασία εύρεσης της ολικής απόδοσης και του λόγου total-to-peak ratio, ttp του ανιχνευτή HPGe(a).

Στον πίνακα 5.4 που ακολουθεί συνοψίζονται όλες οι τιμές της απόδοσης και του λόγου total-to-peak με τις αβεβαιότητές τους σε επίπεδο 1σ. Σημειώνεται ότι οι τιμές δεν δίνονται με το σωστό πλήθος σημαντικών ψηφίων για λόγους επαλλήθευσης των αποτελεσμάτων, ενώ στο σχήμα 5.5 παρουσιάζεται η καμπύλη ολικής απόδοσης του ανιχνευτή HPGe (α).

Nuclide	E [keV]	eff πειραματική	σ %(1σ)	eff προσομοίωσης (peak)	σ %(1σ)	ολική (total) απόδοση	σ %(1σ)	total/peak	σ %(1σ)
²⁴¹ Am	59.54	0.02240	1.1014	0.02511	0.0326	0.03240	0.0288	1.29037	0.0435
¹⁰⁹ Cd	88.03	0.08271	1.5004	0.08557	0.0179	0.11752	0.0155	1.37339	0.0237
57Co	122.06	0.11739	1.1003	0.11747	0.0214	0.17282	0.0180	1.47117	0.0280
57Co	136.47	0.12076	1.1054	0.12106	0.0278	0.18345	0.0231	1.51534	0.0362
¹³⁹ Ce	165.86	0.12167	1.2002	0.12030	0.0386	0.19418	0.0312	1.61412	0.0496
¹¹³ Sn	255.13	0.10007	2.3050	0.10072	0.0756	0.19573	0.0557	1.94327	0.0939
¹¹³ Sn	391.70	0.07760	2.3001	0.07708	0.1234	0.18666	0.0812	2.42173	0.1478
⁸⁵ Sr	514.00	0.06908	1.5000	0.06476	0.142599	0.17954	0.0875	2.77258	0.1673
¹³⁷ Cs	661.66	0.05571	1.3002	0.05540	0.2064	0.17228	0.1193	3.10995	0.2384
⁸⁸ Y	898.04	0.03974	1.2001	0.04599	0.2337	0.16238	0.1265	3.53079	0.2658
⁶⁰ Co	1173.23	0.03222	1.1003	0.03901	0.2617	0.15303	0.1340	3.92307	0.2940
⁶⁰ Co	1332.49	0.029157	1.1003	0.03629	0.3479	0.14906	0.1740	4.10722	0.3890
⁸⁸ Y	1836.06	0.023772	1.2001	0.02899	0.3991	0.13910	0.1844	4.79757	0.4397

Πίνακας 5.4: Τιμές απόδοσης του ανιχνευτή HPGe (α).Οι γραμμές με γκρι υπόβαθρο, αντιστοιχούν στα ισότοπα που αντιμετωπίζουν προβλήματα πραγματικής σύμπτωσης



Σχήμα 5.5 Ολική απόδοση του ανιχνευτή HPGe(a) που υπολογίσθηκε μέσω προσομοίωσης



Στα σχήματα 5.6 και 5.7 παρατίθενται οι καμπύλες ttp=f(E) και eff=f(E)

Σχήμα 5.6 Καμπύλη λόγου total-to-peak efficiency για τον ανιχνευτή HPGe (α)

Πρέπει στο σημείο αυτό να επισημανθεί ότι, οι καμπύλες βαθμονόμησης απόδοσης που παρουσιάζονται στα πλαίσια της Δ.Δ. και οι οποίες έχουν προκύψει μέσω προσομοίωσης μπορούν να χρησιμοποιηθούν μόνον για τον προσδιορισμό της απόδοσης φωτοκορυφής για φωτόνια τα οποία δεν εκπέμπονται σε σειρά (cascade). Για την περίπτωση φωτονίων που εκπέμπονται σε σειρά οι αποδόσεις αυτές θα πρέπει να διορθωθούν κατάλληλα λόγω πραγματικής σύμπτωσης, μέσω της μεθοδολογίας που παρουσιάζεται σε επόμενες παραγράφους της παρούσας Δ.Δ., ιδιαίτερα στις περιπτώσεις ανιχνευτών υψηλής απόδοσης και γεωμετριών που είναι πολύ κοντά στον ανιχνευτή (π.χ. φίλτρα αέρα).





5.3.1.1.4 Συντελεστές διόρθωσης για το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης

Κατά την γ-φασματοσκοπική ανάλυση, πολλές φορές είναι απαραίτητος ο ποσοτικός προσδιορισμός ισοτόπων τα οποία εκπέμπουν διαδοχικά (σε cascade) περισσότερα από ένα φωτόνια. Παράδειγμα τέτοιων ισοτόπων είναι και το ⁸⁸Υ και το ⁶⁰Co τα οποία συχνά περιέχονται σε πηγές βαθμονόμησης. Τα ισότοπα αυτά εκπέμπουν διαδοχικά από δύο φωτόνια σε διαφορετικές ενέργειες αλλά με πολύ μεγάλα ποσοστά εκπομπής, συγκεκριμένα:

- το ⁸⁸Υ εκπέμπει ένα φωτόνιο στα 808.04 keV με πιθανότητα εκπομπής 93.7% και άλλο ένα στα 1836.06 keV με πιθανότητα εκπομπής 99.2%, και
- το ⁶⁰Co εκπέμπει ένα φωτόνιο στα 1173.23 keV με πιθανότητα εκπομπής 99.85% και άλλο ένα στα 1332.49 keV με πιθανότητα εκπομπής 99.98%).

Το πολύ υψηλό ποσοστό εκπομπής των φωτονίων, σε συνδυασμό με τον μικρό χρόνο ημιζωής των ενεργειακών τους σταθμών, ενδέχεται να οδηγήσει στην ταυτόχρονη αλληλεπίδραση με τον ανιχνυετή δύο φωτονίων από τη διάσπαση του ίδιου πυρήνα. Το φαινόμενο αυτό ονομάζεται πραγματική σύμπτωση (true coincidence), επηρεάζει τη μέτρηση ισοτόπων τα οποία εκπέμπουν φωτόνια σε σειρά και αποτελεί σημαντική πηγή συστηματικού σφάλματος κατά τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση (De Felice et al., 2000, De Felice et al., 1992; Dean et al., 1997). Για την αντιμετώπισή του έχουν αναπτυχθεί διάφορες μέθοδοι. Στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. για την αντιμετώπιση του προβλήματος χρησιμοποιήθηκε το πρόγραμμα TrueCoinc (διανέμεται ελεύθερα από τον Διεθνή Οργανισμό Ατομικής Ενέργειας – Δ.Ο.Α.Ε.) και το πρόγραμμα EFFTRAN για τη συγκριτική αξιολόγηση των αποτελεσμάτων.

Στο Παράρτημα Δ περιγράφεται με λεπτομέρεια το φαινόμενο της πραγματικής σύμπωσης και δίνονται στοιχεία για τα δύο πρόγράμματα που χρησιμοποιήθηκαν για την αντιμετώπισή του. Στη συνέχεια της παραγράφου παρατίθενται μόνο οι τιμές των συντελεστών διόρθωσης που έδωσαν τα δύο προγράμματα.

5.3.1.1.5 Υπολογισμός συντελεστών διόρθωσης για το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης

Στο πρόβλημα του υπολογισμού των συντελεστών διόρθωσης για το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης, υπάρχουν πολλές μεθοδολογίες, οι οποίες θα μπορούσαν να διακριθούν στις εξής κατηγορίες:

- Θεωρητικές
- Εμπειρικές
- Πειραματικές
- Μέθοδοι με χρήση κωδίκων προσομοίωσης

Στη συγκεκριμένη Δ.Δ. οι συντελεστές διόρθωσης για το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης υπολογίστηκαν μέσω δύο υπολογιστικών πακέτων, το TrueCoinc και το EFFTRAN. Πληροφορίες για τα δύο αυτά προγράμματα, καθώς και περιγραφή της διαδικασίας που ακολουθήθηκε παρουσιάζονται στο Παράρτημα Δ.

<u>Διορθώσεις με το πρόγραμμα TrueCoinc</u>

Για την περίπτωση των ισοτόπων που εξετάστηκαν προκύπτουν οι πίνακες αποτελεσμάτων του προγράμματος TrueCoinc που παρουσιάζονται στα σχήματα 5.8 και 5.9 :

Total e Full en Parent	fficiency: ergy peak (radioactive	efficiency:	90 90)%HPGe!)%HPGel	90%dem Dem L balf-life					
	n	, isotope, e	iccay ii	iouc and	i nan me					
U	Co	All dec	ay							
No	E[keV]	Rel.Int	err[%]	TrueCc	Eff	TotEff	TrueCl	TrueCg	Parent	lsotope
1	0.678	4.10E-2	25.9	1.000	0.00	0.00	1.000	1.000	Co X	IT 10.5 D
2	0.693	2.61E-2	25.1	1.000	0.00	0.00	1.000	1.000	Co X	IT 10.5 D
3	0.776	0.39	24.8	1.000	0.00	0.00	1.000	1.000	Co X	IT 10.5 D
4	0.776	4.29E-2	24.8	1.000	0.00	0.00	1.000	1.000	CnX	IT 10.5 D
5	0.779	2.10E-3	27.1	1.000	0.00	0.00	1.000	1.000	CoX	IT 10.5 D
6	0.791	0.28	25.6	1.000	0.00	0.00	1.000	1.000	Co X	IT 10.5 D
7	0.866	2.35E-2	28.5	1.000	0.00	0.00	1.000	1.000	CoX	IT 10.5 D
8	0.866	1.54E-2	32.1	1.000	0.00	0.00	1.000	1.000	CoX	IT 10.5 D
9	6.915	9.63	4.4	1.000	0.00	0.00	1.000	1.000	CoX	IT 10.5 D
10	6.930	19.01	4.5	1.000	0.00	0.00	1.000	1.000	CoX	IT 10.5 D
11	7.649	2.27	4.5	1.000	0.00	0.00	1.000	1.000	CoX	IT 10.5 D
12	7.649	1.17	4.4	1.000	0.00	0.00	1.000	1.000	Co X	IT 10.5 D
13	7.706	1.61E-3	5.8	1.000	0.00	0.00	1.000	1.000	Co X	IT 10.5 D
14	58.600	2.04	1.4	1.000	1.56	-233.	1.000	1.000	60Co IT	10.5 D a
15	346.9	7.60E-3	6.5	9.196E	+0.63	-346.	9.196E+	41.000	60Co B-	5.27 Y a
16	346.9	7.60E-3	6.5	9.196E	+0.63	-346.	9.196E+	41.000	60Co B-	5.27 Y a
17	826.2	7.68E-3	12.5	313.2	0.30	-333.	313.2	1.000	60Co B-	10.5 M g
18	826.2	7.60E-3	10.5	8.438E	+0.30	-333.	8.438E+	41.000	60Co B-	5.27 Y q
19	826.2	7.60E-3	10.5	2.813E	+0.30	-333.	2.813E+	41.000	60Co B-	5.27 Y g
20	1173.2	99.90	2.0E-	2 31 3.2	0.20	-319.	313.2	1.000	60Co B-	5.27 Y g
21	1173.2	100.00	7.0E-	4313.2	0.20	-319.	313.2	1.000	60Co B-	5.27 Y a
22	1332.5	0.24	12.5	1.730	0.17	-312.	1.730	1.000	60Co B-	10.5 M a
23	1332.5	100.00	1.0E-	3 327.1	0.17	-312.	327.1	1.000	60Co B-	5.27 Y g
24	1332.5	100.00	4.0E-	4327.1	0.17	-312.	327.1	1.000	60Co B-	5.27 Y a
25	2158.8	7.20E-4	12.5	1.000	8.92E-2	-285.	1.000	1.000	60Co B-	10.5 M a
26	2158.8	1.11E-3	16.2	269.4	8.92E-2	-285.	269.4	1.000	60Co B-	5.27 Y a
27	2158.8	1.11E-3	16.2	9.820	8.92E-2	-285.	9.820	1.000	60Co B-	5.27 Y a
28	2505.0	2.00E-6	20.0	1.000	6.80E-2	-275.	1.000	1.000	60Co B-	5.27 Y a
29	2505.0	2.00E-6	20.0	1.000	6.80E-2	-275.	1.000	1.000	60Co B-	5.27 Y a

Σχήμα 5.8 Αποτελέσματα εξόδου μετά από τον κώδικα TrueCoinc για το ισότοπο 60Co

Total e Full en Parent	fficiency: ergy peak radioactive	efficiency: e isotope, a	9(9(Jecay n)%HPGe)&HPGeI node and	Dem 1 half-life					
8	⁸ Y	All de	cay							
No	E[keV]	Rel.Int	err[%]	TrueCc	Eff	TotEff	TrueCl	TrueCg	Parent	Isotope
1	1.582	6.62E-2	21.8	327.5	0.00	0.00	327.5	1.000	Sr X	EC 107 D
2	1.649	3.78E-2	25.1	326.5	0.00	0.00	326.5	1.000	Sr X	EC 107 D
3	1.805	0.15	19.0	327.5	0.00	0.00	327.5	1.000	Sr X	EC 107 D
4	1.806	1.34	21.7	327.4	0.00	0.00	327.4	1.000	Sr X	EC 107 D
5	1.872	0.76	24.6	326.7	0.00	0.00	326.7	1.000	Sr X	EC 107 D
6	1.902	7.58E-3	20.3	327.5	0.00	0.00	327.5	1.000	Sr X	EC 107 D
7	1.936	3.78E-2	29.8	358.5	0.00	0.00	358.5	1.000	Sr X	EC 107 D
8	1.947	5.49E-2	31.0	358.4	0.00	0.00	358.4	1.000	Sr X	EC 107 D
9	2.196	4.63E-3	30.7	358.4	0.00	0.00	358.4	1.000	Sr X	EC 107 D
10	2.196	1.04E-2	30.8	358.2	0.00	0.00	358.2	1.000	Sr X	EC 107 D
11	14.098	17.64	3.4	320.2	0.00	0.00	320.2	1.000	Sr X	EC 107 D
12	14.165	33.99	3.5	320.2	0.00	0.00	320.2	1.000	Sr X	EC 107 D
13	15.825	2.52	3.4	320.2	0.00	0.00	320.2	1.000	Sr X	EC 107 D
14	15.836	4.89	3.5	320.2	0.00	0.00	320.2	1.000	Sr X	EC 107 D
15	15.971	1.86E-2	5.1	320.2	0.00	0.00	320.2	1.000	Sr X	EC 107 D
16	16.085	0.86	4.0	320.2	0.00	0.00	320.2	1.000	Sr X	EC 107 D
17	850.6	6.55E-2	19.6	9.705E	10.29	-332.	9.705E+	41.000	88Y EC	107 D g
18	898.0	93.70	0.3	362.8	0.27	-330.	362.8	1.000	88Y EC	107 D g
19	1382.2	2.08E-2	28.6	295.3	0.17	-310.	295.3	1.000	88Y EC	107 D g
20	1836.1	99.20	0.3	385.7	0.11	-294.	385.7	1.000	88Y EC	107 D g
21	2734.0	0.71	9.7	1.229	5.68E-2	-269.	1.229	1.000	88Y EC	107 D g
22	3219.7	7.05E-3	28.0	1.000	3.82E-2	-259.	1.000	1.000	88Y EC	107 D g

Σχήμα 5.9 Αποτελέσματα εξόδου μετά από τον κώδικα TrueCoinc για το ισότοπο ⁸⁸Υ

Μετά την ολοκλήρωση των υπολογισμών των συντελεστών διόρθωσης και με χρήση τους προκύπτουν οι πίνακες 5.5.α και 5.5.β που έχουν τα συγκεντρωτικά τα αποτελέσματα από την πειραματική βαθμονόμηση, τη βαθμονόμηση του ανιχνευτή με χρήση τεχνικών προσομοίωσης και τις διορθώσεις με το πρόγραμμα TrueCoinc, για τις ενέργειες όπου υπάρχει ανάγκη διόρθωσης και τις στατιστικές αποκλίσεις μεταξύ των πειραματικών τιμών και των τιμών των προσομοιώσεων. Από τους παραπάνω πίνακες, παρατηρείται το πόσο διαφέρουν οι τιμές που προέκυψαν κατά την πειραματική βαθμονόμηση με αυτές που τελικά προέκυψαν με χρήση των συντελεστών διόρθωσης με το πρόγραμμα TrueCoinc.

Ισότοπο	E [keV]	eff πειραματική	σ %(1σ)	συντελεστές διόρθωσης TrueCoinc	διορθωμένη eff πειραματική	σ %(1σ)
Am241	59.54	0.02240	1.1014		0.02240	1.1014
Cd106	88.03	0.08271	1.5004		0.08271	1.5004
Co57	122.06	0.11739	1.1003		0.11739	1.1003
Co57	136.47	0.12076	1.1054		0.12076	1.1054
Ce139	165.86	0.12167	1.2002		0.12167	1.2002
Sn113	255.13	0.10007	2.3050		0.10007	2.3050
Sn113	391.7	0.07760	2.3001		0.07760	2.3001
Sr85	514	0.06908	1.5000		0.06908	1.5000
Cs137	661.66	0.05571	1.3002		0.05571	1.3002
Y88	898.04	0.03974	1.2001	0.8630	0.04605	1.2001
Co60	1173.23	0.03222	1.1003	0.8500	0.03790	1.1003
Co60	1332.49	0.02916	1.1003	0.8450	0.03451	1.1003
Y88	1836.06	0.02377	1.2001	0.8450	0.02813	1.2001

(β)

(α)

Ισότοπο	E [keV]	διορθωμένη eff πειραματική	σ %(1σ)	eff προσομοίωσης (peak)	σ %(1σ)	απόκλιση (%)	U - test
Am241	59.54	0.02240	1.1014	0.02511	0.0326	-12.1152	0.2463
Cd106	88.03	0.08271	1.5004	0.08557	0.0179	-3.4535	0.1904
Co57	122.06	0.11739	1.1003	0.11747	0.0214	-0.0683	0.0073
Co57	136.47	0.12076	1.1054	0.12106	0.0278	-0.2532	0.0276
Ce139	165.86	0.12167	1.2002	0.12030	0.0386	1.1244	0.1139
Sn113	255.13	0.10007	2.3050	0.10072	0.0756	-0.6485	0.0281
Sn113	391.7	0.07760	2.3001	0.07708	0.1234	0.6706	0.0226
Sr85	514	0.06908	1.5000	0.06476	0.1426	6.2588	0.2869
Cs137	661.66	0.05571	1.3002	0.05540	0.2064	0.5614	0.0238
Y88	898.04	0.04605	1.2001	0.04599	0.2337	0.1370	0.0052
Co60	1173.23	0.03790	1.1003	0.03901	0.2617	-2.9108	0.0976
Co60	1332.49	0.03451	1.1003	0.03629	0.3479	-5.1802	0.1549
Y88	1836.06	0.02813	1.2001	0.02899	0.3991	-3.0619	0.0681

Πίνακες 5.5.α & 5.5.β: Αποδόσεις του ανιχνευτή HPGe(α) μέσω προσομοίωσης και πειραματικά. Στον πίνακα (α) παρουσιάζονται οι συντελεστές διόρθωσης με λόγω TrueCoinc, και οι διορθωμένες τιμές της απόδοσης για το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης. Στον πίνακα (β) παρουσιάζονται οι δύο καμπύλες (πειραματική μετά από διορθώσεις λόγω του φαινομένου της πραγματικής σύμπτωσης – καμπύλη μετά από προσομοιώσεις). Οι πίνακες δεν έχουν το σωστό πλήθος σημαντικών ψηφίων για καλύτερη εποπτεία των αποτελεσμάτων.

Μετά τις διορθώσεις διαπιστώνεται ότι οι αποκλίσεις των διορθωμένων πειραματικών τιμών με αυτές που προέκυψαν με χρήση του κώδικα PENELOPE έχουν μειωθεί πολύ, και ενώ προηγουμένως υπήρχαν αποκλείσεις για τα ισότοπα ⁸⁸Υ και ⁶⁰Co της τάξης του 15%-20%, πλέον οι αποκλίσεις είναι της τάξης του 0.13% με -5%. Βέβαια παρατηρώντας τις τιμές της μεταβλητής U του στατιστικού ελέγχου, διαπιστώνεται ότι και σε αυτή τη περίπτωση οι τιμές της απόδοσης (πειραματικές και υπολογιστικές) δε διαφέρουν στατιστικά σημαντικά και αιτία γι' αυτό είναι η μεγάλη τιμή της αβεβαιότητας (τυχαίο σφάλμα της μέτρησης) που συνοδεύει τις υπολογισμένες ραδιενέργειες.

Διορθώσεις με τον κώδικα EFFTRAN

Ακολουθεί πίνακας, που περιλαμβάνει τις τιμές της απόδοσης φωτοκορυφής για τις τέσσερις κορυφές των ισοτόπων που παρουσιάζουν προβλήματα πραγματικής σύμπτωσης (⁸⁸Υ και ⁶⁰Co). Όπως φαίνεται από τον πίνακα αυτό και το TrueCoinc και το EFFTRAN δίνουν ίδιους συντελεστές διόρθωσης για το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης και για τα δύο ισότοπα.

Nuclide	E [keV]	eff πειραματική	σ %(1σ)	συντελεστές διόρθωσης TrueCoinc	eff πειραματική με διόρθωση από TrueCoinc	συντελεστές διόρθωσης Efftran	eff πειραματική με διόρθωση από Efftran
⁸⁸ Y	898.04	0.0397	1.2001	0.863	0.0461	0.863	0.0461
⁶⁰ Co	1173.23	0.0322	1.1003	0.850	0.0379	0.852	0.0378
⁶⁰ Co	1332.49	0.0292	1.1003	0.845	0.0345	0.848	0.0344
⁸⁸ Y	1836.06	0.0238	1.2001	0.845	0.0281	0.847	0.0281

Πίνακας 5.6: Τιμές διόρθωσης απόδοσης του ανιχνευτή HPGe (α) που προέκυψαν με χρήση του κώδικα TrueCoinc και Efftran.

Στο σχήμα 5.10 που ακολουθεί φαίνεται η νέα-τελική καμπύλη πειραματικής βαθμονόμησης όπως προέκυψε μετά και τη διόρθωση λόγω των φαινομένων πραγματικής σύμπτωσης. Στο εξής, η καμπύλη αυτή, θα θεωρείται η καμπύλη βαθμονόμησης απόδοσης του ανιχνευτή για τη συγκεκριμένη γεωμετρία της πηγής.



Σχήμα 5.10 Καμπύλη πειραματικής βαθμονόμησης του ανιχνευτή HPGe (α), μετά από την εφαρμογή διορθώσεων για τα ισότοπα ⁶⁰Co και ⁸⁸Y, που παρουσιάζουν θέματα πραγματικής σύμπτωσης.

5.3.1.1.6 Προσδιορισμός καμπύλης απόδοσης για τις γεωμετρίες ανάλυσης φίλτρων

Κατά την βαθμονόμηση του ανιχνευτή HPGe(α) δεν υπήρχε η δυνατότητα χρήσης πηγής βαθμονόμησης η οποία να έχει την ίδια γεωμετρία και σύσταση με τα δείγματα φίτρων τα οποία θα αναλύονταν στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. στον ανιχνευτή. Για το λόγο η

βαθμονόμηση της ανιχνευτικής διάταξης έγινε αποκλειστικά μέσω προσομοίωσης. Η εφαρμογή της μεθοδολογίας αυτής κατέστη δυνατή μετά την εκτίμηση των γεωμετρικών χαρακτηριστικών της ανιχνευτικής διάταξης που παρουσιάσθηκε στην προηγούμενη παράγραφο. Τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά της διάταξης χρησιμοποιήθηκαν ως η βάση για τους υπολογισμούς μεταφοράς απόδοσης από τη γεωμετρία και το υλικό της πηγής, στις γεωμετρίες και τα υλικά των δειγμάτων. Στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. οι γεωμετρίες των δειγμάτων φίλτρων κυτταρίνης που αναλύθηκαν ήταν δύο, όπως φαίνεται στο σχήμα 5.11:

- γεωμετρία 1: φίλτρο κυλινδρικής μορφής διαμέτρου 70mm και πάχους 3mm, και
- γεωμετρία 2: φίλτρο σε μορφή ταινιών, διαστάσεων 3.5x0.2 cm και πάχους 0.3 cm που χρησιμοποιήθηκε σε συνδυασμό με κρουστικό δειγματολήπτη υψηλού όγκου πολλαπλών σταδίων (cascade impactor).

Επισημαίνεται ότι το πλάτος του υλικού το οποίο αποτίθεται πάνω σε κάθε ταινία του φίλτρου για τη γεωμετρία 2 δεν είναι σταθερό, αλλά εξαρτάται από το στάδιο του δειγματολήπτη. Για το λόγο αυτό, λόγω της ιδαίτερης μορφής της γεωμετρίας 2, χρειάσθηκε να διερευνηθεί στα πλαίσια της Δ.Δ μέσω προσομοίωσης το κατά πόσο θα μπορούσε να χρησιμοποιηθεί μία ενιαία γεωμετρία για όλα τα φίλτρα που συλλέγονται και στα έξι διαφορετικά στάδια του δειγματολήπτη.



Σχήμα 5.11 Οι δύο γεωμετρίες φίλτρων οι οποίες αποτέλεσαν και τα δείγματα που αναλύθηκαν στα πλαίσια της παρούσης Δ.Δ.

Συγκεκριμένα εξετάστηκαν μέσω προσομοίωσης οι παρακάτω σενάρια γεωμετρίας:

- Σενάριο 1: Ενιαίο ορθογώνιο παραλληλόγραμμο με διαστάσεις 3.5x3.5 cm
- Σενάριο 2: ταινίες διαστάσεων 3.5x0.2 cm
- Σενάριο 3: ταινίες διαστάσεων 3.5x0.15cm
- Σενάριο 4: ταινίες διαστάσεων 3.5x0.10 cm

Οι διαστάσεις των ταινιών που επελέγησαν να ελεγχθούν σε κάθε σενάριο δεν είναι αυθαίρετες, καθώς αφορούν στη μεγαλύτερη στη μικρότερη και στη μέση διάσταση των λωρίδων των δειγμάτων. Οι προσομοιώσεις πραγματοποιήθηκαν ενδεικτικά για ένα ισότοπο χαμηλής, δύο μέσης και ένα υψηλής ενέργειας. Τα αποτελέσματα των αποδόσεων μαζί και με το στατιστικό U-test φαίνονται στον πίνακα 5.7 που ακολουθεί:

Ισότοπο	E [keV]	eff προσομοίωσης ορθογώνιο	σ %(1σ)	eff προσομοίωσης 3.5x0.2cm	σ %(1σ)
²⁴¹ Am	59.54	0.03001	0.0379	0.03219	0.0404
⁷ Be	477.6	0.08192	0.1385	0.08873	0.1345
¹³⁷ Cs	661.66	0.06652	0.1883	0.07207	0.1782
⁴⁰ K	1460.7	0.04035	0.3083	0.04339	0.3359
Ισότοπο	E [keV]	eff προσομοίωσης 3.5x0.15cm	σ %(1σ)	eff προσομοίωσης 3.5x0.1cm	σ %(1σ)
Ισότοπο ²⁴¹ Am	E [keV] 59.54	eff προσομοίωσης 3.5x0.15cm 0.03233	σ %(1σ) 0.0470	eff προσομοίωσης <u>3.5x0.1cm</u> 0.03258	σ %(1σ) 0.0497
Ισότοπο ²⁴¹ Am ⁷ Be	E [keV] 59.54 477.6	eff προσομοίωσης 3.5x0.15cm 0.03233 0.08936	σ%(1σ) 0.0470 0.0950	eff προσομοίωσης 3.5x0.1cm 0.03258 0.09023	σ %(1σ) 0.0497 0.1339
Ισότοπο ²⁴¹ Am ⁷ Be ¹³⁷ Cs	E [keV] 59.54 477.6 661.66	eff προσομοίωσης 3.5x0.15cm 0.03233 0.08936 0.07247	σ%(1σ) 0.0470 0.0950 0.1807	eff προσομοίωσης 3.5x0.1cm 0.03258 0.09023 0.07299	σ%(1σ) 0.0497 0.1339 0.1808
Ισότοπο ²⁴¹ Am ⁷ Be ¹³⁷ Cs ⁴⁰ K	E [keV] 59.54 477.6 661.66 1460.7	eff προσομοίωσης 3.5x0.15cm 0.03233 0.08936 0.07247 0.04335	σ%(1σ) 0.0470 0.0950 0.1807 0.3408	eff προσομοίωσης 3.5x0.1cm 0.03258 0.09023 0.07299 0.04375	σ%(1σ) 0.0497 0.1339 0.1808 0.3355

U - test παραλληλόγραμμο- λωρίδες 3.5x0.2cm	U - test παραλληλόγραμμο- λωρίδες 3.5x0.1.5cm	U - test παραλληλόγραμμο- λωρίδες 3.5x0.1cm	U - test λωρίδες 3.5x0.2cm-λωρίδες 3.5x0.15cm	U - test λωρίδες 3.5x0.2cm-λωρίδες 3.5x0.1cm	U - test λωρίδες 3.5x0.15cm-λωρίδες 3.5x0.1cm
3.9355	3.8390	4.1091	0.2249	0.6075	0.3648
3.5309	4.4320	4.3190	0.3815	0.7926	0.5334
2.1406	2.2797	2.4791	0.1577	0.3629	0.2038
0.6676	0.6536	0.7470	0.0085	0.0759	0.0838
_					

Πίνακας 5.7: Τιμές προσομοίωσης πιθανών γεωμετριών σταδίων του ανιχνευτή HPGe(α) που προέκυψαν με προσομοίωσης και τα αντίστοιχα U-test.

Όπως φαίνεται από τα U-test του πίνακα 5.7, οι αποδόσεις που προκύπτουν για το απλοποιημένο ορθογώνιο σενάριο γεωμετρίας (σενάριο 1) διαφέρουν στατιστικά σημαντικά από όλα τα υπόλοιπα σενάρια γεωμετρίας. Επιπλέον, όλα τα υπόλοιπα σενάρια γεωμετρίας. Επιπλέον, όλα τα υπόλοιπα σενάρια γεωμετρίας δεν διαφέρουν στατιστικά σημαντικά μεταξύ. Αυτός είναι και ο λόγος που τελικά επιλέχθηκε να υιοθετηθεί και να χρησιμοποιηθεί για τη βαθμονόμηση της γεωμετρίας 2, το σενάριο 2, με ταινίες διαστάσεων 3.5x0.2cm. Ο Πίνακας 5.8 παρουσιάζει την απόδοση του ανιχνευτή HPGe (α) για τις δύο γεωμετρίες φίλτρων όπως προέκυψαν από την προσομοίωση.

.

Ισότοπο	E [keV]	eff προσομοίωσης γεωμετρία 1	σ %(1σ)	eff προσομοίωσης γεωμετρία 2	σ %(1σ)
²⁴¹ Am	59.54	0.03175	0.0315	0.0322	0.0404
¹⁰⁶ Cd	88.03	0.10891	0.0172	0.1114	0.0216
57 Co	122.06	0.15079	0.0198	0.1549	0.0251
57 Co	136.47	0.15577	0.0252	0.1602	0.0304
¹³⁹ Ce	165.86	0.15504	0.0345	0.1599	0.0405
¹¹³ Sn	255.13	0.12942	0.0596	0.1334	0.0672
¹¹³ Sn	391.70	0.09826	0.0987	0.1014	0.1106
⁷ Be	477.60	0.08648	0.0887	0.0887	0.1345
⁸⁵ Sr	514.00	0.08224	0.1299	0.0848	0.1439
¹³⁷ Cs	661.66	0.06996	0.1481	0.0721	0.1782
⁸⁸ Y	898.04	0.05784	0.2089	0.0594	0.1864
⁶⁰ Co	1173.23	0.04893	0.2541	0.0502	0.2874
⁶⁰ Co	1332.49	0.04507	0.2831	0.0463	0.3133
⁸⁸ Y	1836.06	0.09826	0.0987	0.0374	0.3987

Πίνακας 5.8: Απόδοση του ανιχνευτή HPGe(a) για τις δύο γεωμετρίες ανάλυσης φίλτρων που αναλύθηκαν στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ.

Στο σχήμα 5.11 παρουσιάζονται οι καμπύλες βαθμονόμησης του ανιχνευτή, για τις δύο γεωμετρίες ανάλυσης φίλτρων που προέκυψαν από τα σημεία του πίνακα 5.8.



Σχήμα 5.11α Καμπύλη βαθμονόμησης απόδοσης του ανιχνευτή HPGe(α), για τη γεωμετρία 1.



Σχήμα 5.11β Καμπύλη βαθμονόμησης απόδοσης του ανιχνευτή HPGe(α), για τη γεωμετρία 2.

5.3.1.2 Βαθμονόμηση ανιχνευτή HPGe του ΕΡΠ - «Δ» με σχετική απόδοση 29.5 %

5.3.1.2.1 Εκτίμηση των διαστάσεων του ανιχνευτή HPGe(β)

Πρόκειται για ομοαξονικό (coaxial) ανιχνευτή υπερκάθαρου γερμανίου (HPGe) σχετικής απόδοση 29.5% της εταιρίας Canberra. Τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του, όπως αναφέρονται στο πιστοποιητικό του παρατίθενται στον πίνακα που ακολουθεί:

<u>ΗΡGe(β) του ΕΡΠ</u>

Απόδοση ανιχνευτή	29.5 %
Γεωμετρία ανιχνευτή	ομοαξονικός
Εξωτερική Διάμετρος ανιχνευτή	57.0 mm
Μήκος ανιχνευτή	56.2 mm
Σχετικός όγκος ανιχνευτή	139.0 cm ³
Νεκρή ζώνη ανιχνευτή (dead layer)	500 μm
Απόσταση κρυστάλλου από περίβλημα	3.0 mm
Διάμετρος περιβλήματος	80.0 mm
Μήκος περιβλήματος	135.0 mm
Πάχος περιβλήματος	≤ 1.0 mm

Πίνακας 5.9: Χαρακτηριστικά ανιχνευτή HPGe(β) σύμφωνα με το πιστοποιητικό του

Όπως φαίνεται από το πιστοποιητικό του ανιχνευτή (παρατίθεται στο τέλος του κεφαλαίου) η κατασκευάστρια εταιρία δεν δίνει σημαντικές πληροφορίες σχετικά με: τις διαστάσεις της κυλινδρικής οπής (διάμετρος-μήκος), την απόσταση του ανιχνευτή από το παράθυρο (θεωρήθηκε στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. ότι ισούται με την απόσταση του κρυστάλλου από το περίβλημα, όπως δίνει ο ίδιος ο κατασκευαστής), το πάχος του παραθύρου του ανιχνευτή (θεωρήθηκε ίσο με το πάχος του περιβλήματος του ανιχνευτή) και τα dead layers.

Ο ανιχνευτής βρίσκεται μέσα σε θωράκιση κυλινδρικού σχήματος η οποία αποτελείται (από μέσα προς τα έξω) από 3 στρώματα, χαλκό (πάχους 1 mm), κασσίτερο (πάχους 1 mm) και μόλυβδο (πάχους 22 cm).

Για τον προσδιορισμό των γεωμετρικών χαρακτηριστικών του ανιχνευτή ακολουθήθηκε η διαδικασία που περιγράφθηκε προηγουμένως. Ως παράμετροι οι οποίες θα τροποποιούνται σε κάθε νέο γεωμετρικό μοντέλο μετά τη σύγκριση των αποτελεσμάτων της προσομοίωσης με τα πειραματικά, επελέγησαν εκείνες για τις οποίες υπήρχε μικρότερη βεβαιότητα, όσον αφορά τις πραγματικές διαστάσεις τους, αλλά και εκείνες που κρίθηκε ότι έχουν τη μεγαλύτερη επίδραση στην ανιχνευτική ικανότητα της διάταξης. Με αυτό το σκεπτικό επιλέχθηκαν:

- το πάχος του εμπρόσθιου (front) dead layer (θεωρείται ότι έχει ομοιόμορφο πάχος σε όλη την έκτασή του)
- η ύπαρξη και το πάχος του περιφερειακού (side) dead layer (θεωρείται ότι έχει ομοιόμορφο πάχος σε όλη την έκτασή του)
- το ύψος της οπής (finger)
- η διάμετρος της οπής (finger)

Οι αρχικές τιμές των προσομοιώσεων για το dead layer ήταν: για το πρόσθιο στα 0.5 μm και για το περιφερειακό στα 0.5 μm. Οι τιμές αυτές επιλέχθηκαν με βάση την εκτίμηση που δίνεται στα έγγραφα που συνοδεύουν τον ανιχνευτή για το πάχος της νεκρής περιοχής του ανιχνευτή. Για τις διαστάσεις της οπής επιλέχθηκε διάμετρος στα 12mm και μήκος στα 50mm, διαστάσεις χαρακτηριστικές για έναν ανιχνευτή με σχετική απόδοση στα 29.5%.

Δυστυχώς δεν κατέστη δυνατό να γίνει πειραματική βαθμονόμηση στα πλαίσια της Δ.Δ., καθώς λόγω σημαντικής βλάβης ο ανιχνευτής είχε τεθεί εκτός λειτουργίας. Εντούτοις, μέχρι τη στιγμή εκείνη είχαν ήδη μετρηθεί αρκετά φίλτρα αέρα σε αυτόν στα πλαίσια της Δ.Δ., οπότε και κατέστη αναγκαία η βαθμονόμησή του με χρήση του κώδικα PENELOPE. Κατά συνέπεια, ως βάση των εργασιών χρησιμοποιήθηκαν τα πειραματικά αποτελέσματα από βαθμονόμηση η οποία είχε πραγματοποιηθεί στο παρελθόν, με χρήση πηγής όγκου.

5.3.1.2.2 Εκτίμηση του γεωμετρικού μοντέλου του ανιχνευτή με πηγή όγκου

Για την εκτίμηση του γεωμετρικού μοντέλου του ανιχνευτή χρησιμοποιήθηκε πηγή όγκου η οποία συνίστατι σε δοχείο όγκου 50.00 cm³ (σχήμα 5.2) μέσα στο οποίο ήταν τοποθετημένο χαρτί στο οποίο είχε ομοιόμορφα αποτεθεί μικτό ραδιενεργό παρασκεύασμα που περιείχε τα ισότοπα: ²⁴¹Am, ¹⁰⁹Cd, ¹³⁰Ce, ⁵⁷Co, ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs, ²⁰³Hg, ¹¹³Sn, ⁸⁵Sr, ⁸⁸Y. Το δοχείο είχε πληρωθεί εξολοκλήρου από το υλικό της πηγής, ενώ η πυκνότητά της πηγής ήταν 0.35 g/cm³. Τα αποτελέσματα της πειραματικής βαθμονόμησης του ανιχνευτή με την πηγή αυτή, η οποία είχε γίνει το 2010, παρουσιάζονται στον πίνακα 5.11 και χρησιμοποιήθηκαν ως σημείο αναφοράς για την εύρεση των γεωμετρικών χαρακτηριστικών του ανιχνευτή. Επισημαίνεται ότι τα δεδομένα για τα ισότοπα ⁸⁸Y και ⁶⁰Co είχαν ήδη διορθωθεί στο παρελθόν για το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης.

Από τις προσομοιώσεις προσδιορίσθηκαν τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του ανιχνευτή που δεν ήταν γνωστά, συμπληρώνοντας έτσι τα στοιχεία του κατασκευαστή στο πιστοποιητικό του ανιχνευτή. Στον Πίνακα 5.10 παρουσιάζεται το σύνολο των γεωμετρικών χαρακτηριστικών του ανιχνευτή που χρησιμοποιήθηκε ακολούθως για τη βαθμονόμηση.

Απόδοση ανιχνευτή	29.5 %
Γεωμετρία ανιχνευτή	ομοαξονικός
Εξωτερική Διάμετρος ανιχνευτή	57.0 mm
Μήκος ανιχνευτή	56.2 mm
Σχετικός όγκος ανιχνευτή	139.0 cm ³
Νεκρή ζώνη ανιχνευτή (dead layer)	500 µm
Απόσταση κρυστάλλου από περίβλημα	3.0 mm
Διάμετρος περιβλήματος	80.0 mm
Μήκος περιβλήματος	135.0 mm
Πάχος περιβλήματος	≤ 1.0 mm
Πάχος εμπρόσθιας νεκρής ζώνης	0.095 cm
Διάμετρος οπής (finger diameter)	19 mm
Μήκος οπής (finger length)	50 mm

<u>ΗΡGe(β) του ΕΡΠ</u>

Πίνακας 5.10: Γεωμετρικά χαρακτηριστικά του ανιχνευτή HPGe(β) σύμφωνα με το πιστοποιητικό του και τις προσομοιώσεις. Με έντονα γράμματα είναι τα στοιχεία τα οποία προσδιορίσθηκαν μέσω προσομοίωσης.

Στο σχήμα 5.12 που ακολουθεί, παρουσιάζεται η ανιχνευτική διάταξη όπως ορίστηκε από τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του πίνακα 5.10, ενώ στον πίνακα 5.11 που ακολουθεί παρουσιάζονται οι πειραματικές τιμές της απόδοσης, όπως είχαν εκτιμηθεί το 2010 και οι τιμές της απόδοσης που προκύπτουν από τις προσομοιώσεις, με τις αβεβαιότητές τους (σε επίπεδο 1σ), καθώς επίσης η μεταξύ τους απόκλιση και οι τιμές της μεταβλητής U (U-test). Οι τιμές δεν αναγράφονται με το κατάλληλο πλήθος σημαντικών ψηφίων, ώστε να είναι ευχερέστερη η σύγκρισή τους. Όπως παρατηρείται στον πίνακα 5.11 υπάρχει μεγάλη απόκλιση στις τιμές της απόδοσης των ισοτόπων χαμηλών ενεργειών, ενώ οι τιμές των αποδόσεων για τις μέσες και υψηλές ενέργειες στατιστικά δεν διαφέρουν. Παρόλα αυτά, το γεωμετρικό μοντέλο θεωρήθηκε ως αποδεκτό, καθώς οι γεωμετρικές διαστάσεις που εκτιμήθηκαν θεωρούνται ρεαλιστικές και επιπλέον ικανοποιούν τις απαιτήσεις στα πλαίσια Δ.Δ. για ακριβείς αναλύσεις με χρήση φωτονίων μέσης και υψηλής ενέργειας.



Σχήμα 5.12 Γεωμετρία ανιχνευτή HPGe (β) μαζί με την πηγή βαθμονόμησής του. Το σχήμα είναι από το πρόγραμμα απεικόνισης GVIEW2D. Η απεικόνιση γίνεται κατά σώμα, ώστε να διακρίνονται τα dead layers.

Nuclide	E [keV]	eff πειραματική	σ %(1σ)	eff προσομοίωσης (peak)	σ %(1σ)	απόκλιση (%)	U - test
²⁴¹ Am	59.54	0.01416	1.1014	0.03234	0.0346	-128	1.6498
¹⁰⁶ Cd	88.03	0.05457	1.5004	0.08006	0.0178	-47	1.6987
57Co	122.06	0.07739	1.1003	0.09641	0.0301	-25	1.7283
57 Co	136.47	0.08013	1.1054	0.09598	0.0367	-20	1.4338
¹³⁹ Ce	165.86	0.07905	1.2002	0.09002	0.0493	-14	0.9134
¹¹³ Sn	255.13	0.06119	2.3050	0.06457	0.1009	-5.5	0.1464
¹¹³ Sn	391.70	0.04033	2.3001	0.04233	0.1788	-5	0.0871
⁸⁵ Sr	514.00	0.03123	1.5000	0.03251	0.2419	-4.1	0.0845
¹³⁷ Cs	661.66	0.02574	1.3002	0.02589	0.2771	-0.6	0.0116
⁸⁸ Y	898.04	0.02055	1.2001	0.01975	0.3750	3.9	0.0632
⁶⁰ Co	1173.23	0.01573	1.1003	0.01565	0.5246	0.5	0.0065
⁶⁰ Co	1332.49	0.01346	1.1003	0.01416	0.5842	-5.2	0.0563
⁸⁸ Y	1836.06	0.01122	1.2001	0.01068	0.7670	4.8	0.0379

Πίνακας 5.11: Σύγκριση τιμών απόδοσης του ανιχνευτή HPGe (β) που προέκυψαν μέσω προσομοίωσης με αυτές που προέκυψαν από την πειραματική βαθμονόμηση με πηγή

5.3.1.2.3 Καμπύλες Βαθμονόμησης απόδοσης του ανιχνευτή

Για τον προσδιορισμό της καμπύλης βαθμονόμησης απόδοσης του ανιχνευτή ακολουθήθηκαν τα ίδια βήματα που περιγράφονται σε προηγούμενη παράγραφο και προέκυψαν τα ακόλουθα σχήματα 5.13 και 5.14, όπου παρουσιάζονται τα πειραματικά σημεία της απόδοσης φωτοκορυφής και ολικής απόδοσης που προέκυψαν από τις προσομοιώσεις με τον κώδικα PENELOPE 2011, και από τα διαθέσιμα πειραματικά δεδομένα, όπως προέκυψαν πριν από τις διορθώσεις για το φαινόμενο πραγματικής σύμπτωσης.



Σχήμα 5.13 Απόδοση του ανιχνευτή HPGe(β) που προέκυψε με προσομοίωση και πειραματικές τιμές του 2010.



Σχήμα 5.14 Ολική απόδοση ανιχνευτή που εκτιμήθηκε με προσομοίωση.

Στα σχήματα 5.15 και 5.16 που ακολουθούν διακρίνονται οι καμπύλες απόδοσης φωτοκορυφής του ανιχνευτή, όπως έχουν προκύψει από τα σημεία προσομοίωσης και από τα πειραματικά σημεία αντίσστοιχα



Σχήμα 5.15 Καμπύλη απόδοσης ανιχνευτή HPGe(β) που εκτιμήθηκε μέσω προσομοίωσηςMonte Carlo.



Σχήμα 5.16 Καμπύλη απόδοσης του ανιχνευτή που εκτιμήθηκε με χρήση των πειραματικών δεδομένων.

Στον πίνακα 5.12 που ακολουθεί παρατίθενται οι τιμές της ολικής (total) απόδοσης και ο λόγος total to peak με τις αβεβαιότητές τους σε επίπεδο 1σ, ενώ στο σχήμα 5.17 το αντίστοιχο γράφημα της καμπύλης total-to-peak συναρτήσει της ενέργειας. Σημειώνεται ότι οι τιμές δεν δίνονται με το σωστό πλήθος σημαντικών ψηφίων για καλύτερη οπτικοποίηση των αποτελεσμάτων.

Nuclide	E [keV]	eff προσομοίωσης (peak)	σ %(1σ)	ολική (total) απόδοση	σ %(1σ)	total/peak	σ %(1σ)
²⁴¹ Am	59.54	0.03234	0.0346	0.03827	0.0319	1.18321	0.0471
¹⁰⁹ Cd	88.03	0.08006	0.0178	0.09904	0.0161	1.23715	0.0240
⁵⁷ Co	122.06	0.09641	0.0301	0.12749	0.0265	1.32231	0.0401
⁵⁷ Co	136.47	0.09598	0.0367	0.13151	0.0318	1.37017	0.0485
¹³⁹ Ce	165.86	0.09002	0.0493	0.13370	0.0411	1.48522	0.0642
¹¹³ Sn	255.13	0.06457	0.1009	0.12710	0.0731	1.96845	0.1246
¹¹³ Sn	391.70	0.04233	0.1788	0.10485	0.1391	2.47666	0.2265
⁸⁵ Sr	514.00	0.03251	0.2419	0.11076	0.1326	3.40647	0.2759
¹³⁷ Cs	661.66	0.02589	0.2771	0.10485	0.1391	4.04950	0.3100
⁸⁸ Y	898.04	0.01975	0.3750	0.09731	0.1703	4.92593	0.4118
⁶⁰ Co	1173.23	0.01565	0.5246	0.09027	0.2199	5.76710	0.5689
⁶⁰ Co	1332.49	0.01416	0.5842	0.08762	0.2362	6.18868	0.6302
⁸⁸ Y	1836.06	0.01068	0.7679	0.08129	0.2797	7.60961	0.8172

Πίνακας 5.12: Τιμές απόδοσης και ολικής απόδοσης του ανιχνευτή HPGe (β) που προέκυψαν με προσομοίωση. Στον πίνακα αυτό παρουσιάζεται και ο λόγος total/peak efficiency.



Σχήμα 5.17 Καμπύλη λόγου total to peak efficiency συναρτήσει της ενέργειας για τον ανιχνευτή HPGe(β).

5.3.1.2.4 Βαθμονόμηση απόδοσης του ανιχνευτή HPGe(β) για τις γεωμετρίες φίλτρου

Η απόδοση του ανιχνευτή HPGe(β) για τις δύο γεωμετρίες φίλτρου (γεωμετρία 1 & γεωμετρία 2) που περιγράφονται στην παραπάνω παράγραφο έγινε αποκλειστικά μέσω προσομοίωσης, χρησιμοποιώντας τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του ανχινευτή που προσδιορίσθηκαν. Στον Πίνακα 5.13 παρουσιάζονται συγκεντρωτικά τα αποτελέσματα των προσομοιώσεων για τις δύο γεωμετρίες, ενώ οι αντίστοιχες καμπύλες βαθμονόμησης απόδοσης που παρουσιάζονται στο σχήμα 5.18.

Nuclide	E [keV]	eff προσομοίωσης γεωμετρία 1	σ %(1σ)	eff προσομοίωσης γεωμετρία 2	σ %(1σ)
²⁴¹ Am	59.54	0.03514	0.0363	0.03719	0.0472
¹⁰⁹ Cd	88.03	0.09257	0.0246	0.09801	0.0285
57 Co	122.06	2.06 0.11520		0.12196	0.0269
57 Co	136.47	0.11564	0.0339	0.12242	0.0366
¹³⁹ Ce	165.86	0.10935	0.0441	0.11530	0.0456
¹¹³ Sn	255.13	0.07961	0.0906	0.08370	0.0929
¹¹³ Sn	391.7	0.05245	0.1608	0.05510	0.1631
⁸⁵ Sr	514	0.04058	0.2172	0.04227	0.2179
¹³⁷ Cs	661.66 0.03231		0.2498	0.03363	0.2777
⁸⁸ Y	898.04	0.02482	0.3737	0.02555	0.3711
⁶⁰ Co	1173.23	0.01973	0.4621	0.02039	0.4676
⁶⁰ Co	1332.49	0.01778	0.5123	0.01835	0.5272
⁸⁸ Y	1836.06	0.01325	0.6908	0.01388	0.5394

Πίνακας 5.13: Απόδοση φωτοκορφής του ανιχνευτή HPGe(β) για τη γεωμετρία 1 και την γεωμετρία 2.



Σχήμα 5.18 Καμπύλες πειραματικής βαθμονόμησης του ανιχνευτή HPGe(β) για γεωμετρίες φίλτρων 1 και 2

5.3.1.3 Βαθμονόμηση ανιχνευτή τύπου φρέατος (Well-type) HPGe του ΕΡΠ – «Δ»

Κατά τη διάρκεια της εκπόνησης της Δ.Δ. προστέθηκε το 2017 στον εξοπλισμό του Εργαστηρίου Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος ένας νέος ανιχνευτής γερμανίου. Πρόκειται για έναν ανιχνευτή τύπου φρέατος (Well-type detector). Τέτοιοι ανιχνευτές βρίσκουν ευρεία χρήση στις μετρήσεις υποστρώματος χαμηλού υποβάθρου, και είναι ιδανικοί για περιβαλλοντικά δείγματα, τα οποία στις περισσότερες μικρού όγκου και χαμηλής συγκέντρωσης ραδιενεργών ισοτόπων (Reyss et al., 1995; Sima and Arnold, 1996; Sima, 2000; Laborie et al., 2000,2002; Gurriaran et al., 2004). Τα αποτελέσματα των αναλύσεων με χρήση ανιχνευτή τύπου φρέατος μπορεί να είναι 5-10 φορές καλύτερα από αυτά ενός συμβατικού ομοαξονικού ανιχνευτή παρόμοιων διαστάσεων, ακόμα και στην περίπτωση που χρησιμοποιηθούν δοχεία Marinelli (Sima and Arnold, 1996). Εξαιτίας δε της μεγάλης στερεάς γωνίας ανίχνευσης, ένας ανιχνευτής τύπου φρέατος μπορεί να παρέχει αποδόσεις βελτιωμένες κατά έναν παράγοντα 4-5 εν συγκρίσει με έναν ομοαξονικό ανιχνευτή του ίδιου τύπου και όγκου, κάνοντας ανάλυση του ίδιου δείγματος το οποίο θα είναι σε επαφή με τον ανιχνευτή (Laborie et al., 2002). Ακόμα, οι ανιχνευτές τύπου φρέατος, λόγω της μικρής διαστάσεως τοτυ δείγματος δίνουν καλύτερα αποτελέσματα εν συγκρίσει με ομοαξονικούς ανιχνευτές στην περίπτωση του φαινομένου της αυτοαπορρόφησης (όταν δηλαδή έχουμε δείγμα υλικού υψηλής πυκνότητας το οποίο εκπέμπει φωτόνια χαμηλών ενεργειών (Sima and Arnold, 1996). Τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του ανιχνευτή, όπως αναφέρονται στο πιστοποιητικό που τον συνοδεύει παρατίθενται στον πίνακα που ακολουθεί:

Απόδοση ανιχνευτή	20.6%
Γεωμετρία ανιχνευτή	Well-type
Διάμετρος ανιχνευτή	54.4 mm
Μήκος ανιχνευτή	57.0 mm
Απόσταση από το παράθυρο	10.0 mm
Βάθος πηγαδιού (core hole depth)	35.5 mm
Διάμετρος πηγαδιού (core hole diameter)	22.5 mm
Απόσταση κρυστάλλου από περίβλημα	10.9 mm
Πάχος περιβλήματος	1.5 mm

<u>ΗΡGe(γ) του ΕΡΠ</u>

Πίνακας 5.14: Χαρακτηριστικά ανιχνευτή γερμανίου τύπου φρέατος σύμφωνα με το πιστοποιητικό του.

Όπως φαίνεται από τα παραπάνω, ο κατασκευαστής δεν δίνει σημαντικές πληροφορίες σχετικά με τις διαστάσεις του dead layer αλλά και τη μορφή του.

Ο ανιχνευτής βρίσκεται σε θωράκιση η οποία αποτελείται από 3 στρώματα: χαλκού, κασσίτερου και μολύβδου η οποία είναι κατασκευασμένη με την ίδια λογική που είναι κατασκευασμένες οι θωρακίσεις των άλλων ανιχνευτών.

Πριν την προσομοίωση του ανιχνευτή και την επαναληπτική διαδικασία προσδιορισμού των γεωμετρικών χαρακτηριστικών του, έγινε μία διερεύνηση του κατά πόσον μπορεί και έχει

νόημα η γεωμετρία του ανιχνευτή που θα προσομοιωθεί τελικά να απλοποιηθεί, προκειμένου να επιταχυνθεί η διαδικασία προσομοίωσης. Στο σημείο αυτό πρέπει να επισημανθεί ότι εν γένει κατά τη διαδικασία προσομοίωσης η ταχύτητα επηρεάζεται από την πολυπλοκλότητα της γεωμετρίας και συγκεκριμένα από το πλήθος των σωμάτων που περιλαμβάνονται στη γεωμετρία πηγής-ανιχνευτή. Για το λόγο αυτό δοκιμάστηκαν δύο διαφορετικές προσεγγίσεις για τη δημιουργία του αρχείου γεωμετρίας .geo. Όπως φαίνεται στο σχήμα 5.19 (αριστερά) ο κρύσταλλος γερμανίου περιβάλλεται από μία βάση σταθεροποίησης (crystal holder) από χαλκό και μονωτή από τεφλόν. Εξετάσθηκε λοιπόν το κατά πόσον οι επιφάνειες αυτές επηρεάζουν την απόδοση του ανιχνευτή – φωτοκορυφής και ολική – και κατά συνέπεια είναι απαραίτητο να συμπεριληφθούν στο αρχείο γεωμετρίας .geo. Η απλοποιημένη γεωμετρία φαίνεται στο σχήμα 5.19 (δεξια). Η απεικόνιση έγινε με χρήση του προγράμματος GVIEW2D.



Σχήμα 5.19 Δύο διαφορετικές εκδοχές του αρχείου .geo. Η πρώτη είναι συμπεριλαμβάνοντας τα επιπλέον σώματα της γεωμετρίας. Η δεύτερη είναι η απλοποιημένη εκδοχή.

Για αυτή τη δοκιμή προσομοίωσης επιλέχθηκαν για το άνω και το περιφερειακό dead layer πάχος 0.5 mm, ενώ θεωρήθηκε και dead layer μέσα στο φρέαρ του ανιχνευτή, με πάχος 3·10⁻⁵ cm. Οι τιμές αυτές επιλέχθηκαν με βάση την εκτίμηση που δίνεται στα σχετικά πιστοποιητικά του ανιχνευτή για το πάχος των εξωτερικών ηλεκτροδίων του. Στον πίνακα 5.15 παρουσιάζονται οι τιμές τις απόδοσης οι οποίες προέκυψαν από τα δύο αρχεία γεωμετρίας, μαζί με τα αντίστοιχα U-test.

Όπως διαπιστώνεται, οι τιμές των αποδόσεων των γεωμετριών που δοκιμάστηκαν για την πλήρη και απλοποιημένη γεωμετρία δε διαφέρουν στατιστικά μεταξύ τους και κατά συνέπεια θα μπορούσε να χρησιμοποιηθεί είτε η πλήρης είτε η απλοποιημένη γεωμετρία. Ενώ η επίδραση στην απόδοση φωτοκορυφής είναι αμελητέα, δεν είναι βέβαιο ότι και η επίδραση στην ολική απόδοση είναι εξίσου αμελητέα. Στα πλαίσια της Δ.Δ. επιλέχθηκε να πραγματοποιηθούν οι προσομοιώσεις με την πλήρη γεωμετρία κρυστάλλου, παρόλο που η επιλογή μας αυτή οδηγεί σε αύξηση του υπολογιστικού χρόνου που απαιτείται, προκειμένου τα αποτελέσματα να είναι όσο γίνεται πιο κοντά στην πραγματικότητα.

5.3.1.3.1 Εκτίμηση γεωμετρικού μοντέλου με χρήση πηγών όγκου

Για την βαθμονόμηση του κρυστάλλου HPGe (γ) χρησιμοποιήθηκαν πηγές οι οποίες προσομοιάζουν στα πραγματικά περιβαλλοντικά δείγματα τα οποία και θα μετρηθούν από το Ε.Ρ.Π.-«Δ», τόσο όσον αφορά στη γεωμετρία, όσο και ως προς το υλικό τους. Επίσης τα ραδιενεργά ισότοπα τα οποία θα πρέπει να χρησιμοποιηθούν κατά τη βαθμονόμηση θα πρέπει να καλύπτουν όσο το δυνατόν το ενεργειακό εύρος στο οποίο θα λειτουργήσει ο ανιχνευτής. Μία ακόμα παράμετρος η οποία θα πρέπει να λήφθεί υπόψη στην συγκεκριμένη περίπτωση βαθμονόμησης είναι το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης. Το φαινόμενο αυτό λαμβάνει μεγάλες διαστάσεις στην περίπτωση του ανιχνευτή τύπου φρέατος, καθιστώντας τη βαθμονόμησή του προβληματική (Reyss et al., 1995; Sima and Arnold, 1996; Laborie et al., 2000,2002; Gurriaran et al., 2004). Στη βιβλιογραφία υπάρχουν λύσεις ως προς την επιλογή ραδιενεργών παρασκευασμάτων τα οποία είναι απαλλαγμένα από ισότοπα που ευνοούν το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης και τα οποία καλύπτουν το ενεργειακό εύρος απο δαλογραφία υπάρχουν

Ισότοπο	E [keV]	Απόδοση Προσομοίωσης (απλοποιημένη γεωμετρία)	σ %(1σ)	Ταχύτητα προσομοίωση ς[showers/s]	Χρόνος προσομοίωσης [s]	Πλήθος φωτονίων που προσομοιώθηκαν
²⁴³ Am	74.66	0.550	0.01	5.24E+04	2.99E+03	1.57E+08
²²⁶ Ra	186.21	0.386	0.02	1.33E+04	2.99E+03	3.99E+07
²¹⁴ Pb	295.22	0.230	0.05	5.02E+03	2.99E+03	1.50E+07
²¹⁴ Pb	351.93	0.188	0.06	3.75E+03	3.00E+03	1.12E+07
⁷ Be	477.60	0.134	0.11	2.45E+03	2.40E+03	5.86E+06
⁴⁰ K	1460.82	0.045	0.30	8.07E+02	2.99E+03	2.41E+06

Ισότοπο	E [keV]	Απόδοση προσομοίωσης (Πολύπλοκη γεωμετρία)	σ %(1σ)	Ταχύτητα προσομοίωση ς[showers/s]	Χρόνος προσομοίωσης [s]	Πλήθος φωτονίων που προσομοιώθηκαν
²⁴³ Am	74.66	0.550	0.01	4.18E+04	3.00E+03	1.25E+08
²²⁶ Ra	186.21	0.385	0.02	1.22E+04	2.98E+03	3.64E+07
²¹⁴ Pb	295.22	0.230	0.05	5.03E+03	2.98E+03	1.50E+07
²¹⁴ Pb	351.93	0.188	0.06	3.89E+03	3.00E+03	1.17E+07
⁷ Be	477.60	0.134	0.10	2.47E+03	2.39E+03	5.91E+06
⁴⁰ K	1460.82	0.046	0.33	8.33E+02	3.00E+03	2.50E+06
Ισότοπο	E [keV]	U-test				

10010/10	E [Kev]	U-lesi
²⁴³ Am	74.66	0.0002
²²⁶ Ra	186.21	0.0001
²¹⁴ Pb	295.22	0.0000
²¹⁴ Pb	351.93	0.0000
⁷ Be	477.60	0.0000
⁴⁰ K	1460.82	0.0001

Πίνακας 5.15: Αποτελέσματα προσομοιώσεων και στατιστικά τεστ για τα 2 διαφορετικά αρχεία γεωμετρίας.

Ελλείψει προτύπων πηγών βαθμονόμησης, στα πλαίσια της Δ.Δ. έγινε βαθμονόμηση της ανιχνευτικής διάταξης με πηγές όγκου οι οποίες παρήχθησαν στο εργαστήριο και οι οποίες καλύπτουν τις ανάγκες ως προς την επιλογή ισοτόπων και υλικών. Ακολουθεί λεπτομερής περιγραφή της διαδικασίας κατασκευής των πηγών και της βαθμονόμησης με κάθε μία από αυτές και παρατίθενται τα αποτελέσματα της βαθμονόμησης τα οποία και σχολιάζονται.

Στο σχήμα 5.20 εικονίζεται το τυποποιημένο φιαλίδιο που χρησιμοποιείται για αναλύσιες δειγμάτων στον ανιχνευτή HPGe(γ). Πρόκειται για τυποποιημένο γυάλινο κυλινδρικό φιαλίδιο διαμέτρου 1.4cm και ύψους 4.3cm. Τα δοχείο κλείνει αεροστεγώς με πλαστικό πώμα, αλλά για περισσότερη ασφάλεια έναντι διαρροής το πώμα καλύπτεται με μεμβράνη και ταινία. Αυτό είναι ιδιαίτερα επιτακτικό στην περίπτωση πηγής ²²⁶Ra καθώς υπάρχει κίνδυνος διαρροής του ²²²Rn.



Σχήμα 5.20 Φιαλίδιο το οποίο χρησιμοποιείται ως περιέκτης περιβαλλοντικών δειγμάτων για τον HPGe (γ).

Στο σχημα 5.21 φαίνονται όλες οι πηγές που παρασκευάσθηκαν στα πλαίσια της εργασίας. Η περιγραφή και χρήση τους περιγράφεται στην συνέχεια με λεπτομέρεια.



Σχήμα 5.21 Πηγές όγκου που παρασκευάσθηκαν στα πλαίσια της Δ.Δ. για την βαθμονόμηση του HPGe(γ)

Πειραματική βαθμονόμηση HPGe(γ) με πηγή όγκου ²⁴³Am

Στο ΕΡΠ υπήρχε ποσότητα υγρού διαλύματος ²⁴³Am (εκπέμπει χαρακτηριστική γακτινοβολία στις ενέργειες 43.5 και 74.66 keV και έχει χρόνο ημιζωής 22 έτη) ενεργότητας 1.865 Bq/ml. Από το διάλυμα αυτό παρήχθη πηγή γεωμετρίας φιαλιδίου. Για το σκοπό αυτό έγινε έγχυση διαλύματος πάνω σε φίλτρο κυτταρίνης (Whatman, GE Healthcare Life Sciences, 203x70mm). Αφού στέγνωσε το φίλτρο, διπλώθηκε προσεκτικά και τοποθετήθηκε μέσα στο φιαλίδιο, έτσι ώστε αυτό να πληρωθεί πλήρως. Για την έκχυση του ²⁴³Am στα φίλτρα χρησιμοποιήθηκε διακριβωμένη μικροπιπέτα των 20 μl. Η χρήση της συγκεκριμένης πιπέτας έγινε μετά από δοκιμές διαφόρων διαθέσιμων πιπέτων του ΕΡΠ και επιλέχθηκε με κριτήριο τη βέλτιστη εναπόθεση υγρής ποσότητας στο φίλτρο το οποίο χρησιμοποιήθηκε ως υπόστρωμα, ώστε να υπάρχει μεν διασπορά του διαλύματος επιτυγχάνοντας έτσι τον μέγιστο δυνατό βαθμό ομοιογένειας της πηγής, χωρίς ωστόσο το φίλτρο να αλλοιώνεται από το διάλυμα. Για διευκόλυνση της κατανομής του διαλύματος πάνω στο φίλτρο πριν από την έγχυση σχεδιάσθηκε πάνω στο φίλτρο κατάλληλο πλέγμα, όπως φαίνεται στο σχήμα 3.22. Έτσι, σε κάθε ένα από τα 50 στοιχεία του πλέγματος αποτέθηκαν 20 mL, ώστε τελικά πάνω στο φίλτρο να αποτεθεί 1 ml υγρού διαλύματος συνολικής ραδιενέργειας 1.865 Bq.



Σχήμα 5.22 Πλέγμα φίλτρου κυτταρίνης πηγής ²⁴³Am. Όλες οι διαστάσεις είναι σε cm.

Κατά την έκχυση του υλικού το φίλτρο τοποθετήθηκε επάνω σε μεμβράνη προκειμένου να αποφευχθεί η διαρροή ραδιενεργού υλικού από την πίσω πλευρά του φίλτρου. Στη συνέχεια το φίλτρο αφέθηκε να στεγνώσει σε προστατευμένο χώρο, διπλώθηκε μαζί με την μεμβράνη κατάλληλα και τοποθετήθηκε στο τυποποιημένο γυάλινο κυλινδρικό φιαλίδιο.

Η πηγή αυτή μετρήθηκε στον ανιχνευτή HPGe(γ) συνολικά για 86400 sec δύο διαφορετικές χρονικές στιγμές, προκειμένου να ελεγχθεί η επαναληψιμότητα της μέτρησης. Τα αποτελέσματα των μετρήσεων στον HPGe (γ) φαίνονται στον πίνακα που ακολουθεί:

		Μέτρηση 7.2	.2018	Μέτρηση 19.6.2018			
Ισότοπο	E [keV]	eff πειραματική	σ %(1σ)	eff πειραματική	σ %(1σ)	απόκλιση (%)	U - test
²⁴³ Am	43.5	0.3867	5.2107	0.4306	5.1826	-11.3636	0.5979
AIII	74.7	0.5571	5.0068	0.5657	5.0068	-1.5417	0.1213

Πίνακας 5.16: Αποτελέσματα μετρήσεων πηγής ²⁴³Am σε φίλτρο κυτταρίνης.

Όπως παρατηρείται, η απόκλιση των δύο μετρήσεων για την περίπτωση της ενέργειας 43.5 keV είναι μεγάλη, αν και όχι στατιστικά σημαντική. Στα πλαίσια της Δ.Δ., λόγω αυτής της διαφοράς αποφασίσθηκε να αξιοποιηθεί μόνο η ενέργεια 74.7 keV για την οποία η μέτρηση παρουσιάζει και τη μεγαλύτερη επαναληψιμότητα.

Στη συνέχεια ακολούθησε προσομοίωση της γεωμετρίας πηγής-ανχινευτή με χρήση του κώδικα PENELOPE 2011, προκειμένου – μέσω της σύγκρισης με τα πειραματικά απότελέσματα – να προσδιορισθούν τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του ανιχνευτή. Τα αποτελέσματα της προσομοίωσης και τα αντίστοιχα πειραματικά παρατίθενται σε πίνακα ακόλουθης παραγράφου.

Πειραματική βαθμονόμηση HPGe(γ) με πηγή όγκου 226Ra

Με τη διαδικασία που περιγράφεται στην προηγούμενη πράγραφο παρασκευάσθηκε πηγή ²²⁶Ra (χρόνος ημιζωής 1600 έτη και χαρακτηριστική γ-ακτινοβολία στα 186.2 keV), από πρότυπο διάλυμα συγκέντρωσης 10Bq/ml το οποίο διατίθετο στο ΕΡΠ. Για το σκοπό αυτό πάνω σε φίλτρο κυταρρίνης αποτέθηκε 1ml υγρού διαλύματος.

Η πηγή αυτή μετρήθηκε στον ανιχνευτή για χρονικό διάστημα 86400sec και σε αυτή τη περίπτωση σε δύο διαφορετικές χρονικές στιγμές, προκειμένου να ελεγχθεί η επαναληψιμότητα των μετρήσεων. Το ²²⁶Ra εκτός από τα φωτόνια στην ενέργεια 186.2 keV, εκπέμπει και άλλα φωτόνια από τα θυγατρικά του, με υψηλά ποσοστά εκπομπής. Κατά συνέπεια, το ισότοπο αυτό θα μπορούσε να θεωρηθεί ως ένα «πολυενεργειακό ισότοπο»¹. Το πρόβλημα βέβαια με πολλές από τις ενέργειες αυτές είναι ότι εμφανίζουν το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης, το οποίο ειδικά στην περίπτωση ανιχνευτή τύπου «φρέατος» είναι πολύ σημαντικό (Reyss et al., 1995; Laborie et al., 2000; Gurriaran et al., 2004). Ενδεικτικά αναφέρεται ότι βάσει βιβλιογραφίας, στην περίπτωση που αγνοηθεί το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης στις αναλύσεις με χρήση ανιχνευτή τύπου φρέατος, εισάγεται σφάλμα της τάξης του 2% στον προσδιορισμό του ισοτόπου ⁶⁰Co (Laborie et al., 2000).

Τελικά, επελέγη να χρησιμοποιηθούν μόνον τα φωτόνια του ²¹⁴Pb θυγατρικού του ²²⁶Ra που εκπέμπονται στις ενέργειες 295.2 keV και 351.9 keV, τα οποία δεν παρουσιάζουν προβλήματα πραγματικής σύμπτωσης. Τα αποτελέσματα των μετρήσεων στον ανιχνευτή φαίνονται στον πίνακα που ακολουθεί:

		Μέτρηση 8.2.2018		Μέτρηση 21.6.2018			
Nuclide	E [keV]	eff πειραματική	σ %(1σ)	eff πειραματική	σ %(1σ)	απόκλιση (%)	U - test
²²⁶ Ra	186.2	0.3533	5.0475	0.3678	5.0608	-4.1266	0.2039
214 pt	295.2	0.1668	5.0160	0.1643	5.0206	1.4824	0.0348
PD	351.9	0.1329	5.0099	0.1299	5.0128	2.2680	0.0425

Όπως διαπιστωνεται από τον παραπάνω πίνακα, οι τιμές που έχουν προκύψει στις δύο μετρήσεις δεν διαφέρουν στατιστικά, γεγονός που επιβεβαιώνει καταρχάς ότι υπάρχει επαναληψιμότητα.

Στη συνέχεια ακολούθησε προσομοίωση της γεωμετρίας πηγής-ανχινευτή, προκειμένου να προσδιορισθούν τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του ανιχνευτή. Τα αποτελέσματα της προσομίωσης και τα αντίστοιχα πειραματικά παρατίθενται σε ακόλουθη παράγραφο.

Πειραματική βαθμονόμηση HPGe(γ) με πηγή όγκου ¹³⁷Cs

Για τη βαθμονόμηση του κρυστάλλου HPGe(γ) παρασκευάσθηκε πηγή ¹³⁷Cs. Το ισότοπο αυτό είναι ένα από τα κλασσικά ισότοπα που χρησιμοποιούνται σε βαθμονομήσεις απόδοσης, καθώς παρουσιάζει ορισμένα πλεονεκτήματα, όπως το ότι είναι ένα μονοενεργειακό ισότοπο, με σχετικά υψηλή χαρακτηριστική ενέργεια εκπομπής στα 661.66 keV και υψηλό ποσοστό εκπομπής. Επιπλέον, είναι ένα από τα ισότοπα τα οποία συχνά ενδιαφέρουν κατά τις αναλύσεις περιβαλλοντικών δειγμάτων. Η πηγή βαθμονόμησης παρασκευάσθηκε σε συνεργασία με το ΕΠΤ-ΕΜΠ από δείγμα που είχε διατεθεί στα πλαίσια Άσκησης Διασύγκρισης του δικτύου ALMERA. Η πρακτική αυτή έχει χρησιμοποιηθεί και σε παλαιότερες εργασίες που πραγματοποιήθηκαν στο ΕΠΤ-ΕΜΠ (Δ.Δ. Καρφόπουλου, 2012, Δ.Δ. Σάββα, 2017). Για τον σκοπό αυτό χρησιμοποιήθηκε δείγμα αυτό – μεταξύ άλλων – περιείχε ¹³⁷Cs με ενεργότητα 98.6 ± 5 Bq/kg. Η πηγή που παρασκευάσθηκε είχε βάρος 2.8096 gr και

¹ Βασική προϋπόθεση είναι το δοχείο να μπορεί να θεωρηθεί στεγανό για το ραδόνιο, να είναι πλήρες από το υλικό βαθμονόμησης και να παρέλθει κατάλληλο χρονικό διάστημα για την αποκατάσταση της ραδιενεργού ισορροπίας

υγρασία η οποία υπολογίστηκε στα 3.7%. Το δοχείο στη συνέχεια σφραγίστηκε, προκειμένου να αποφευχθεί η είσοδος υγρασίας σε αυτό.

Η πηγή αυτή μετρήθηκε στον ανιχνευτή HPGe (γ) συνολικά για 86400 sec Τα αποτελέσματα των μετρήσεων στον HPGe (γ) φαίνονται στον πίνακα που ακολουθεί:

		Μέτρηση 9.7.2018	
Nuclide	E [keV]	eff πειραματική	σ %(1σ)
¹³⁷ Cs	661.66	0.0877	5.2705

Πίνακας 5.18: Αποτελέσματα μετρήσεων πηγής ¹³⁷Cs από δείγμα ALMERA.

Στη συνέχεια ακολούθησε προσομοίωση της γεωμετρίας πηγής-ανχινευτή, προκειμένου να προσδιορισθούν τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του ανιχνευτή. Το υλικό του δείγματος προσομοιώθηκε ως λακτόζη με μοριακό τύπο: C₁₂H₂₂O₁₁. Η πυκνότητα της πηγής εκτιμήθηκε ίση με 0.585 gr/cm³. Τα αποτελέσματα της προσομοίωσης και τα αντίστοιχα πειραματικά παρατίθενται σε επόμενη παράγραφο της παρούσας Δ.Δ.

Πειραματική βαθμονόμηση HPGe (γ) με πηγή όγκου ⁴⁰Κ

Με στόχο την απόκτηση ενός πειραματικού σημείου για την βαθμονόμηση του ανιχνευτή HPGe(γ) στην περιοχή των υψηλών ενεργειών παρασκευάσθηκε πηγή ⁴⁰K (εκπέμπει μοναδικό φωτόνιο στα 1460.82 keV και έχει χρόνο ημιζωής 1.248·10⁹ έτη). Για το σκοπό αυτό χρησιμοποιήθηκε άλας K₂CO₃ το οποίο ήταν διαθέσιμο στο ΕΡΠ. Το πρόβλημα με αυτό το υλικό είναι ότι είναι πολύ υγροσκοπικό και για το λόγο αυτό υπάρχει δυσκολία στον προσδιοριοσμό του καθαρού βάρους του ξηρού υλικού. Ακολουθώντας τα πρωτόκολλα αφύγρανσης που χρησιμοποιούνται στο ΕΡΠ, ποσότητα K₂CO₃ αφού ζυγίσθηκε, τοποθετήθηκε σε κλίβανο για 24hr στους 50°C σε κάψα. Στη συνέχεια, το δείγμα ζυγίσθηκε πάλι και προσδιορίσθηκε η υγρασία του σε 0.6%. Από το υλικό αυτό χρησιμοποιήθηκαν τα 3.936 gr τα οποία πλήρωσαν το φιαλίδιο μέχρι το ύψος των 3.5 cm. Το φιαλίδιο σφραγίσθηκε με τεφλόν και ταινία. Η πυκνότητα της πηγής η οποία ισούται με 0.759 gr/cm³. Προκειμένου να υπολογίσθεί η ενεργότητα ⁴⁰K στην πηγή έγιναν οι παρακάτω υπολογισμοί:

Η μοριακή μάζα του K_2CO_3 είναι 138.2055 gr/mol και η αναλογία των επί μέρους στοιχείων είναι:

Στοιχείο	Ατομικό βάρος	Πλήθος ατόμων στην ένωση	% μάζα
К	39.09830	2	56.5799
С	12.01070	1	8.6905
0	15.99940	3	34.7296

Πίνακας 5.19: Στοιχεία μοριακού τύπου K₂CO₃.

Ως αποτέλεσμα, στα 3.936 gr δείγματος υπάρχουν 2.227 gr καλίου. Λαμβάνοντας υπόψη την ισοτοπική σύσταση του καλίου (0.012% ⁴⁰K) και το χρόνο υποδιπλασιασμού του ⁴⁰K, η συνολική ενεργότητα ⁴⁰K της πηγής εκτιμήθηκε σε 70.93 Bq.

Η πηγή αυτή μετρήθηκε δύο φορές για χρόνο 86400sec προκειμένου να διαπιστωθεί η επαναληψιμότητα της μέτρησης. Τα αποτελέσματα φαίνονται στον πίνακα που ακολουθεί:
		Μέτρηση 23.5.2018		Μέτρηση 18.6	5.2018		
Nuclide	E [keV]	eff πειραματική	σ %(1σ)	eff πειραματική	σ %(1σ)	απόκλιση (%)	U - test
⁴⁰ K	1460.7	0.0351	5.0165	0.0349	5.0165	0.5833	0.0029

Πίνακας 5.20: Αποτελέσματα μετρήσεων πηγής ⁴⁰Κ.

Όπως διαπιστώνεται από τον παραπάνω πίνακα από τα U-test και τις αποκλίσεις που παρουσιάζονται, οι τιμές των αποδόσεων που προκύπτουν από τις δύο αυτές μετρήσεις δεν διαφέρουν είναι στατιστικά. Επιβεβαιώνεται λοιπόν η επαναληψιμότητα της μέτρησης.

Και σε αυτή τη περίπτωση ακολούθησε προσομοίωση της γεωμετρίας πηγής-ανχινευτή, προκειμένου – μέσω της σύγκρισης με τα πειραματικά απότελέσματα – να προσδιορισθούν τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του ανιχνευτή.

<u>Πειραματική βαθμονόμηση HPGe(γ) με πηγή όγκου ⁷Be</u>

Ένα από τα βασικότερα ισότοπα το οποίο απασχολεί ιδιαίτερα και στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. είναι το ⁷Be. Πρόκειται για ισότοπο κοσμικής προέλευσης το οποίο εκπέμπει μοναδικό φωτόνιο ενέργειας 477.6 keV και έχει χρόνο ημιζωής 53.22 ημέρες. Για το λόγο αυτό κρίθηκε σκόπιμο να παρασκευασθεί πηγή ⁷Be, προκειμένου να εκτιμηθεί η απόδοση του ανιχνευτή στη συγκεκριμένη ενέργεια. Η πηγή αυτή παρασκευάσθηκε στο ΕΠΤ-ΕΜΠ. Πρόκειται για μία πηγή από επιφανειακό χώμα το οποίο συλλέχθηκε μετά από επεισόδιο έντονης βροχόπτωσης.

Το σκεπτικό πίσω από αυτή την ιδέα είναι απλό. Καθώς το ⁷Be είναι ισότοπο κοσμικής προέλευσης το οποίο υπάρχει στην ατμόσφαιρα και αποτίθεται στην επιφάνεια του εδάφους. Ως αποτέλεσμα, το επιφανειακό χώμα είναι πλούσιο στο ισότοπο αυτό. Για το λόγο αυτό συλλέχθηκε ποσότητα επιφανειακού χώματος, η οποία ξηράνθηκε προκειμένου να αφαιρεθεί κατά το δυνατόν η υγρασία και εν συνεχεία κοσκινίσθηκε. Στη συνέχεια, μετά από ομογενοποίηση του χώματος, λήφθηκαν δύο δείγματα του υλικού τα οποία αναλύθηκαν στις γ-φασματοσκοπικές διατάξεις του ΕΠΤ-ΕΜΠ Η ενεργότητα του ⁷Be στο δείγμα εκτιμήθηκε σε 40 Bq/kg ± 7.6% (1σ). Με το υλικό αυτό παρασκευάσθηκε μία πηγή σε γεωμετρία του γυάλινου φιαλιδίου, με πλήρωση έως τα 3.5 cm. Το φιαλίδιο στη συνέχεια σφραγίσθηκε.

Και σε αυτή τη περίπτωση έγιναν δύο μετρήσεις με την πηγή για έλεγχο της επαναληψιμότητας. Η πρώτη μέτρηση έγινε για 241015sec και η δεύτερη 507157sec. Ο λόγος που επιλέχθησαν τόσο μεγάλοι χρόνοι μέτρησης και στις δύο περιπτώσεις ήταν για την επίτευξη όσο γίνεται υψηλότερης ακρίβειας της μέτρησης, λόγω της πολύ χαμηλής ραδιενέργειας του δείγματος (40 Bq/kg με ημερομηνία αναφοράς 20.7.2020). Τα αποτελέσματα των μετρήσεων φαίνονται στον πίνακα που ακολουθεί:

		Μέτρηση 27.7.2018		Μέτρηση 4.9.2018			
Nuclide	E [keV]	eff πειραματική	σ%(1σ)	eff πειραματική	σ%(1σ)	απόκλιση (%)	U - test
⁷ Be	477.6	0.1304	7.4353	0.1210	7.8663	7.2247	0.0871
Πίνακας 5.21: Αποτελέσματα μετρήσεων πηγής ⁷ Be.							

Από τον πίνακα αυτόν προκύπτει ότι οι δύο μετρήσεις δεν διαφέρουν στατιστικά συμαντικά.

Στην πορεία, και προκειμένου να διερευνηθεί η ομοιογένεια της αρχικής πηγής από την οποία προέκυψε το δείγμα βαθμονόμησης, έχοντας πάντα εις γνώσιν το ότι έχει περάσει αρκετός χρόνος από την ημερομηνία αναφοράς της πηγής δημιουργήθηκε ένα δεύτερο

δειγμα με χώμα από την πηγή. Το φιαλίδιο πληρώθηκε και σε αυτή τη περίπτωση μέχρι τα 3.5cm και σφραγίσθηκε. Πραγματοποιήθηκε μέτρηση στον HPGe(γ) για χρονικό διάστημα 333340 sec. Ακολουθεί πίνακας που παρουσιάζονται τα αποτελέσματα από τις αναλύσεις που έγιναν (τις δύο αναλύσεις που έγιναν με το πρώτο φιαλίδιο, και την μία ανάλυση που έγινε με το δεύτερο φιαλίδιο) καθώς και ένα στατιστικό τεστ προκειμένου να παρουσιασθεί το κατά πόσο αυτές οι τιμές διαφέρουν ή όχι στατιστικά.

		Μέτρηση 27.7.2018		Μέτρηση 4.9.2018		δεύτερο δείγμα, μέτρηση 20.9.2018	
Nuclide	E [keV]	eff πειραματική	σ%(1σ)	eff πειραματική	σ%(1σ)	eff πειραματική	σ %(1σ)
⁷ Be	477.6	0.1304	7.4353	0.1210	7.8663	0.1112	8.7509

απόκλιση (%) δεύτερου		απόκλιση (%) δεύτερου	
δείγματος με πρώτη μέτρηση	U - test	δείγματος με δεύτερη μέτρηση	U - test
14.7615	0.1677	8.1237	0.0835

Πίνακας 5.22: Αποτελέσματα μετρήσεων πηγών ⁷Be.

Από τον πίνακα που προηγείται, διαπιστώνεται ότι οι δύο πηγές δεν διαφέρουν στατιστικά, οπότε επιβεβαιώνεται και η αρχική υπόθεση περί ομοιογένειας της αρχικής πηγής που είχε παραχθεί.

Και σε αυτή τη περίπτωση ακολούθησε προσομοίωση της γεωμετρίας πηγής-ανχινευτή, προκειμένου να προσδιορισθούν τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του ανιχνευτή. Όσον αφορά στο υλικό της πηγής που προσομοιώθηκε, καθώς το χώμα που συλλέχθηκε ήταν αμμώδους υφής έγιναν δύο δοκιμές προκειμένου να ελεγχθεί κατά πόσον η σύστασή του επιδρά σημαντικά συην απόδοση. Συγκεκριμένα δοκιμάσθηκαν ως υλικά τα CaCO₃ και SiO₂ μα πυκνότητα 1.236 gr/cm³. Τα αποτελέσματα των προσομοιώσεων φαίνονται στον πίνακα 3.23 που ακολουθεί.

Σύσταση χώματος	σταση χώματος Απόδοση για το ⁷ Βε στα 477.6 keV		Απόκλιση (%)	U-test	
SiO2	0.12854	0.107	0.000	0.075	
CaCO ₃	0.12842	0.1069	0.000	0.075	

Πίνακας 5.23: Αποδόσεις ανιχνευτή HPGe(γ) για τα δύο διαφορετικά είδη σύστασης χώματος.

Όπως διαπιστώνεται από τον πίνακα αυτό, οι τιμές της απόδοσης δεν διαφέρουν στατιστικά σημαντικά για τα δύο υλικά, κάτι που είναι αναμενόμενο λόγω της σχετικά υψηλής ενέργειας των φωτονίων αλλά και τις γεωμετρίας της πηγής, η οποία παρουσιάζει μικρή αυτοαπορρόφηση. Στη συνέχεια, θα επιλεχθεί σαν υλικό πηγής το SiO₂, κυρίως λόγω της προέλευσης του χώματος.

5.3.1.3.2 Προσδιορισμός τελικών διαστάσεων ανιχνευτή

Βασιζόμενοι στις πειραματικές τιμές της απόδοσης που παρουσιάσθηκαν προηγουμένως και μετά από σειρά προσομοιώσεων, κατέστη δυνατός ο προσδιορισμός των γεωμετρικών χαρακτηριστικών του ανιχνευτή HPGe(γ) για τον οποίο υπάρχει σύγκλιση των πειραματικών αποτελεσμάτων με αυτά της προσομοίωσης για τις περισσότερες ενέργειες που χρησιμοποιήθηκαν. ΗΤα αποτελέσματα αυτά παρουσιάζονται στον Πίνακα 5.24, ενώ στο Σχήμα 5.23 φαίνεται η γεωμετρία προσομοίωσης.

<u>ΗΡGe (γ) του ΕΡΠ</u>

Απόδοση ανιχνευτή	20.6%
Γεωμετρία ανιχνευτή	Well-type
Διάμετρος ανιχνευτή	54.4 mm
Μήκος ανιχνευτή	57.0 mm
Απόσταση από το παράθυρο	10.0 mm
Βάθος πηγαδιού (core hole depth)	35.5 mm
Διάμετρος πηγαδιού (core hole diameter)	22.5 mm
Απόσταση κρυστάλλου από περίβλημα	10.9 mm
Πάχος περιβλήματος	1.5 mm
Πάχος εμπρόσθιας νεκρής ζώνης	1.5 mm
Πάχος εσωτερικής περιφερειακής νεκρής ζώνης	1.5 mm
Πάχος εσωτερικής νεκρής ζώνης στον πυθμένα του «πηγαδιού»	1.5 mm

Πίνακας 5.24: Χαρακτηριστικά ανιχνευτή HPGe(γ) σύμφωνα με το πιστοποιητικό του και τις προσομοιώσεις. Με έντονα γράμματα είναι τα στοιχεία τα οποία προσδιορίσθηκαν από τη σύγκριση πειραματικών τιμών με τις τιμές προσομοίωσης



Σχήμα 5.23 Απεικόνιση της γεωμετρίας με χρήση του προγράμματος GVIEW2D.

Στον πίνακα 5.24 φαίνεται ότι το πάχος των dead layers οι οποίες προέκυψαν για τον ανιχνευτή HPGe (γ) είναι σχετικά μεγάλο. Το γεγονός αυτό δεν πρέπει να προξενεί ιδιαίτερη εντύπωση, καθώς είναι γνωστό από την βιβλιογραφία (Laborie et al.,2000, 2002) ότι το πάχος των dead layers ενός ανιχνευτή τύπου «φρέατος» μπορεί να φτάσει τα 0.3-0.4mm μερικές εβδομάδες μετά την κατασκευή τους, και πολλές φορές να φτάσει και στα 0.8mm μετά από κάποιους μήνες, ακόμα και στα 2mm. Πρέπει στο σημείο αυτό ακόμα να τονισθεί ότι το πάχος αυτό των dead layers το οποίο εκτιμήθηκε δεν είναι το πραγματικό πάχος, αλλά λαμβάνει υπόψη και άλλα φαινόμενα, όπως ανομοιορφία του ανιχνευτή και του ηλεκτρικού πεδίου μέσα σε αυτόν κλπ.

Στον πίνακα 5.25 που ακολουθεί παρουσιάζονται για κάθε ενέργεια φωτονίου, οι πειραματικές αποδόσεις και οι αποδόσεις που προκύπτουν από τις προσομοιώσεις, με τις αβεβαιότητές τους (σε επίπεδο 1σ), καθώς επίσης η απόκλιση και οι τιμές της μεταβλητής U (U-test). Οι τιμές δεν αναγράφονται με το σωστό πλήθος σημαντικών ψηφίων, ώστε να είναι ευχερέστερη η σύγκρισή τους.

Ισότοπο	E [keV]	eff πειραματική	σ %(1σ)	eff προσομοίωσης (peak)	σ %(1σ)	απόκλιση (%)	U - test
²⁴³ Am	74.66	0.5657	5.0068	0.52209	0.0101	7.7086	0.8710
²²⁶ Ra	186.21	0.3678	5.0608	0.34968	0.0253	4.9334	0.3586
²¹⁴ Pb	295.22	0.1643	5.0206	0.20168	0.0576	-22.7691	0.7450
²¹⁴ Pb	351.93	0.1299	5.0128	0.16297	0.0758	-25.4618	0.6597
⁷ Be	477.60	0.1112	8.7509	0.11480	0.1033	-3.2648	0.0415
¹³⁷ Cs	661.66	0.0877	5.2705	0.08365	0.1641	4.6376	0.0771
⁴⁰ K	1460.70	0.0349	5.0165	0.03719	0.3620	-6.4282	0.0447

Πίνακας 5.25 Απόδοση του ανιχνευτή HPGe (γ) όπως εκτιμήθηκαν πειραματικά και μέσω προσομοίωσης

Όπως διαπιστώνεται από τον πίνακα 5.25, για ορισμένες τιμές της ενέργειας (επισημαίνονται με γκρι υπόστρωμα) και συγκεκριμένα για τις ενέργειες που εκπέμπει φωτόνια ο ²⁴¹Pb θυγατρικά του ²²⁶Ra, παρατηρείται μεγαλή διαφορα μεταξύ πειραματικών σημείων και σημείων προσομοίωσης – αν και όχι στατιστικά σημαντική. Αυτό παρουσιάσθηκε σε όλες τις δοκιμές που έγιναν. Μία πιθανή εξήγηση για το φαινόμενο αυτό έχει να κάνει με τη φύση των θυγατρικών του ²²⁶Ra. Το ²²⁶Ra είναι ο πατρικός πυρήνας του ²²²Rn το οποίο εν συνεχεία διασπαται σε ²¹⁴Pb. Το ραδόνιο είναι αέριο ευγενές και χημικά αδρανές και διαφεύγει εύκολα από τη θέση στην οποία παράγεται. Είναι λοιπόν πιθανόν, να υπάρχει μικρή συγκέντρωση του ραδονίου σε κενό χώρο που σχηματίζεται στην κορυφή του δοχείου, ή ακόμα και μικρή διαφυγή του από το δοχείο. Και στις δύο περιπτώσεις το αποτέλεσμα θα είναι η εκτίμηση χαμηλότερης τιμή για την απόδοση από την αναμενόμενη, αν όλο το ραδόνιο – και κατά συνέπεια και ο ²¹⁴Pb – ήταν ομοιόμορφα κατανεμημένο μέσα στην πηγή. Γι'αυτό το λόγο αποφασίθηκε τα δύο αυτά πειραματικά σημεία να μην χρησιμοποιηθούν κατά τη διαδικασία προσδιορισμού των γεωμετρικών χαρακτηριστικών του ανιχνευτή.

5.3.1.3.3 Βαθμονόμηση απόδοσης ανιχνευτή – καμπύλες βαθμονόμησης

Μετά από κάθε προσπάθεια βαθμονόμησης του ανιχνευτή, είτε με πηγές είτε με τη βοήθεια προσομοιώσεων, προκύπτει μία σειρά δεδομένων ενέργειας των ισοτόπων και απόδοσης του ανιχνευτή. Συνδυάζοντάς τα σε ένα γράφημα προκύπτουν καμπύλες απόδοσης για τον ανιχνευτή, οι οποίες παρέχουν πληροφορίες για την συμπεριφορά του σε όλο το ενεργειακό εύρος που έχει καλυφθεί με τα ισότοπα της πηγής βαθμονόμησης. Λόγω των λίγων πειραματικών σημείων τα οποία παρήχθησαν με τις πηγές βαθμονόμησης που

ı.

παρασκευάστηκαν δεν κατέστη δυνατή η δημιουργία καμπύλης πειραματικής βαθμονόμησης. Οπότε για τον ανιχνευτή HPGe(γ) δεν προκύπτει πειραματική καμπύλη βαθμονόμησης. Έχοντας όμως καταλήξει στο γεωμετρικό μοντέλο το οποίο περιγράφει τον ανιχνευτή με χρήση του κώδικα PENELOPE, πέρα από τις προσομοιώσεις που αντιστοιχούν στις ενέργειες της πειραματικής βαθμονόμησης προσομοιώθηκαν κι άλλα σημεία, για την πληρότητα της καμπύλης. Οπότε, ήταν πλέον δυνατή η προσαρμογή σε κατάλληλη συνάρτηση ανδρομής με χρήση των σημείων της προσομοίωσης. Τα παραπάνω φαίνονται στα σχήματα που ακολουθούν.



Σχήμα 5.24 Σημεία απόδοσης ανιχνευτή, πειραματικά και μέσω προσομοίωσης



Σχήμα 5.25 Καμπύλη ολικής απόδοσης ανιχνευτή μέσω προσομοίωσης

Εκτός από τον προσδιορισμό της καμπύλης απόδοσης φωτοκορυφής της ανιχνευτικής διάταξης, προσδιορίσθηκε και ο λόγος peak-to-total ratio, ptt, καθώς και αντίστροφος (total-to-peak ratio, ttp) για μία σειρά ενεργειών (σχήμα 5.27). Στον πίνακα 5.26 που ακολουθεί παρατίθενται οι τιμές της ολικής (total) απόδοσης και ο λόγος total to peak με τις αβεβαιότητές τους σε επίπεδο 1σ. Σημειώνεται ότι οι τιμές δεν δίνονται με το σωστό πλήθος σημαντικών ψηφίων.



Σχήμα 5.26 Καμπύλη	απόδοσης	ανιχνευτή	μέσω	προσομοίωσης
	4/10000115	aviveoui	μεσω	προσομοιωσης

Ισότοπο	E [keV]	eff πειραματική	σ %(1σ)	eff προσομοίωσης (peak)	σ %(1σ)	ολική (total) απόδοση	σ %(1σ)	total/peak	σ %(1σ)
²⁴³ Am	74.66	0.5657	5.0068	0.52209	0.0101	0.66730	0.0099	1.27812	0.0141
²²⁶ Ra	186.21	0.3678	5.0608	0.34968	0.0253	0.56005	0.0219	1.60160	0.0334
²¹⁴ Pb	295.22	0.1643	5.0206	0.20168	0.0576	0.46503	0.0405	2.30575	0.0704
²¹⁴ Pb	351.93	0.1299	5.0128	0.16297	0.0758	0.43726	0.0490	2.68314	0.0903
⁷ Be	477.60	0.1112	8.7509	0.11480	0.1033	0.39510	0.0582	3.44166	0.1186
¹³⁷ Cs	661.66	0.0877	5.2705	0.08365	0.1641	0.35229	0.0390	4.21132	0.1686
⁴⁰ K	1460.70	0.0349	5.0165	0.03719	0.3620	0.26758	0.1371	7.19565	0.3871
									_

Πίνακας 5.26: Απόδοση του ανιχνευτή HPGe(γ) που προέκυψε με προσομοίωση και πειραματικά. Στον πίνακα παρουσιάζονται ακόμα οι τιμές της ολικής απόδοσης και ο λόγος total/peak



Σχήμα 5.27 Καμπύλη λόγου total to peak efficiency για τον ανιχνευτή HPGe (γ)

5.3.2 Βαθμονόμηση απόδοσης των ανιχνευτών HPGe του ΕΠΤ - ΕΜΠ

Στα πλαίσια της Δ.Δ. πραγματοποιήθηκαν αναλύσεις δειγμάτων εκτός απο τους ανιχνευτές του ΕΡΠ και σε ανιχνευτές του ΕΠΤ-ΕΜΠ. Για το λόγο αυτό, οι συγκεκριμένοι ανιχνευτές του ΕΠΤ-ΕΜΠ έπρεπε να βαθμονομηθούν για τις δύο γεωμετρίες φίλτρου αέρα 1 και 2, για τι οποίες βαθμονομήθηκαν και οι ανιχνευτές του ΕΡΠ. Επισημαίνεται ότι για τους ανιχνευτές του Ε.Π.Τ.-Ε.Μ.Π. είχαν ήδη προσδιορισθεί τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά τους σε προηγούμενες εργασίες.

5.3.2.1 Ανιχνευτής HPGe του ΕΠΤ-ΕΜΠ, με σχετική απόδοση 33.8%

Πρόκειται για έναν ομοαξονικό (coaxial) ανιχνευτή υπερκάθαρου γερμανίου (HPGe) με σχετική απόδοση 33.8%. Τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του παρατίθενται στον πίνακα 5.27 που ακολουθεί:

Απόδοση ανιχνευτή	33.8%
Γεωμετρία ανιχνευτή	ομοαξονικός
Διάμετρος ανιχνευτή	5.33 cm
Μήκος ανιχνευτή	6.5 cm
Ενεργός περιοχή που βλέπει το παράθυρο	24.15 cm ²
Απόσταση από το παράθυρο	0.5 cm

<u>ΗΡGe(1) του ΕΠΤ-ΕΜΠ</u>

Πίνακας 5.27: Χαρακτηριστικά ανιχνευτή HPGe(1) του ΕΠΤ-ΕΜΠ σύμφωνα με το πιστοποιητικό του (Δ.Ε. Βασιλοπούλου, 2008).

Όπως φαίνεται από τον πίνακα 5.27 όπου παρατίθενται συγκεντρωμένες οι διαθέσιμες πληροφορίες από το πιστοποιητικό του ανιχνευτή υπερκάθαρου γερμανίου του ΕΠΤ-ΕΜΠ στο εξής ο συγκεκριμένος ανιχνευτής του Ε.Π.Τ.-Ε.Μ.Π. με απόδοση 33.8% θα αναφέρεται για ευκολία ως HPGe(1) – λείπουν ορισμένες βασικές διαστάσεις και βασικά χαρακτηριστικά, τα οποία είναι απαραίτητα για τον ορισμό μίας σωστής γεωμετρίας προκειμένου, να γίνει η προσομοίωση, όπως οι διαστάσεις του dead layer, οι διαστάσεις της οπής (finger), το πάχος του παραθύρου AI το οποίο βρίσκεται στο πάνω τμήμα του ανιχνευτή. Προηγούμενες εργασίες έχουν ασχοληθεί με των προσδιορισμό ακριβών γεωμετρικών χαρακτηριστικών των ανιχνευτών γερμανίου του ΕΠΤ-ΕΜΠ (Δ.Ε. Βασιλοπούλου, 2008; Δ.Ε. Παπαδιονυσίου, 2015). Ειδικότερα, η διαδικασία για τον προσδιορισμό των ακριβών γεωμετρικών χαρακτηριστικών του κρυστάλλου HPGe(1) περιγράφεται στην Δ.Ε. η Δ. Βασιλοπούλου, 2008. Στη εργασία εκείνη είχαν χρησιμοποιηθεί ως αφετηρία των προσομοιώσεων πληροφορίες για της διαστάσεις οι οποίες ήταν διαθέσιμες στη διεθνή βιβλιογραφία. Κρατώντας αμετάβλητες τις διαστάσεις που δίδονται στο πιστοποιητικό του ανιχνευτή HPGe (1), με προσομοίωση προσδιορίσθηκαν οι διαστάσεις του πίνακα 5.29.

Η θωράκιση του ανιχνευτή HPGe(1) είναι κυβική, με κυλιόμενο «κάλυμμα», τύπου "roll top". Έχει και αυτή 3 στρώματα (από μέσα προς τα έξω: χαλκός-κασσίτερος-ατσάλι). Μετά από μελέτη (Δ.Ε. η Δ. Βασιλοπούλου, 2008) οι τελικές διαστάσεις για τον ανιχνευτή HPGe(1) που είχαν προσδιορισθεί φαίνονται στο σχήμα 5.28 που ακολουθεί.

Πάχος παραθύρου ΑΙ	1.5mm
Πάχος άνω dead layer	760 μm
Πάχος πλαγίου dead layer	700 μm
Ύψος οπής	50 mm
Διάμετρος οπής	12 mm

Πίνακας 5.28: Τελικές τιμές γεωμετρικών χαρακτηριστικών του ανιχνευτή HPGe(1) (Δ.Ε. Βασιλοπούλου, 2008).

Με δεδομένη πλέον τη γεωμετρία του ανιχνευτή, πραγματοποιήθηκαν προσομοιώσεις για τη βαθμονόμηση απόδοσης για τις δύο γεωμετρίες φίλτρου 1 και 2 και για συγκεκριμένες μόνον ενέργειες φωτονίων, που αντιστοιχούν στα ισότοπα ενδιαφέροντος. Τα αποτελέσματα της βαθμονόμησης παρατίθενται στον πίνακα 5.29.

E (kev)	Ισότοπο	Απόδοση φωτοκορυφής γεωμετρίας (1)		Απόδοση φωτοκορυφής γεωμετρίας (2)		
		τιμή	σ% (1σ)	τιμή	σ% (1σ)	
477.6	⁷ Be	0.046	0.135	0.052	0.190	
661.62	¹³⁷ Cs	0.035	0.166	0.039	0.262	
1460.82	⁴⁰ K	0.018	0.361	0.021	0.516	

Πίνακας 5.29: Τιμές απόδοσης φωτοκορυφής του ανιχνευτή HPGe (1) μέσω προσομοίωσης για τις 2 διαφορετικές γεωμετρίες δείγματος.

5.3.2.2 Ανιχνευτής HPGe του ΕΠΤ-ΕΜΠ με σχετική απόδοση 40.9%

Στα πλαίσια της Δ.Δ. πραγματοποιήθηκαν αναλύσεις και σε έναν ακόμα ανιχνευτή γερμανίου του ΕΠΤ-ΕΜΠ, με απόδοση 40.9%, που στο εξής για συντομία θα αναφέρεται ως HPGe(2). Και σε αυτή την περίπτωση πραγματοποιήθηκαν προσομοιώσεις προκειμένου να εκτιμηθεί η απόδοση του ανιχνευτή για τις ενέργειες ενδιαφέροντος, για τις χρησιμοποιούμενες γεωμετρίες δείγματος.

Ο προσδιορισμός του κατάλληλου γεωμετρικού μοντέλου το οποίο περιγράφει όσο γίνεται πιο πιστά τα πειραματικά αποτελέσματα είχε γίνει στα πλαίσια της Δ.Ε. η Μ. Παπαδιονυσίου, το 2015. Στη συνέχεια, το γεωμετρικό αυτό μοντέλο, εισάγεται στο αρχείο εισόδου .geo του κώδικα PENELOPE 2011 για την μεταφορά της απόδοσης του ανιχνευτή στις γεωμετρίες και στα υλικά που ενδιαφέρουν.

Από τις προσομοιώσεις που είχαν γίνει στα πλαίσια της Δ.Ε. Μ. Παπαδιονυσίου, το 2015 προέκυψαν οι τιμές που του πίνακα (Πίνακας 5.30) που ακολουθεί. Οι τιμές αυτές, χρησιμοποιήθηκαν ως βάση για τις προσομοιώσεις που έγιναν στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. προκειμένου να προκύψουν οι τιμές απόδοσης του ανιχνευτή για τις γεωμετρίες που ενδιαφέρουν. Τα αποτελέσματα της βαθμονόμησης παρατίθενται στον Πίνακα 5.31.

Οι τιμές των αποδόσεων οι οποίες προσδιορίσθηκαν για κάθε έναν από τους παραπάνω ανιχνευτές χρησιμοποιήθηκαν κατά τις αναλύσεις που πραγματοποιήθηκαν για τον προσδιορισμό της ενεργότητας των ισοτόπων ενδιαφέροντος στα φίλτρα που συλλέχθηκαν. Στο κεφάλαιο που ακολουθεί παρουσιάζονται τα ισότοπα που ανιχνεύθηκαν κατά τις γφασματοσκοπικές αναλύσεις και γίνεται εκτενής μελέτη της κύμανσής τους και συσχέτισή τους με μετεωρολογικές παραμέτρους και άλλα φαινόμενα που παρουσιάζονται στην ατμόσφαιρα.

Εξωτερική διάμετρος ανιχνευτή	58.5 mm
Μήκος ανιχνευτή	61.0 mm
Απόσταση κρυστάλλου από παράθυρο	7 mm
Πάχος παραθύρου	1.5 mm
Πάχος τοιχώματος κρυοστάτη	0.5 mm
Απόσταση κρυστάλλου-περιβλήματος	6.0 mm
Εμπρόσθιο dead layer	550 μm
Περιφερειακό dead layer	700 μm
Κάτω dead layer	700 μm
Εσωτερική διάμετρος οπής (finger)	12.6 mm
Μήκος οπής (finger)	50.0 mm

Πίνακας 5.31: Τελικές τιμές γεωμετρικών χαρακτηριστικών του ανιχνευτή HPGe(2), (Δ.Ε. Παπαδιονυσίου, 2011).

E (kev)	Ισότοπο	Απόδοση φωτοκορυφής γεωμετρίας (1)		Απόδοση φωτοκορυφής γεωμετρίας (2)	
		τιμή	σ% (1σ)	τιμή	σ% (1σ)
477.6	⁷ Be	0.048	0.126	0.052	0.193
661.62	¹³⁷ Cs	0.037	0.140	0.039	0.144
1460.82	⁴⁰ K	0.019	0.326	0.021	0.460

Πίνακας 5.32: Τιμές απόδοσης φωτοκορυφής του ανιχνευτή HPGe(2) μέσω προσομοίωσης για τις 2 διαφορετικές γεωμετρίες δείγματος φίλτρου. Συσχέτιση της ενεργότητας ραδιενεργών ισοτόπων του ατμοσφαιρικού αερολύματος με μετεωρολογικές παραμέτρους και άλλα φαινόμενα

6.1 Εισαγωγή

Από τον Μάρτιο του 2011 το Εργαστήριο Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος του ΕΚΕΦΕ – «Δημόκριτος» (ΕΡΠ) εισήγαγε και άρχισε να εφαρμόζει ένα πρωτόκολλο δειγματοληψίας ατμοσφαιρικού αερολύματος, με χρήση του αδρανειακού δειγματολήπτη πολλαπλών σταδίων υψηλού όγκου Andersen GS2310, για τον οποίο έγινε λόγος σε προηγούμενο κεφάλαιο. Ο σκοπός των δειγματοληψιών αυτών είναι η παρακολούθηση του φυσικού ραδιενεργού υποβάθρου και η μελέτη της κύμανσης της ενεργότητας (ειδικής ραδιενέργειας Βq·m⁻³) των ραδιενεργών ισοτόπων που ανιχνεύονται στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα. Οι συστηματικές αυτές μετρήσεις δίνουν επιπλέον στο εργαστήριο τη δυνατότητα να παρέχει πληροφορίες για την ανίχνευση ραδιενεργών ισοτόπων στην ατμόσφαιρα σε περιπτώσεις έκτακτης ανάγκης, όπως είναι η περίπτωση πυρηνικού ή ραδιολογικού ατυχήματος που περιλαμβάνει έκκληση ραδιενέργειας στο περιβάλλον.

Λόγω της πρακτικής αυτής και των δειγματοληψιών και αναλύσεων που πραγματοποιούνται, το ΕΡΠ έχει γίνει μέλος του δικτύου «**Ring of 5**» (Ro5), ενός δικτύου ευρωπαϊκών εργαστηρίων που διαθέτουν κατάλληλο εξοπλισμό προκειμένου να διενεργούν τόσο μετρήσεις ρουτίνας, όσο και μετρήσεις σε έκτακτες συνθήκες, για τον προσδιορισμό των επιπέδων ραδιενέργειας στην ατμόσφαιρα. Στην περίπτωση που ένα μέλος του δικτύου ανιχνεύσει κάποιο ισότοπο το οποίο θα μπορούσε να συνδέεται με πιθανό ατύχημα, μέσω εσωτερικού πρωτοκόλλου επικοινωνίας, ενημερώνονται και κινητοποιούνται και τα υπόλοιπα εργαστήρια-μέλη τα οποία πραγματοποιούν μετρήσεις, με σκοπό την εκτίμηση της διασποράς του ισοτόπου στην ευρύτερη περιοχή της Ευρώπης.

Το κεφάλαιο αυτό, αφορά στην παρουσίαση των αποτελεσμάτων των δειγματοληψιών και των αναλύσεων που έγιναν με το παραπάνω πρωτόκολλο και οι οποίες οδήγησαν στον προσδιορισμό ισοτόπων που μπορούν να χρησιμοποιηθούν ως ιχνηθέτες ατμοσφαιρικών διεργασιών. Συγκεκριμένα, θα παρουσιαστεί η κύμανση της ενεργότητάς τους και τα συμπεράσματα τα οποία εξάγονται από τη μελέτη της κύμανσης αυτής. Επιπλέον, θα παρουσιαστούν και ορισμένα έκτακτα περιστατικά τα οποία ενεργοποίησαν το δίκτυο Ro5 κατά την περίοδο εκπόνησης της παρούσας Δ.Δ., τα σχετικά αποτελέσματα των αναλύσεων, καθώς και τα συμπεράσματα που προέκυψαν βάσει των αναλύσεων αυτών. Από αυτή τη συνεργασία προέκυψε και η δημοσίευση (Masson et al., 2018).

6.2 Ανάλυση κύμανσης της ενεργότητας του ⁷Be

Ένα από τα βασικά ισότοπα που ανιχνεύθηκε και μελετήθηκε στα πλαίσια της Δ.Δ. ήταν το ισότοπο ⁷Be. Στην παράγραφο αυτή θα παρουσιασθούν τα αποτελέσματα των δειγματοληψιών και αναλύσεων για το ισότοπο αυτό με τεχνικές γ-φασματοσκοπίας, καθώς και οι συσχετίσεις του με διάφορες περιβαλλοντικές και άλλες εποχικές παραμέτρους. Στα πλαίσια της Δ.Δ. πραγματοποιήθηκε επίσης και ανάλυση της κατανομής μεγέθους των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος πάνω στα οποία είναι προσκολλημένο το ⁷Be, ενώ επιπλέον διερευνήθηκε και η συμπεριφορά των ΑΣ και η τάση του ισοτόπου να προσκολλάται σε σωματίδια συγκεκριμένου εύρους μεγεθών.

6.2.1 Εποχική κύμανση της ενεργότητας του ⁷Be

Από τη σχετική βιβλιογραφία διαπιστώνεται ότι τα επίπεδα του ισοτόπου ⁷Be στον ατμοσφαιρικό αέρα παρουσιάζουν μία έντονη εποχική εξάρτηση (Likuku 2006; Duenas et al., 2009; Ioannidou et al., 2005). Η εποχική αυτή κύμανση του ισοτόπου ⁷Be στον ατμοσφαιρικό αέρα έχει αποδοθεί σε μία σειρά από διεργασίες όπως:

- Εναλλαγή αερίων μαζών μεταξύ στρατόσφαιρας και τροπόσφαιρας
- Εποχική κύμανση του ρυθμού κατακόρυφης ανάμειξης εντός της τροπόσφαιρας
- Εποχική κύμανση του ρυθμού μετακίνησης των αερίων μαζών από τους πόλους προς τα μέσα γεωγραφικά πλάτη
- Ατμοσφαιρικές κατακρημνίσεις

Στο σχήμα 6.1 που ακολουθεί, παρουσιάζεται η χρονοσειρά μετρήσεων της ενεργότητας του ⁷Be, από τον Απρίλιο του 2011 οπότε και τέθηκε σε εφαρμογή το πρωτόκολλο δειγματοληψίας, μέχρι και τον Δεκέμβριο του 2017.



Σχήμα 6.1 Ενεργότητα ⁷Be στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα στην Αθήνα (37.99500°N, 23.81600°E - 270 m a.s.l.) για την χρόνικη περίοδο Απρίλιος 2011 - Δεκέμβριος 2017.

Στο γράφημα του σχήματος 6.1 παρουσιάζεται η κύμανση της ενεργότητας του ⁷Be σε εβδομαδιαία και μηνιαία¹ βάση. Η συνδυασμένη² τυπική αβεβαιότητα των μετρήσεων εκτιμήθηκε περί το 10%, με την αβεβαιότητα κατά την γ-φασματοσκοπική ανάλυση των δειγμάτων να είναι η κύρια συνιστώσα. Άλλες πηγές αβεβαιότητας που ελήφθησαν υπόψη είναι: η αβεβαιότητα λόγω της βαθμονόμησης της ανιχνευτικής διάταξης (2.5%) και λόγω της μέτρησης της παροχής της αντλίας (2%). Όλες οι άλλες αβεβαιότητες που συνδέονται με τη διαδικασία, θεωρήθηκαν αμελητέες ως προς τη συνεισφορά τους. Όπως παρατηρείται, η ενεργότητα του ⁷Be κυμαίνεται μεταξύ 0.5 mBq/m³ και 14.5 mBq/m³, με μέση τιμή (± τυπική απόκλιση) για όλη την περίοδο δειγματοληψίας 4.73 ± 2.72 mBq/m³. Οι παραπάνω τιμές είναι σε συμφωνία με τα αποτελέσματα αντίστοιχων δημοσιεύσεων οι οποίες έχουν γίνει στο ίδιο ή σε παραπλήσιο γεωγραφικό πλάτος³ με αυτό του σταθμού μέτρησης του ΕΡΠ και οι οποίες παρουσιάζονται στον Πίνακα 6.1 στην επόμενη σελίδα.

Πόλη	⁷ Be (mBq/m ³)		
Μάλαγα (Ισπανία)	Ελάχιστη τιμή: 2.5 Μέγιστη τιμή: 14.9	(Duenas et al., 2009)	
Λισαβόνα (Πορτογαλία)	Μέση Τιμή: 3.47	(Carvalho et al., 2013)	
Θεσσαλονίκη (Ελλάδα)	Μέση τιμή: 5.02	(Ioannidou et al., 2005)	
Εδιμβούργο (Σκωτία)	Ελάχιστη τιμή: 0.63	(Likuku et al., 2006)	
	Νεγιστη τιμη: 6.54		
Ljungbyhed (Σουηδία)			
Visby (Σουηδία)	Ελάχιστη τιμή: 2.66 Μέγιστη τιμή: 4.77	(Aldahan et al., 2001)	
Kiruna (Σουηδία)	Ελάχιστη τιμή: 1.78		
	Νεγιστη τιμη: 2.09		
Πρέστον (Αγγλία)	Ελαχιστη τιμη: 1.26	(Daish et al., 2005)	
	Μέγιστη τιμή: 4.74		
Neuherberg (Γερμανία)	Ελάχιστη τιμή: 1.4	(Winkler et al., 1998)	
	Μέγιστη τιμή: 6.7		
Αθήνα (Ελλάδα)	Ελάχιστη τιμή: 1.0	(Papandreou et al., 2011)	
	Μέγιστη τιμή: 10.9	· · ·	
Αθήνα (Ελλάδα)	Ελάχιστη τιμή: 2.5	(Savva et al., 2018)	
· · /	Μέγιστη τιμή: 9.2		
Αθήνα (Ελλάδα)	Ελάχιστη τιμή: 0.5	Τιμές Δ.Δ.	
,	Μέγιστη τιμή: 14.5	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	

Πίνακας 6.1 Ειδική ραδιενέργεια του ⁷Be σε διάφορες ευρωπαϊκές πόλεις βάσει της βιβλιογραφίας.

¹ Ως μέση τιμή των εβδομαδιαίων τιμών

² Combined standard uncertainty

³ Όπως έχει αναφερθεί σε προηγούμενο κεφάλαιο της Δ.Δ., υπάρχει έντονη εξάρτηση των συγκεντρώσεων του ⁷Be με το γεωγραφικό πλάτος, κυρίως λόγω της επίδρασης του μαγνητικού πεδίου της Γης το οποίο αυξάνεται σε υψηλά γεωγραφικά πλάτη (Duenas et al., 2015).

6.2.2 Κύμανση της ενεργότητας του ⁷Be συναρτήσει μετεωρολογικών παραμέτρων

Στην παράγραφο αυτή παρατίθεται η μελέτη που έγινε αναφορικά με την κύμανση της ενεργότητας του ⁷Be και την εξάρτησή της από διάφορες μετεωρολογικές παραμέτρους.

<u>Εξάρτηση από τη σχετική υγρασία</u>

Στο σχήμα 6.2 παρουσιάζεται η ενεργότητα του ⁷Be συναρτήσει των επιπέδων της σχετικής υγρασίας στο σταθμό μέτρησης του ΕΡΠ κατά τη διάρκεια της δειγματοληψίας. Από τη στατιστική επεξεργασία των αποτελεσμάτων που παρουσιάζονται στο γράφημα διαπιστώνεται ότι υπάρχει ασθενής αρνητική συσχέτιση με τα επίπεδα της σχετικής υγρασίας (r = -0.63, t_o= -14.9, N=333).



Σχήμα 6.2 Συσχέτιση της ενεργότητας του ⁷Be (mBq/m³) με τη σχετική υγρασία στο σταθμό μέτρησης του ΕΡΠ

Η συσχέτιση αυτή μπορεί να ερμηνευθεί από το ότι – όπως αναφέρθηκε και σε προηγούμενο κεφάλαιο της Δ.Δ. – τα ΑΣ ως υγροσκοπικά τείνουν να απορροφούν υγρασία από την ατμόσφαιρα, με αποτέλεσμα να αυξάνεται η διάμετρος και κατά συνέπεια το βάρος τους. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα να ευνοούνται οι μηχανισμοί βαρυτικής εναπόθεσης των σωματιδίων, οι οποίοι σε συνδυασμό με τους μηχανισμούς έκπλυσης και γενικά της υγρής εναπόθεσης έχουν ως αποτέλεσμα στην μείωση των επιπέδων ειδικής ραδιενέργειας του ⁷Be στην ατμόσφαιρα, καθώς αυτό απομακρύνεται από την ατμόσφαιρα (γενικά πρέπει να έχουμε υπόψη ότι οι μερες με βροχοπτωση είναι και ημερες με υψηλη σχετικη υγρασια αρα και αυτό επηρεάζει τη φαινομενικη εξαρτηση από την υγρασία). Το εύρημα αυτό έρχεται σε συμφωνία με την υπάρχουσα επί του θέματος βιβλιογραφία (Percot et al., 2013).

Εξάρτηση από το επίπεδο βροχοπτώσεων

Δύο είναι οι βασικές διεργασίες που συμβάλλουν στην εναπόθεση του ⁷Βė:

- μέσω διεργασιών βαρυτικής καθίζησης των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος (ξηρή εναπόθεση) και
- μέσω υγρών κατακρημνίσεων (υγρή εναπόθεση).

Στο σχήμα 6.3 που ακολουθεί παρουσιάζεται η χρονοσειρά των μετρήσεων ενεργότητας του ⁷Be, από κοινού με τη χρονοσειρά του επιπέδου βροχόπτωσης, όπως προσδιορίσθηκαν στον σταθμό μέτρησης ποιότητας ατμοσφαιρικού αερολύματος του ΕΡΠ. Από αυτή τη χρονοσειρά προέκυψε ότι κατά τη διάρκεια επεισοδίων έντονης βροχόπτωσης μετρήθηκαν σημαντικά χαμηλότερες τιμές ⁷Be, ενώ υψηλότερες συγκεντρώσεις σημειώθηκαν κατά τις περιόδους όπου επικρατούσαν «ξηρότερες» μετεωρολογικές συνθήκες. Ειδικότερα, προέκυψε ότι οι συγκεντρώσεις του ⁷Be ήταν κατά 25% χαμηλότερες κατά τις ημέρες με βροχόπτωση εν συγκρίσει με τις υπόλοιπες. Το συμπέρασμα αυτό είναι σύμφωνο με τη βιβλιογραφία, κάτι που δείχνει ότι η βροχόπτωση, μέσω του φαινομένου της έκπλυσης της ατμόσφαιρας, συνεισφέρει στην κύμανση της συγκέντρωσης του ισοτόπου (Duenas et al., 2009; Monaghan, 1989; Likuku, 2006).



Σχήμα 6.3 Συσχέτιση της ενεργότητας του ⁷Be με τα επίπεδα βροχοπτώσεων στο σταθμό μέτρησης

Το ίδιο μοτίβο προκύπτει και από τη βιβλιογραφία (Monaghan, 1989; Aldahan et al., 2001; Likuku 2006; Duenas et al., 2009). Αντίστοιχα, παρατηρείται και αύξηση της συγκέντρωσης του ⁷Be όταν επικρατούν ξηρές ατμοσφαιρικές συνθήκες, λόγω της μειωμένης εναπόθεσης των ΑΣ στο έδαφος. Το φαινόμενο αυτό έχει σημειωθεί σε αρκετές μελέτες (Monaghan 1989; Likuku 2006; Duenas et al. 2009). Μάλιστα, μελέτες έχουν δείξει ότι οι βροχοπτώσεις είναι πιο αποδοτικές στην εναπόθεση του ⁷Be σε σχέση με της χιονοπτώσεις (Ioannidou et al., 2005). Το γεγονός ότι οι βροχοπτώσεις δεν είναι η μόνη παράμετρος που καθορίζει την κύμανση της συγκέντρωσης του ⁷Be στον αέρα έχει ως αποτέλεσμα να μην είναι εμφανής η συσχέτιση μεταξύ των δύο μεγεθών όπως φαίνεται και στο σχήμα 6.3.

<u>Εξάρτηση από τη θερμοκρασία</u>

Το σχήμα 6.4 παρουσιάζει τη συσχέτιση της ενεργότητας του ⁷Be με τη θερμοκρασία περιβάλλοντος. Από το σχήμα αυτό φαίνεται ότι υπάρχει ασθενής θετική συσχέτιση μεταξύ των δύο αυτών παραγόντων (N=333, r=0.574, t₀=12.8), γεγονός που συμφωνεί και με την υπάρχουσα βιβλιογραφία (Rogers and Nielson, 1991; Duenas et al., 2009; Feely et al., 1989; Ioannidou et al., 2005).



Σχήμα 6.4 Συσχέτιση της ενεργότητας του ⁷Βε με τη θερμοκρασία περιβάλλοντος στο σταθμό μέτρησης

Η συσχέτιση αυτή θα μπορούσε να ερμηνευθεί από το γεγονός ότι, οι υψηλές θερμοκρασίες στην επιφάνεια του εδάφους ευνοούν την εισβολή αερίων μαζών από τα ανώτερα στρώματα της ατμόσφαιρας τα οποία είναι εμπλουτισμένα με ⁷Be (Feely et al., 1989; Rogers and Nielson, 1991; Ioannidou et al., 2005; Duenas et al., 2009) (στα μέσα γεωγραφικά πλάτη ο συντελεστής τυρβώδους διάχυσης εμφανίζει μέγιστα κατά τους θερινούς μήνες). Αυτή η ατμοσφαιρική αστάθεια που περιγράφηκε προηγουμένως έχει μεγάλο αντίκτυπο στον χρόνο παραμονής των ΑΣ στην ατμόσφαιρα, με αποτέλεσμα σωματίδια μικρότερου μεγέθους στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα (Winkler et al., 1998). Επίσης, η αύξηση της θερμοκρασίας της ατμόσφαιρας οδηγεί σε αστάθεια (αύξηση της τύρβης στην ατμόσφαιρα, γεγονός που οδηγεί σε αύξηση του ύψους ανάμειξης / οριακού στρώματος. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα να εμφανίζονται και λιγότερες βροχοπτώσεις και άρα λιγότερου μεγέθους.

Εξάρτηση από το ύψος του ορίου ανάμιξης της ατμόσφαιρας

Από τη στιγμή που το ισότοπο ⁷Be παράγεται στην ατμόσφαιρα προσκολλάται σε σωματίδια του ατμοσφαιρικού αερολύματος και από τη βιβλιογραφία φαίνεται ότι υπάρχει

θετική συσχέτιση μεταξύ της ειδικής ραδιενέργειας του ⁷Be και της συγκέντρωσης των ΑΣ στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα (Duenas et al., 2015). Μία παράμετρος η οποία επηρεάζει την κύμανση της ειδικής ενεργότητας του ⁷Be είναι το ύψος του ορίου ανάμιξης της ατμόσφαιρας (Mixing Layer Height - MLH). Το MLH αποτελεί ένδειξη της κατακόρυφης τυρβώδους ανάμειξης εντός του οριακού στρώματος και είναι ένα σημαντικό μέγεθος, καθώς αποτελεί έναν από τους παράγοντες που καθορίζουν την διάχυση των εκπεμπόμενων ρύπων κοντά στο επίπεδο του εδάφους (Geiss et al., 2017). Υψηλές τιμές του MLH ευνοούν τον εμπλουτισμό των κατωτέρων τμημάτων της ατμόσφαιρας σε ⁷Be λόγω της εισβολής στρατοσφαιρικών αερίων μαζών (Bonasoni et al., 2000; Aldahan et al., 2001; Ioannidou and Paatero 2014). Λόγω των παραπάνω, στα πλαίσια της Δ.Δ. ερευνήθηκε και η συσχέτιση της ενεργότητας του ⁷Be με το ύψος του ορίου ανάμιξης της ατμόσφαιρας.



Σχήμα 6.5 Συσχέτιση μεταξύ της ειδικής ραδιενέργειας του ⁷Be και του ύψους του ορίου ανάμιξης της ατμόσφαιρας.

Τα δεδομένα για το MLH αποκτήθηκαν από το European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF). Όπως φαίνεται στο σχήμα 6.8 υπάρχει μία αυξητική τάση μεταξύ της ενεργότητας του ⁷Be και του MLH, γεγονός που είναι σύμφωνο και με τις βιβλιογραφικές αναφορές (Viezee and Singh, 1980; Feely et al., 1989), αν και, όπως προκύπτει από τα πειραματικά αποτελέσματα, η συσχέτιση μεταξύ των δύο αυτών μεγεθών δεν είναι στατιστικά σημαντική (N=221, r=0.346, t₀=0.546).

Εξάρτηση από την ηλιακή δραστηριότητα και την ένταση της ηλιακής ακτινοβολίας

Η κοσμική ακτινοβολία και εν τέλει η παραγωγή του ⁷Be στην ανώτερη ατμόσφαιρα εξαρτώνται από:

- Το πλήθος των ηλιακών κηλίδων (Hoetzl et al., 1991; Cannizzaro et al, 2004)
- Τον ηλιακό άνεμο (Papastefanou et al., 2004)
- Τις μαγνητικές καταιγίδες (Lal et al., 1967)
- Τις ηλιακές καταιγίδες (Lal et al., 1958; Lal et al., 1967)

Από τα παραπάνω γίνεται εμφανές ότι κάθε παράγοντας ο οποίος επηρεάζει τα επίπεδα της κοσμικής ακτινοβολίας έχει άμεση επίπτωση στον ρυθμό παραγωγής των ισοτόπων

κοσμικής προέλευσης (και συνεπώς και του ⁷Be). Οπότε, το ισότοπο ⁷Be θα μπορούσε ενδεχομένως να χρησιμοποιηθεί για την παρακολούθηση της κύμανσης της κοσμικής ακτινοβολίας σε συνάρτηση με την ηλιακή δραστηριότητα (Kikuchi et al., 2009).

Ένα από τα μεγέθη που εκφράζουν την ηλιακή δραστηριότητα και επηρεάζει την παραγωγή – και κατά συνέπεια την κύμανση της συγκέντρωσης του ⁷Be στην ατμόσφαιρα – είναι οι ηλιακές κηλίδες. Οι ηλιακές κηλίδες είναι σκοτεινοί σχηματισμοί της εσωτερικής στοιβάδας της ηλιακής ατμόσφαιρας, με χαμηλότερη θερμοκρασία συγκριτικά με άλλες περιοχές, οι οποίες δημιουργούν ένα ισχυρό μαγνητικό πεδίο, συνήθως πάνω από 1000 φορές ισχυρότερο από αυτό που έχει συνήθως ο ήλιος. Οι ηλιακές κηλίδες μπορούν να αλλάζουν συνεχώς και να έχουν διάρκεια από μερικές ώρες μέχρι και μερικές ημέρες, ή ακόμα και μήνες. Το φαινόμενο αυτό είναι περιοδικό (ηλιακός κύκλος) και το πλήθος των κηλίδων κυμαίνεται μεταξύ ενός μεγίστου και της ολικής απουσίας τους. Η διάρκεια του φαινομένου είναι περίπου 11 χρόνια. Το χρονικό αυτό διάστημα αναφέρεται ως ηλιακός κύκλος. Όταν το πλήθος των ηλιακών κηλίδων φτάσει σε ένα μέγιστο (σε πλήθος και ένταση) το μαγνητικό πεδίο του ήλιου φτάνει στο μέγιστό του, οπότε η Γη προστατεύεται από την κοσμική ακτινοβολία. Συνεπώς, ο ρυθμός παραγωγής του ισοτόπου ⁷Be αναμένεται να είναι σε αρνητική συσχέτιση με το πλήθος των ηλιακών κηλίδων. Με άλλα λόγια, οποτεδήποτε το πλήθος των ηλιακών κηλίδων φτάνει στο μέγιστό του ο ρυθμός παραγωγής του ⁷Be στην ατμόσφαιρα φτάνει στο ελάχιστο (Cannizzaro et al, 2004; Hoetzl et al., 1991). Ο ηλιακός κύκλος ο οποίος ξεκίνησε περί τον Δεκέμβριο του 2009 φαίνεται στο σχήμα 6.6 που ακολουθεί.



Σχήμα 6.6 Χρονοσειρά του πλήθους ηλιακών κηλίδων (SunSpot Number - SSN) κατά τον τελευταίο ηλιακό κύκλο (http://www.swpc.noaa.gov)

Τα δεδομένα σχετικά με την κύμανση της συγκέντρωσης του ισοτόπου ⁷Be στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα τα οποία αναλύονται στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ., καλύπτουν σε πολύ μεγάλο βαθμό τον πλέον πρόσφατο υλιακό κύκλο, κάτι που επιτρέπει την πολύ ικανοποιητική διερεύνηση της πιθανής συσχέτισης μεταξύ του πλήθους των ηλιακών κηλίδων και της κύμανσης της ειδικής ενεργότητας του ⁷Be. Το σχήμα 6.7 που ακολουθεί καταγράφεται η συσχέτιση μεταξύ της ειδικής ενεργότητας του ⁷Be και του πλήθους των ηλιακών κηλίδων (Sunspot Number, SSN).



Σχήμα 6.7 Συσχέτιση επιπέδων ενεργότητας του ⁷Be με το πλήθος των ηλιακών κηλίδων. Τα δεδομένα έχουν ληφθεί από τον ιστότοπο http://www.swpc.noaa.gov

Όπως παρατηρείται και επιβεβαιώνεται στατιστικά (N=333, r=0.049, t₀=0.892) δεν διαπιστώνεται συσχέτιση μεταξύ των δύο αυτών μεγεθών, παρόλο που όπως αναφέρεται στη βιβλιογραφία το πλήθος των ηλιακών κηλίδων επηρεάζει τον ρυθμό παραγωγής του ⁷Be παρουσιάζεται στην βιβλιογραφία. Όπως προκύπτει από τα παραπάνω, το πλήθος των ηλιακών κηλίδων κηλίδων επηρεάζει την ενεργότητα του ⁷Be στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα, τουλάχιστον στο επίπεδο του εδάφους. Άλλοι παράγοντες, όπως η βροχόπτωση και η θερμοκρασία περιβάλλοντος φαίνεται ότι διαδραματίζουν έναν πολύ πιο ισχυρό ρόλο στον καθορισμό της ενεργότητας του ⁷Be στην ατμόσφαιρα.

Μία άλλη παράμετρος της οποία εξετάστηκε η επίδραση στη συγκέντρωση του ⁷Be στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα, είναι η ένταση της ηλιακής ακτινοβολίας. Όπως φαίνεται στο σχήμα 6.8, η ενεργότητα του ⁷Be στην ατμόσφαιρα παρουσιάζει ασθενή θετική συσχέτιση με τα επίπεδα της ηλιακής ακτινοβολίας (N=140, r=0.520, t₀=7.14). Ενδεχομένως αυτό να οφείλεται στο γεγονός ότι η ένταση της ηλιακής ακτινοβολίας, συσχετίζεται με τη θερμοκρασία και την υγρασία της ατμόσφαιρας, κάτι που διαπιστώνεται και από το σχήμα 6.8. Συγκεκριμένα, υψηλότερη ένταση ηλιακής ακτινοβολίας συσχετίζεται με περιόδους καλοκαιρίας, όπου η υγρασία είναι χαμηλότερη και η θερμοκρασία υψηλότερη.



Σχήμα 6.8 Συσχέτιση επιπέδων της ενεργότητας του ⁷Be με την ηλιακή ακτινοβολία (όπως προσδιορίσθηκαν από τον σταθμό μέτρησης ποιότητας ατμοσφαιρικού αερολύματος του ΕΡΠ.

6.2.3 Μελέτη της κατανομής μεγεθών σωματιδίων ατμοσφαιρικού αερολύματος

Η κατανομή μεγεθών του ΑΣ στο οποίο ανιχνεύεται το ⁷Be επηρεάζεται από διάφορες ατμοσφαιρικές διεργασίες που έχουν να κάνουν με τη δημιουργία, το μέγεθος και τη μορφή των ΑΣ (σύμπτυξη υπέρλεπτων σωματιδίων, σχηματισμός σταγόνων ομίχλης και νεφών, εξάτμιση, συμπύκνωση, έκπλυση της ατμόσφαιρας, απόπλυση μέσω βροχής, συνεισφορά διεργασιών όπως χιονοθύελλες, ύπαρξη προϊόντων καύσης στο μείγμα αερολύματος της τροπόσφαιρας κλπ) (Winkler et al.,1998). Εν γένει, είναι γνωστό από τη βιβλιογραφία (Ioannidou, 2011) ότι οι καιρικές συνθήκες επηρεάζουν σημαντικά την κατανομή μεγεθών των ΑΣ.

Η μέση αεροδυναμική διάμετρος της ενεργότητας (Activity Median Aerodynamic Diameter -AMAD) της κατανομής μεγεθών των ατμοσφαιρικών σωματιδίων είναι μία πολύ σημαντική παράμετρος η οποία χαρακτηρίζει τις ιδιότητες του ατμοσφαιρικού αερολύματος. Το σχήμα 6.9α παρουσιάζει την κύμανση της μέσης κατανομής μεγεθών (AMAD) και της ειδικής ενεργότητας σωματιδίων ⁷Be που αντιστοιχεί σε ολόκληρο το χρονικό διάστημα των δειγματοληψιών. Όπως φαίνεται στο σχήμα 6.9β το κυρίαρχο μοτίβο (major mode) της AMAD εμφανίζεται στην περιοχή της συσσώρευσης (0.41 μm), ενώ εμφανίζεται και ένα δεύτερο μοτίβο (secondary mode) στην περιοχή των χονδρόκοκκων σωματιδίων (5.89 μm). Αν και η μέση κατανομή μεγεθών των σωματιδίων φαίνεται να έχει ένα μοτίβο στην περιοχή συσσώρευσης και ένα δεύτερο στην περιοχή των χονδρόκοκκων σωματιδίων, οι επιμέρους κατανομές μεγεθών των σωματιδίων στα δείγματα φαίνεται να ακολουθούν πιο πολύπλοκα μοτίβα, ενδεικτικά των μηχανισμών παραγωγής και μετασχηματισμού των

σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος. Συνολικά, το 31% των δειγμάτων φαίνεται να ακολουθούν κατανομή μεγέθους ενεργότητας απλής κορυφής (unimodal), το 61% διπλής κορυφής (bimodal) και το 8% τριπλής κορυφής (trimodal) αντίστοιχα. Επιπλέον, το 26% των δειγμάτων παρουσιάζει δύο κορυφές στην περιοχή της συσσώρευσης. Ειδικότερα, για την πλειονότητα των δειγμάτων η κύρια κορυφή εμφανίζεται στην περιοχή της συσσώρευσης και αφορά στο άνω του 50% της ολικής ενεργότητας. Η τάση για την περιοχή των χονδρόκοκκων σωματιδίων αφορά λιγότερο από το 6% της ολικής ενεργότητας.

Όπως φαίνεται στο σχήμα 6.9α, η AMAD της κύριας τάσης της κατανομής της ενεργότητας του ⁷Be των σωματιδίων κυμαίνεται μεταξύ 0.21 μm και 0.91 μm. Αρκετές μελέτες (Feely et al., 1989; Winkler et al., 1998; Young et al., 2007) αναφέρουν ότι όταν παρατηρούνται υψηλές συγκεντρώσεις ενεργότητας ⁷Be στην ατμόσφαιρα, οι τιμές του AMAD είναι στην πραγματικότητα χαμηλές. Μία πιθανή εξήγηση για την παρατήρηση αυτή θα μπορούσε να είναι η κατακόρυφη ανάμειξη της τροπόσφαιρας, η οποία ενισχύει τη μεταφορά του ⁷Be, με συνέπεια να αυξάνεται και η ενεργότητα του ⁷Be στον επιφανειακό αέρα. Αυτή η κίνηση των αερίων μαζών έχει ως αποτέλεσμα τα ΑΣ να είναι πιο «φρέσκα», με αποτέλεσμα χαμηλή τιμή AMAD. Κατά συνέπεια, το μέγεθος AMAD μπορεί να χρησιμοποιηθεί για να εκτιμηθεί ο χρόνος παραμονής των σωματιδίων στην ατμόσφαιρα, λαμβάνοντας υπόψη το ρυθμό με τον οποίο αυξάνεται το μέγεθος των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος (Ioannidou and Paatero 2014).



Σχήμα 6.9 α) Συσχέτιση του AMAD του ⁷Be και της μεταβολής της ολικής ενεργότητας του ⁷Be, β) κατανομή μεγεθών της μέσης συγκέντρωσης των ⁷Be.

Επιπλέον, το μοτίβο που ακολουθεί η κατανομή μεγεθών των σωματιδίων του ⁷Be φαίνεται να εξαρτάται σημαντικά από τις ατμοσφαιρικές συνθήκες. Στην εργασία αυτή οι μεταβολές των τιμών του κυρίαρχου AMAD (AMAD of the major mode) μελετήθηκαν συναρτήσει της θερμοκρασίας (σχήμα 6.10α) και της σχετικής υγρασίας (σχήμα 6.10β).

Όπως διαπιστώνεται, μεταξύ του AMAD και της θερμοκρασίας υπάρχει μία αρνητική τάση – όχι όμως στατιστικά σημαντική συσχέτιση (N = 38, r = - 0.335, t₀ = - 2.131). Το γεγονός αυτό μπορεί να εξηγηθεί από το γεγονός ότι οι υψηλές θερμοκρασίες στην επιφάνεια της Γης έχουν ως αποτέλεσμα τη διείσδυση αερίων μαζών από τα ανώτερα ατμοσφαιρικά στρώματα, ευνοώντας έτσι τις διεργασίες εμπλουτισμού των αερίων μαζών με ⁷Be, όπως φαίνεται και από σχετικές μελέτες (Rogers and Nielson, 1991; Duenas et al., 2009; Feely et al., 1989; Ioannidou et al.,2005). Αυτή η ατμοσφαιρική αστάθεια έχει μεγάλη επίδραση στην ηλικία των σωματιδίων που βρίσκονται στην ατμόσφαιρα, κάτι που οδηγεί σε μείωση του AMAD (Winkler et al., 1998).

Από την άλλη, το AMAD βρέθηκε να παρουσιάζει οριακά θετική συσχετιση με τη σχετική υγρασία (N = 38, r = 0.361, t_o = 2.322). Οι συνθήκες υψηλής σχετικής υγρασίας εντείνουν την αύξηση του μεγέθους των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος και έχουν ως αποτέλεσμα την αύξηση του ρυθμού εναπόθεσης των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος, οδηγώντας έτσι σε χαμηλότερες ενεργότητες του ⁷Be στην ατμόσφαιρα (Feely et al., 1989; Young et al., 2007; loannidou and Paatero 2014).



Σχήμα 6.10 Συσχέτιση του AMAD (major mode) του⁷Be με (α) την θερμοκρασία της ατμόσφαιρας και (β) τη σχετική υγρασία

6.2.4 Εκτίμηση του χρόνου παραμονής των ΑΣ στον αέρα μέσω της μελέτης των ατμοσφαιρικών συγκεντρώσεων του ισοτόπου ⁷Be

Ο χρόνος παραμονής⁴ των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος μπορεί να προσδιορισθεί με χρήση ραδιενεργών ισοτόπων που προσκολλώνται στα σωματίδια του ατμοσφαιρικού αερολύματος και απομακρύνονται από αυτό με τις διεργασίες της υγρής ή της ξηρής εναπόθεσης (Ioannidou and Paatero, 2014) λειτουργώντας έτσι ως ιχνηθέτες. Η μέθοδος που επιτρέπει τον προσδιορισμό του χρόνου παραμονής στην ατμόσφαιρα αερολυμάτων τροποσφαιρικής προέλευσης, τα οποία σχετίζονται με ισότοπα κοσμικής προέλευσης, όπως είναι το ⁷Be, βασίζεται στον ρυθμό αύξησης του μεγέθους των σωματιδίων (συγκεκριμένα της διαμέτρου) με τον χρόνο παραμονής τους στην ατμόσφαιρα.

⁴ Ουσιαστικά η ηλικία των σωματιδίων

Όλοι οι πυρήνες ισοτόπων όταν παράγονται έχουν αρχικά διάμετρο παραπλήσια με τη διάμετρο σωματιδίων Aitken (0.015 μm) (loannidou and Paatero, 2014). Ο χρόνος που απαιτείται προκειμένου ένα σωματίδιο του ατμοσφαιρικού αερολύματος με αρχική διάμετρο ίση με την παραπάνω, να φτάσει τις διαμέτρους στις οποίες ανιχνεύεται πειραματικά, μπορεί να οδηγήσει στην εκτίμηση του χρόνου παραμονής-του στην ατμόσφαιρα. Σύμφωνα με τους McMurry and Wilson (1982) και τη θεωρία της αύξησης της διαμέτρου των δευτερογενών σωματιδίων μέσω των διεργασιών της συμπύκνωσης και της πυρηνοποίησης, τα σωματίδια του ατμοσφαιρικού αερολύματος αυξάνονται σε διάμετρο με βάση έναν μέσο ρυθμό ανάπτυξης (Mean Growth Rate). Συνεπώς, ο χρόνος παραμονής ενός σωματιδίου του αερολύματος στην ατμόσφαιρα μπορεί να υπολογισθεί με βάση την ακόλουθη σχέση (Papastefanou and loannidou 1995):

$$\tau_R = \frac{(AMAD)_{mean} - (AMAD)_{Aitken nuclei particles}}{Mean Particle growth rate (MGR)}$$
(Σχέση 6.1)

όπου: MGR είναι ο μέσος ρυθμός ανάπτυξης ενός σωματιδίου (0.004-0.005 μm/h) και (AMAD)_{Aitken nuclei particle} είναι η διάμετρος Aitken που λαμβάνεται ίση με 0.015 μm

Από τους υπολογισμούς που έγιναν με βάση τις μετρήσεις της παρούσας εργασίας προέκυψε ότι ο ελάχιστος χρόνος παραμονής ενός σωματιδίου του αερολύματος στην ατμόσφαιρα ήταν 2.0 ημέρες, ο μέγιστος 6.9 και ο μέσος χρόνος παραμονής 3.6 ημέρες. Οι χρόνοι αυτοί είναι συμβατοί με τις τιμές της βιβλιογραφίας: 4.4 - 10.8 ημέρες (με μέσο χρόνο τις 7.7 ημέρες) για τη Φινλανδία (Ioannidou and Paatero, 2014), 5-6 περίπου ημέρες στη Νυρεμβέργη της Γερμανίας (48° 13΄Ν, 11°36΄Ε) (Winkler et al., 1998), 2.6 - 11.8 ημέρες στην Κίνα (Yu and Lee, 2002). Οι διαφορές μεταξύ των παραπάνω εκτιμήσεων αποδίδονται στο ότι οι μετρήσεις διεξήχθησαν σε διαφορετικές περιοχές, σε διαφορετικές χρονικές στιγμές, με διαφορετικές επικρατούσες συνθήκες (καιρικές και ατμοσφαιρικές) και με διαφορετικούς δειγματολήπτες (Ioannidou and Paatero, 2014). Εν γένει, υψηλότεροι χρόνοι παραμονής του ατμοσφαιρικού αερολύματος μπορούν να αποδοθούν σε εισβολές στρατοσφαιρικών αερίων μαζών (Ioannidou and Paatero, 2014).

6.2.5 Εποχική κύμανση της ενεργότητας του ⁷Be και της κατανομής μεγεθών ΑΣ

Μελέτες έχουν δείξει ότι η ειδική ενεργότητα του ισοτόπου ⁷Be στην ατμόσφαιρα παρουσιάζει έντονα εποχική κύμανση, με μέγιστες τιμές κατά τους θερινούς και ελάχιστες κατά τους χειμερινούς μήνες (Likuku 2006; Duenas et al., 2009; Ioannidou et al., 2005). Αυτό επιβεβαιώνεται και από τα ευρήματα της παρούσας Δ.Δ. Τα επίπεδα ⁷Be ξεκινούν να αυξάνονται από τον Μάρτιο ως τον Σεπτέμβριο κάθε έτους. Η εποχική κύμανση της ειδικής ενεργότηταςς του ⁷Be που αντιστοιχούν στο χρονικό διάστημα που εξετάζεται στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. παρουσιάζεται στο σχήμα 6.11.



Σχήμα 6.11 Εποχική κύμανση της ειδικής ενεργότητας του ⁷Be στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα στο σταθμό μέτρησης του ΕΡΠ για την περίοδο 2011- 2017.

Η εποχική κύμανση της ειδικής ενεργότητας του ⁷Be μπορεί να αποδοθεί σε διάφορους παράγοντες που έχουν να κάνουν με μηχανισμούς εναλλαγής αερίων μαζών μεταξύ στρατόσφαιρας και τροπόσφαιρας, εποχική κύμανση στον ρυθμό της κατακόρυφης ανάμειξης εντός της τροπόσφαιρας, εποχική κύμανση στον ρυθμό της μεταφοράς αερίων μαζών από και προς τους πόλους από τα μεσαία γεωγραφικά πλάτη, θερμοκρασία, εναπόθεση λόγω κατακρημνίσεων (Joannidou et al., 2005). Μελέτες έχουν δείξει ότι κατά τους εαρινούς μήνες τα χαμηλότερα στρώματα της τροπόσφαιρας εμπλουτίζονται με ισότοπα από τα ανώτερα στρώματα της στρατόσφαιρας (Jasiulionis and Wershofen, 2005; Carvalho et al. 2013). Εξάλλου, το επίπεδο της τροπόπαυσης κινείται ανοδικά νωρίς τους θερινούς μήνες. Αυτή η κίνηση ευθύνεται για τη διείσδυση αερίων μαζών από την στρατόσφαιρα απευθείας στην τροπόσφαιρα, με αποτέλεσμα κατά τους θερινούς μήνες η ειδική ενεργότητα του ⁷Be στον αέρα στο επίπεδο του εδάφους να λαμβάνει τις μέγιστες τιμές της (Jasiulionis and Wershofen, 2005). Επίσης, οι συντελεστές τυρβώδους διάχυσης της ατμόσφαιρας στα μεσαία γεωγραφικά πλάτη και ο συντελεστής έκπλυσης της ατμόσφαιρας αποκτούν την ελάχιστη τιμή τους κατά την χρονική περίοδο αυτή. Ο συντελεστής έκπλυσης αναμένεται να έχει τη μέγιστη τιμή του κατά τον Νοέμβριο (Jasiulionis and Wershofen, 2005). Οι συγκεντρώσεις του ισοτόπου αυτού παρουσιάζουν μέγιστες τιμές κατά τους θερινούς μήνες και ελάχιστες κατά τους χειμερινούς.

Το σχήμα 6.12 απεικονίζει τη μέση ανεστραμμένη⁵ κατανομή μεγεθών του ισοτόπου ⁷Be στην ατμόσφαιρα για τις δύο περιόδους (χειμώνα και καλοκαίρι) μαζί με τις μέσες κατανομές μεγεθών επιφανείας που εκτιμήθηκαν με χρήση ενός Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS)⁶. Όπως φαίνεται στο σχήμα 6.12.α (με διακεκκομένη γραμμή παρουσιάζεται η

⁵ Προσδιορίσθηκε με χρήση του κώδικα αντιστροφής MICRON, ο οποίος περιγράφεται στο παράρτημα Ε.

⁶ To SMPS - The scanning mobility particle sizer είναι ένα φασματόμετρο το οποίο προσδιορίζει το μέγεθος των σωματιδίων. Πραγματοποιεί μετρήσεις κατανομής μεγεθών βάσει του αριθμού των σωματιδίων του αερολύματος, προσδιορίζοντας το μέγεθός τους βάσει της διαμέτρου της ηλεκτρικής κινητικότητάς τους χρησιμοποιώντας έναν διαφορικό αναλυτή κινητικότητας (DMA - differential mobility analyzer) και μετρώντας τα σωματίδια, χρησιμοποιώντας έναν μετρητή συμπύκνωσης σωματιδίων (CPC – Condensation Particle Counter). Πρακτικά μετρά τη συγκέντρωση του αερολύματος, και τη κατανομή μεγέθους των σωματιδίων του αερολύματος.

κατανομή της ενεργότητας του ⁷Be και με συνεχή οι κατανομές μεγεθών), η κατανομή της ενεργότητας (A) ακολουθεί παρόμοιο μοτίβο κατά τους θερινούς μήνες με την κατανομή της επιφανείας, βλέπουμε δηλαδή μία «ποιοτική» ταύτιση των 2 διαφορετικών αυτών μεγεθών), ενώ κατά τους χειμερινούς μήνες φαίνεται να υπάρχει ένα διαφορετικό μοτίβο. Συγκεκριμένα, το μέγεθος A (η συνεχής μπλε γραμμή ανοιχτού χρώματος) φαίνεται να έχει παρόμοιο μοτίβο με αυτό που παρατηρείται κατά τις θερμές περιόδους αλλά με χαμηλότερα επίπεδα απόλυτης συγκέντρωσης, ενώ η κατανομή της συγκέντωσης της ενεργότητας του ⁷Be φαίνεται να έχει δύο μοτίβα στην περιοχή μεγεθών της συσώρευσης, με υψηλότερη συνεισφορά των μεγαλύτερων σωματιδίων στην ολική ενεργότητα (διακεκκομένες ανοιχτό μπλε). Τα δεδομένα αυτά αφορούν κατανομές μεγεθών που προέκυψαν για τα έτη 2014 ως και 2017 (για τη χρονοσειρά συνολικά δηλαδή).

Η προέλευση των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος (είτε πρόκειται για ανθρωπογενούς είτε για φυσικής προέλευσης σωματίδια) ποικίλει, ενώ τα ΑΣ υπόκεινται και σε μία σειρά χημικούς μετασχηματισμούς. Τα σωματίδια είτε εκπέμπονται ως πρωτογενείς ρύποι, είτε μπορούν να σχηματιστούν ως δευτερογενή προϊόντα, μέσω διαφόρων ατμοσφαιρικών διεργασιών (Diapouli et al., 2017). Η προέλευσή τους είναι ο κύριος παράγων που καθορίζει τις ιδιότητές τους (κατανομή μεγεθών, σχήματα, χημική σύσταση κλπ).



Οι μετρήσεις έγιναν στον σταθμό μέτρησης της ποιότητας του ατμοσφαιρικού αερολύματος του ΕΡΠ – «Δ».



Σχήμα 6.12(β) μέση εποχική κύμανση μεγεθών από το SMPS.

Σύμφωνα με τη βιβλιογραφία (Diapouli et al., 2017), η Ελλάδα είναι μία από τις περιοχές που υπόκεινται σε εκπομπές τόσο φυσικών όσο και ανθρωπογενών πηγών τοπικής προέλευσης, ενώ σύμφωνα με την ίδια βιβλιογραφική πηγή, από μελέτες που έχουν γίνει στον σταθμό δειγματοληψίας ατμοσφαιρικού αερολύματος του ΕΡΠ, κατά τη διάρκεια των ψυχρών περιόδων οι ατμοσφαιρικές συνθήκες είναι σταθερές, γεγονός το οποίο, σε συνδυασμό με τα σχετικά λεπτότερα ατμοσφαιρικά στρώματα ανάμειξης, έχει ως αποτέλεσμα να ευνοείται η διασπορά ρύπων.

Κατά την περίοδο της μεγάλης οικονομικής κρίσης στην Ελλάδα (2010-2020) η καύση βιομάζας παρουσίασε μεγάλη αύξηση, με έντονη εποχική κύμανση και πολύ μεγαλύτερη συνεισφορά κατά τις ψυχρές περιόδους, κυρίως λόγω της χρήσης τζακιών για θέρμανση (Diapouli et al., 2017). Τα αιωρούμενα σωματίδια από την καύση βιομάζας υπόκεινται σε οξείδωση λόγω του φωτός (photo-oxidation), με αποτέλεσμα την παραγωγή δευτερογενούς αερολύματος (Lee et al., 2008; Popovicheva et al., 2014). Το γεγονός αυτό διακρίνεται στο σχήμα 6.12α, καθώς κατά τη διάρκεια της ψυχρής περιόδου η κατανομή μεγεθών των σωματιδίων φαίνεται να παρουσιάζει δύο διαφορετικά μοτίβα (καταδεικνύοντας αφενός την ύπαρξη πρωτογενών σωματιδίων αλλά και το σχηματισμό δευτερογενών).

Ο ρυθμός με τον οποίο τα ραδιενεργά ισότοπα προσκολλώνται στα σωματίδια ατμοσφαιρικού αερολύματος καθορίζεται από ποικίλες ατμοσφαιρικές διεργασίες (πχ εξάτμιση, συμπύκνωση, ξηρή και υγρή εναπόθεση, πυρηνοποίηση) (loannidou and Paatero, 2014). Όπως έχει ήδη περιγραφεί, οι μετεωρολογικές συνθήκες έχουν πολύ σημαντική επίδραση στην κύμανση των επιπέδων ειδικής ενεργότητας, αλλά και στην κατανομή μεγέθους της ειδικής ενεργότητας του ⁷Be στην ατμόσφαιρα (Young et al., 2007). Κατά τη διάρκεια της θερινής περιόδου κυριαρχεί η κατακόρυφη κίνηση των αερίων μαζών, εισάγοντας ⁷Be από την στρατόσφαιρα απευθείας στην ατμόσφαιρα. Επίσης, κατά τη διάρκεια της θερμής περιόδου δεν υπάρχουν – συνήθως – κατακρημνίσεις, οι οποίες ευθύνονται για την υγρή εναπόθεση των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος. Καθώς οι ρυθμοί απομάκρυνσης των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος από την ατμόσφαιρα είναι σχετικά χαμηλοί κατά τους θερινούς μήνες, τα σωματίδια του αερολύματος τείνουν να αυξάνονται σε μέγεθος καθώς συσσωρεύουν δευτερογενή συστατικά συμπεριλαμβανομένου του νερού (loannidou end Paatero, 2014). Αυτό γίνεται εμφανές και στην εργασία αυτή (σχήματα 6.12α και 6.12β), καθώς κατά τη διάρκεια της θερμής περιόδου τα μεγέθη των σωματιδίων του αερολύματος αλλά και τα μεγέθη της επιφανείας τους είναι μεγαλύτερα από ό,τι κατά την ψυχρή περίοδο. Όπως παρατηρείται, κατά την ψυχρή περίοδο η τελική κατανομή μεγεθών (συνεχής γραμμή) μπορεί να αναλύθεί σε δύο επιμέρους κατανομές (διακεκομμένη γραμμή). Αυτό οφείλεται στο γεγονός ότι η τελική κατανομή μεγεθών είναι συνισταμένη περισσότερων διεργασιών. Αντίθετα, κατά τη διάρκεια της θερμής περιοδου, η κατακόρυφη κίνηση είναι η κύρια διεργασία, η οποία εισάγει σωματίδια απευθείας από τα ανώτερα στα κατώτερα στρώματα της ατμόσφαιρας.

6.2.6 Συνδυαστική ανάλυση της ενεργοτητας του ⁷Be και της περιεκτικότητας των ΑΣ σε νερό

Για την περαιτέρω διερεύνηση του κατά πόσον η εποχική κύμανση της ενεργότητας του ισοτόπου ⁷Be και η κατανομή μεγεθών του οφείλεται στην απορρόφηση υγρασίας της ατμόσφαιρας, υπολογίσθηκε το ποσοστό της περιεκτικότητας σε νερό (liquid water content) των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος, με βάση τη μεθοδολογία που περιγράφεται στη δημοσίευση Triantafyllou et al. (2016). Το ποσοστό της διαθέσιμης υγρασίας στην ατμόσφαιρα το οποίο μπορεί να απορροφηθεί από τα σωματίδια του ατμοσφαιρικού αερολύματος είναι:

$$e = RH \cdot e_s$$
 (Σχέση 6.2)

όπου:

RH : η σχετική υγρασία της ατμόσφαιρας (%) και

 e_s : η μέγιστη τάση ατμών (mbar) που μπορεί να υπολογισθεί από την ακόλουθη σχέση:

$$loge_s = 9.4041 - \frac{2354}{r}$$
 (Σχέση 6.3)

όπου Τ είναι η θερμοκρασία περιβάλλοντος (Κ).

Η περιεκτικότητα σε νερό ενός σωματιδίου του ατμοσφαιρικού αερολύματος εξαρτάται από τη σχετική υγρασία του ατμοσφαιρικού αέρα και από τη χημική σύσταση του σωματιδίου (Triantafyllou et al., 2016).

Το σχήμα 6.13α παρουσιάζεται η συσχέτιση μεταξύ της ενεργότητας και της υγρασίας που περιέχεται στα σωματίδια του ατμοσφαιρικού αερολύματος. Όπως φαίνεται τα μεγέθη αυτά παρουσιάζουν θετική συσχέτιση (N=37, r=0.592, t₀=4.341). Ομοίως, η ενεργότητα παρουσιάζει θετική συσχέτιση με την ολική επιφάνεια των σωματιδίων (N=37, r=0.529, t₀=3.689). Δεδομένου ότι οι πυρήνες ⁷Be προσκολλώνται στην επιφάνεια των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος, αναμένεται ότι οι υψηλότερες ενεργότητες να παρατηρούνται όταν είναι διαθέσιμη και μεγαλύτερη επιφάνεια σωματιδίων.



Σχήμα 6.13 Συσχέτιση μεταξύ (α) της ενεργότητας του ⁷Be και της περιεκτικότητας σε υγρασία των σωματιδίων (β) της ενεργότητας του ⁷Be και της ολικής επιφανείας των σωματιδίων.

6.3 Ανάλυση της κύμανσης της ενεργότητας ισοτόπων που συνδέονται με φαινόμενα καύσης βιομάζας

Η καύση βιομάζας λόγω ανθρώπινων δραστηριοτήτων, καθώς και η καύση ορυκτών καυσίμων για διάφορους λόγους, όπως είναι η παραγωγή ενέργειας, η βιομηχανία, οι μεταφορές, οικιακές δραστηριότητες κλπ, έχουν ως αποτέλεσμα την εκπομπή ΑΣ. Η μελέτη των επιπτώσεων αυτών των ΑΣ παρουσιάζει ενδιαφέρον παγκοσμίως. Ιδιαίτερο ενδιαφέρον παρουσιάζει η καύση βιομάζας στα πλαίσια αγροτικών δραστηριοτήτων, μία αρκετά συνηθισμένη πρακτική σε διάφορα στάδια προετοιμασίας του εδάφους – π.χ. εν όψει της σποράς – αλλά και οι πυρκαγιές σε δασικές εκτάσεις. Η καύση αγροτικών εκτάσεων, αν και απαγορευμένη πρακτική σε κάποιες χώρες, συνεισφέρει σημαντικά στην επιβάρυνση της ποιότητας του αέρα σε τοπική κλίμακα αλλά και στις εθνικές εκπομπές ρύπων κάθε κράτους. Στα πλαίσια της Δ.Δ. πραγματοποιήθηκαν μετρήσεις προκειμένου να μελετηθεί η επίδραση των φαινομένων καύσης βιομάζας, ακόμα και από πολύ απομακρυσμένες περιοχές όπως είναι η Ρωσία, ενώ έγινε και επεξεργασία παλαιότερων χρονοσειρών μετρήσεων. Στόχος της διερεύνησης αυτής ήταν να εκτιμηθεί η επίδραση που έχουν τα φαινόμενα αυτά στις συγκεντρώσεις ραδιενεργών ισοτόπων-ιχνηθετών καύσης βιομάζας στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα στην περιοχή της Αθήνας. Η μελέτη αυτή δημοσιεύθηκε στο περιοδικό "Air Quality Atmosphere and Health" (Dalaka et al., 2019).

Τα φαινόμενα καύσης βιομάζας ανοιχτής κλίμακας, όπως είναι η αποδάσωση και η καύση χόρτων και καλλιεργειών συνεισφέρει στο ~42% των παγκόσμιων εκπομπών αερίων καύσης σε παγκόσμια κλίμακα. Στο ποσοστό αυτό συνυπολογίζονται και οι δασικές πυρκαγιές (Bond et al. 2013), οι οποίες ευθύνονται για πολλά προβλήματα υγείας και για διάφορα περιβαλλοντικά θέματα σε παγκόσμια κλίμακα. Η καύση βιομάζας ανοιχτής κλίμακας (open Biomass Burning – BB) και οι δασικές πυρκαγιές αποτελούν στην ουσία μεγάλες πηγές ενώσεων του άνθρακα και αέριων ιχνηθετών στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα, τα οποία παίζουν πολύ σημαντικό ρόλο στην χημεία της τροπόσφαιρας και εν τέλει στη διαμόρφωση του κλίματος σε παγκόσμιο επίπεδο. Αυτές οι εκπομπές συχνά μεταφέρονται σε απόσταση εκατοντάδων χιλιομέτρων, καθώς οι μεγάλης κλίμακας δασικές πυρκαγιές παράγουν νέφη αερίων τα οποία κάτω από συγκεκριμένες συνθήκες μπορούν να προκαλέσουν ατμοσφαιρικούς κυκλώνες, αυξάνοντας την εξάπλωση των ατμοσφαιρικών ρυπαντών σε μεγάλη κλίμακα (Reid et al. 1998).

Στις εκπομπές καύσης βιομάζας περιλαμβάνονται εκατοντάδες συνιστώσες, μεταξύ των οποίων, αιωρούμενα σωματίδια, μονοξείδιο του αζώτου (NO), πολυκυκλικοί αρωματικοί υδρογονάνθρακες (PAHs), αλδεΰδες και ημιπτητικά ή πτητικά οργανικά (VOCs) (WHO, 1999). Οι ιδιότητες του καπνού από την καύση βιομάζας ποικίλουν σημαντικά, ανάλογα με τις συνθήκες καύσης, τον τύπο του καυσίμου και τη φάση της καύσης (Kalogridis et al. 2018) αλλά και από τις μετεωρολογικές συνθήκες (Reid et al. 2005a; Amiridis et al. 2012).

Τα αερολύματα που προκύπτουν από την καύση βιομάζας σχηματίζονται από διεργασίες συμπύκνωσης πτητικών οργανικών και ανόργανων συνιστωσών που αποτελούνται κυρίως από σωματίδια άνθρακα, όπως η αιθάλη και ο στοιχειακός άνθρακας, opγανικά σωματίδια (opγανικός άνθρακας, Organic Carbon – OC) και ανόργανες ενώσεις στις οποίες κυριαρχούν το κάλιο, χλωρίδια και θειικά άλατα (Posfai et al. 2003; Osan et al. 2002). Τυπικά, ο καπνός από την καύση βιομάζας χαρακτηρίζεται από υψηλές τιμές του λόγου οργανικούστοιχειακού άνθρακα (EC/OC) (Pio et al. 2008). Επιπλέον, αυξημένες συγκεντρώσεις εδαφικών συστατικών (όπως για παράδειγμα Ca^{2+,} Mg²⁺ και Ανόργανος Άνθρακας⁷) έχουν αναφερθεί σε περιπτώσεις έντονων περιστατικών καύσης βιομάζας και έχουν αποδοθεί σε φαινόμενα επαναιώρησης εδαφικής σκόνης που εισέρχεται στον καπνό, εξαιτίας της έντονης τύρβης που δημιουργείται κατά τη φωτιά (Diapouli et al. 2014; Kavouras et al. 2012; Alves et al. 2010, Pio et al. 2008).

Πέραν των παραπάνω στοιχείων, ιχνοστοιχείων και χημικών ενώσεων, ιδιαίτερο ενδιαφέρον έχει η εκπομπή συγκεκριμένων επικίνδυνων ρύπων και ισοτόπων, τα οποία απελευθερώνονται στην ατμόσφαιρα, από την καύση βιομάζας σε περιοχές με ρυπασμένα εδάφη. Μία τέτοια περίπτωση είναι απόρριψη ραδιενεργών αποβλήτων στο έδαφος, οι πυρηνικές δοκιμές που πραγματοποιήθηκαν στο παρελθόν και ατυχήματα σε πυρηνικούς αντιδραστήρες που έχουν ως αποτέλεσμα τη ρύπανση εδάφους και βλάστησης σε τοπική κλίμακα. Η καύση βιομάζας σε τέτοια περιβάλλοντα μπορεί να προκαλέσει τη μεταφορά φυσικών και τεχνητών ραδιενεργών ισοτόπων στην ατμόσφαιρα μέσω των αέριων εκπομπών και της εκπομπής σωματιδίων (Evangeliou et al. 2015; Ram and Sarin 2012; Igarashi 2009). Επιπροσθέτως, υπάρχουν ενδείξεις ότι τα ισότοπα τα οποία ανιχνεύονται στην τέφρα στον χώρο της καύσης παρουσιάζουν μεγαλύτερη συγκέντρωση και διαλυτότητα, κάτι που μπορεί να έχει πολύ σημαντικές επιπτώσεις για την αναδιανομή τους υπό την επίδραση του νερού (Amiro et al. 1996). Η κατ' αυτόν τον τρόπο απελευθέρωση ραδιενεργών ισοτόπων στην ατμόσφαιρα έχει προσελκύσει την προσοχή της επιστημονικής κοινότητας, καθώς τα τελευταία χρόνια ανιχνεύονται περιστασιακά χαμηλά επίπεδα ραδιενέργειας στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα της Ευρώπης, χωρίς να είναι πάντα προφανής η πηγή εκπομπών της (Masson et al. 2018).

⁷ Carbonate Carbon - CC

Διδακτορική Διατριβή Αικατερίνης Δαλάκα

Στην εργασία των Yoschenko et al. (2006) μελετήθηκε η επαναιώρηση, η μεταφορά και η εναπόθεση ραδιενεργών ισοτόπων κατά τη διάρκεια ελεγχόμενης καύσης σε δασικές περιοχές και σε καλλιεργημένες εκτάσεις στην περιοχή αποκλεισμού του Chernobyl και διαπιστώθηκε μία σημαντική αύξηση στη συγκέντρωση των ισοτόπων κοντά στην περιοχή της φωτιάς. Επιπρόσθετα, από τις μετρήσεις που έγιναν, διαπιστώθηκε ότι η επίδραση του αερολύματος το οποίο λόγω της καύση της βιομάζας μεταφέρεται και αποτίθεται μακριά από τις καιόμενες περιοχές έχει αξιολογηθεί ως ιδιαίτερα σημαντική. Ο καπνός από την καύση βιομάζας έχει σχετισθεί με την αύξηση της ειδικής ραδιενέργειας του ¹³⁷Cs σε απομακρυσμένα σημεία στον Καναδά (Wotawa et al. 2006) και στη Γαλλία (Bourcier et al. 2010) αλλά και σε αστικά κέντρα στη Φινλανδία (Paatero et al. 2009). Αυτά τα αποτελέσματα δείχνουν ξεκάθαρα ότι το ¹³⁷Cs που για οποιοδήποτε λόγω έχει αποτεθεί στο έδαφος και στις καλλιέργειες, μπορεί να επανεισέλθει στην ατμόσφαιρα κατά τη διάρκεια γεγονότων καύσης βιομάζας και να ανιχνεύεται σε μεγάλες αποστάσεις από την περιοχή προέλευσής του.

Στην παράγραφο αυτή παρατίθενται τα αποτελέσματα από την ανάλυση, τόσο επιλεγμένων ραδιενεργών ιχνηθετών, όσο και μετρήσεων ολικής β-ακτινοβολίας στην περιοχή της Αθήνας, εξαιτίας της εκτεταμένης καύσης βιομάζας στην ευρύτερη περιοχή της Ρωσίας, κατά την περίοδο Ιούλιος-Αύγουστος 2010. Επεισόδια ανίχνευσης ραδιενεργού ρύπανσης του ατμοσφαιρικού αέρα λόγω αυτών των επεισοδίων έχουν καταγραφεί σε πολλά σημεία της Ρωσίας και σε πλήθος άλλων ευρωπαϊκών χωρών όπως η Ουκρανία, η Εσθονία, η Φινλανδία (Portin et al. 2012; Konovalov et al. 2011; Mei et al. 2011), αλλά και η Ελλάδα (Diapouli et al. 2014). Τα αποτελέσματα από τις αναλύσεις των ραδιενεργών ίσοτόπων συνδυάστηκαν με συγκεντρώσεις ενώσεων του άνθρακα, οι οποίες είναι γνωστοί ιχνηθέτες γεγονότων που σχετίζονται με καύση βιομάζας, προκειμένου να προκύψουν πληροφορίες σχετικά με την φύση του νέφους και τον εμπλουτισμό του σε ραδιενεργά ισότοπα (Dalaka et al., 2019).

Επιπλέον, οι μετρήσεις που έγιναν στον σταθμό μέτρησης ποιότητας ατμοσφαιρικού αερολύματος του ΕΡΠ συνδυάστηκαν με αναλύσεις οπισθοτροχιών με χρήση του μοντέλου HYSPLIT⁸ (Draxler and Rolph 2012) για τη μελέτη της μεταφοράς των αερίων μαζών από τις περιοχές όπου έγινε η καύση βιομάζας, στην Αθήνα. Η μελέτη με το μοντέλο HYSPLIT κάλυψε περίοδο 220 hr (περίπου 9 ημέρες) πριν από τη δειγματοληψία και μέτρηση στο ΕΡΠ και τα ύψη τα οποία εξετάσθηκαν ήταν τα 300, 500 και 1500 m a.g.l⁹. Για μία πιο ξεκάθαρη εικόνα για τη θέση και την έκταση των πυρκαγιών, τα αποτελέσματα από τις αναλύσεις οπισθοτροχιών που αναφέρονται στην προς μελέτη περίοδο. Τα δεδομένα αυτά προέρχονται από την υπηρεσία Fire Information for Resource Management System (FIRMS), η οποία ανήκει στο πρόγραμμα της NASA Land, Atmosphere Near real-time Capability for EOS (LANCE).

Για τους σκοπούς της έρευνας αυτής αναλύθηκαν φίλτρα κυτταρίνης διαστάσεων 8×10" (Whatman 41 Quantitative) τα οποία είχαν συλλεχθεί με χρήση του δειγματολήπτη Andersen, μέσω 24ωρης δειγματοληψίας κατά το χρονικό διάστημα από 12 – 27 Αυγούστου 2010. Τα φίλτρα αναλύθηκαν στο ΕΡΠ με χρήση:

 τεχνικών ολικής-β ακτινοβολίας στο σύστημα χαμηλού υποβάθρου β-ακτινοβολίας TENNELEC-LB5100

⁸ Η λειτουργία του μοντέλου παρουσιάζεται στο Παράρτημα ΣΤ⁹ Above ground level

 τεχνικών γ-φασματοσκοπίας με χρήση του ανιχνευτή HPGe (rel. eff. 20%) και σύστημα συλλογής και επεξεργασίας φάσματος της ORTEC.

Στα πλαίσια της μελέτης αυτής αξιοποιήθηκαν επιπλέον και δεδομένα αναλύσεων μηραδιενεργών ιχνηθετών οι οποίοι σχετίζονται με περιστατικά καύσης βιομάζας. Συγκεκριμένα, χρησιμοποιήθηκαν δεδομένα ΑΣ_{2.5} οργανικού (OC) στοιχειακού (EC) και ανόργανου (CC) άνθρακα (Dalaka et al., 2019).

Το αερόλυμα που προκύπτει από την καύση βιομάζας είναι γνωστό ότι περιέχει και σημαντικές ποσότητες καλίου, καθώς η φυτική μαζα είναι είναι πλούσια σε κάλιο, το οποίο εκπέμπεται υπό μορφή K⁺ (Zhang et al. 2010; Pio et al. 2008). Το ποσοστό του διαλυτού καλίου το οποίο δεν σχετίζεται με το θαλασσινό αλάτι (non-ss¹⁰) μπορεί να ποσοτικοποιηθεί λαμβάνοντας υπόψη την αναλογία μάζας του καλίου στο νάτριο στο θαλασσινό νερό που ισούται με 0.0355 (Lai et al. 2007). Συγκεκριμένα, ισχύει η ακόλουθη σχέση:

Από τις αναλύσεις οπισθοτροχιών που έγιναν, σε συνδυασμό με τα δορυφορικά δεδομένα που απεικονίζουν την εξέλιξη των φαινομένων καύσης βιομάζας, προέκυψε ότι τα δεδομένα μπορούν να ταξινομηθούν σε τρεις περιόδους, βάσει της προέλευσης των αερίων μαζών (Dalaka et al., 2019), όπως φαίνεται στο σχήμα 6.14 που ακολουθεί.



Σχήμα 6.14 (α) Αποτελέσματα ανάλυσης οπισθοτροχιών και αποτελέσματα από δορυφορικές εικόνες για την περίοδο 12-19/08/2010. Οι κίτρινες τελείες στα γραφήματα αντιπροσωπεύουν τις εστίες καύσης βιομάζας.



Σχήμα 6.14 (β) Αναλύσεις του ύψους των τροχιών των αερίων μαζών συναρτήσει του χρόνου (σε ώρες) προ της άφιξής τους στο ΕΡΠ.

¹⁰ Non-sea salt







Σχήμα 6.14 (δ) Αναλύσεις του ύψους των τροχιών των αερίων μαζών συναρτήσει του χρόνου (σε ώρες) προ της άφιξής τους στο ΕΡΠ



Σχήμα 6.14 (ε) Αποτελέσματα ανάλυσης οπισθοτροχιών και από δορυφορικές εικόνες για την περίοδο 20-23/08/2010. Οι κίτρινες τελείες αντιπροσωπεύουν τις εστίες καύσης βιομάζας.



Σχήμα 6.14 (στ) Αναλύσεις του ύψους των τροχιών των αερίων μαζών συναρτήσει του χρόνου προ της άφιξής τους στο ΕΡΠ

Κατά την πρώτη περίοδο (12-19/8), οι αέριες μάζες που φτάνουν στην Αθήνα όπως φαίνεται και από το αντίστοιχο γράφημα του σχήματος 6.14α προέρχονται από την περιοχή της Ρωσίας και της Ουκρανίας κατά τη διάρκεια έντονων και εκτεταμένων γεγονότων που σχετίζονται με την καύση βιομάζας, τα οποία έχουν ισχυρό αντίκτυπο στην ποιότητα του αέρα στις περιοχές αυτές. Οι δορυφορικές εικόνες επιβεβαιώνουν την παρουσία εκτεταμένων πυρκαγιών στις περιοχές αυτές κατά τις ημέρες που υπάρχει επιβεβαιωμένη μεταφορά αερίων μαζών προς την Αθήνα από τις περιοχές αυτές. Η δεύτερη περίοδος (20-24/8) αφορά σε ημέρες όπου οι αέριες μάζες προέρχονται κυρίως από άλλες περιοχές, αλλά και από τις περιοχές τις Ρωσίας και της Ουκρανίας, όταν η πλειονότητα των πυρκαγιών έχει σβήσει (σχήμα 6.14γ). Τέλος, υπάρχει και η τρίτη χρονική περίοδος (26-27/8) όπου αέριες μάζες προέρχονται τόσο από την περιοχή της Ρωσίας και της Ουκρανίας και της Ουκρανίας όταν εμφανίζονται ξανά φαινόμενα καύσης βιομάζας, όσο και από τον Ατλαντικό (σχήμα 6.14ε). Όμως στην περίοδο αυτή τα φαινόμενα καύσης βιομάζας δεν είναι τόσο εκτεταμένα όσο αυτά που εμφανίσθηκαν κατά την περίοδο 12-19/8.

Στο σχήμα 6.15 που ακολουθεί παρουσιάζεται η κύμανση των συγκεντρώσεων μη ραδιενεργών ιχνηθετών που σχετίζονται με φαινόμενα καύσης βιομάζας αλλά και μεταφοράς εδαφικής σκόνης (OC, EC και CC). Όπως φαίνεται, κατά τις περιόδους που τα φαινόμενα είναι έντονα (σκούρες μπλε περιοχές) οι συγκεντρώσεις τους είναι υψηλότερες από ότι στις υπόλοιπες χρονικές περιόδους, επιβεβαιώνοντας και σε αυτή τη μελέτη την εξάρτησή τους από τα φαινόμενα καύσης βιομάζας. Οι τιμές αυτές προέρχονται από αναλύσεις που έγιναν κατά την εργασία Diapouli et al., 2014 και χρησιμοποιήθηκαν και στην παρούσα Δ.Δ., προκειμένου να συσχετισθούν με την κύμανση των ισοτόπων/ ιχνηλατών ενδιαφέροντος υπό το πρίσμα των φαινομένων καύσης βιομάζας. Οι μέσες τιμές τους κατά την περίοδο πριν και αμέσως μετά συμβάν καύσης βιομάζας είναι για τον οργανικό άνθρακα (CC) 2.74 μg/m³, για τον στοιχειακό άνθρακα (EC) 1.53μg/m³ και για τον ανόργανο άνθρακα (CC) 0.16 μg/m³.



Σχήμα 6.15 Αποτελέσματα αναλύσεων OC, EC, CC, nss K⁺κανονικοποιημένα με PM10 (Diapouli et al.,2014). Οι περίοδοι που αφορούν σε γεγονότα καύσης βιομάζας σημειώνονται με σκούρο μπλε χρώμα, και οι περίοδοι που επηρεάζονται λιγότερο με πιό ανοιχτό χρώμα.

Κατά τη διάρκεια συμβάντος οι υψηλότερες τιμές που παρατηρήθηκαν ήταν στις 18 Αυγούστου όπου οι συγκεντρώσεις του ΟC ήταν 5.49μg/m³, του EC 0.64 μg/m³, και του CC 0.32 μg/m³. Το γεγονός αυτό μπορεί να θεωρηθεί ως ένδειξη περιστατικού καύσης βιομάζας κατά τη διάρκεια της περιόδου 12-19 Αυγούστου 2010 (Dalaka et al., 2019).

Στο σχήμα 6.16 και τον πίνακα 6.2 παρουσιάζονται οι συγκεντρώσεις των ισοτόπων που εκπέμπουν γ-ακτινοβολία (⁴⁰Κ και ⁷Be) καθώς και τα αποτελέσματα των μετρήσεων ολικήςβ ακτινοβολίας.



Σχήμα 6.16 Αποτελέσματα αναλύσεων γ-φασματομετρίας και ολικής-β. Οι περίοδοι που αφορούν σε γεγονότα καύσης βιομάζας σημειώνονται με σκούρο μπλε χρώμα, και οι περίοδοι που επηρεάζονται λιγότερο με πιό ανοιχτό χρώμα.

	ολική -β	⁴⁰ K	⁷ Be
	(mBq/m³)	(mBq/m³)	(mBq/m³)
Μέση τιμή	1.63	0.56	10.20
Τυπική απόκλιση	0.51	0.70	2.18
Ελάχιστο	0.99	<mda< th=""><th>6.68</th></mda<>	6.68
Μέγιστο	2.32	2.00	12.69

Κατά τη διάρκεια γεγονότων καύσης βιομάζας

Κατά τη διάρκεια περιόδου χωρίς γεγονότα καύσης βιομάζας

	ολική -β	⁴⁰ K	⁷ Be
	(mBq/m³)	(mBq/m³)	(mBq/m³)
Μέση τιμή	0.68	0.13	9.12
Τυπική απόκλιση	0.18	0.16	1.50
Ελάχιστο	0.47	<mda< th=""><th>7.48</th></mda<>	7.48
Μέγιστο	0.90	0.33	10.93

Πίνακας 6.2 Αποτελέσματα αναλύσεων γ-φασματοσκοπίας και ολικής –β κατά τις περιόδους που αφορούν σε γεγονότα καύσης βιομάζας και σε περιόδους που επηρεάζονται λιγότερο.

Όπως διαπιστώνεται από τον Πίνακα 6.2, αυξημένα επίπεδα ραδιενέργειας (τόσο γ- όσο και β-ακτινοβολίας) ανιχνεύθηκαν κατά τις περιόδους που αφορούν στα γεγονότα καύσης βιομάζας εν σχέση με τις υπόλοιπες ημέρες. Αυτό μπορεί να οφείλεται σε υψηλότερα ποσοστά ισοτόπων φυσικής προέλευσης, όπως είναι το ⁴⁰K, που ελευθερώνεται στο πλούμιο του καπνού, όπως και στην επαναιώρηση της εδαφικής σκόνης στο πλούμιο της καύσης βιομάζας, ένα φαινόμενο το οποίο παρατηρείται πολύ συχνά κατά τη διάρκεια έντονων πυρκαγιών, εξαιτίας της αυξημένης τυρβώδους ανάμειξης κοντά στο μέτωπο της φωτιάς. Αυτό το γεγονός μπορεί να ενισχυθεί κατά τη διάρκεια εκτεταμένων πυρκαγιών που συνοδεύονται από ισχυρούς ανέμους (Diapouli et al. 2014).

Τυπικά, τα επίπεδα του ⁴⁰K στο αερόλυμα είναι χαμηλά, και κυμαίνονται μεταξύ 0.96·10⁻² και 2.27·10⁻² mBq/m³ στην Πολωνία (Grabowska et al. 2003), και μεταξύ 0.02·10⁻² και 9.7·10⁻² στην Ισπανία (Baeza et al. 2016). Μετρήσεις που έγιναν στον σταθμό μέτρησης ποιότητας ατμοσφαιρικού αερολύματος του ΕΡΠ για τον μήνα Αύγουστο κατέληξαν σε συγκεντρώσεις της τάξης των 0.01 - 0.02 mBq/m³ με κατώτερο όριο ανίχνευσης στα 0.005 mBq/m³ (Dalaka et al. 2019) (αφορά τον ανιχνευτή HPGe-α για μέτρηση 24 ωρών).



Σχήμα 6.17 Εποχική κύμανση συγκεντρώσεων ⁴⁰Κ για τα έτη 2011-2017, όπως προέκυψε από δειγματοληψίες στον σταθμό μέτρησης ποιότητας ατμοσφαιρικού αερολύματος του ΕΡΠ.

Πολύ ψηλότερες συγκεντρώσεις ⁴⁰Κ μετρήθηκαν κατά την εξεταζόμενη περίοδο, με μέγιστη συγκέντρωση στα 2 mBq/m³ στις 12 Αυγούστου. Επίσης, σχετικά ψηλότερες ήταν και οι τιμές κατά την πρώτη περίοδο όταν υπήρχαν και τα επιβεβαιωμένα γεγονότα καύσης βιομάζας, συγκριτικά με περιόδους που το φαινόμενο της καύσης βιομάζας δεν ήταν σε έξαρση. Είναι λοιπόν ξεκάθαρο ότι αυτές οι αυξημένες συγκεντρώσεις ⁴⁰Κ σχετίζονται με την ύπαρξη μεγάλης έκτασης καύσης βιομάζας στις περιοχές της Ρωσίας και Ουκρανίας. Το φαινόμενο αυτό παρατηρείται πολύ συχνά κατά την διάρκεια εκτεταμένων φαινομένων καύσης βιομάζας εξαιτίας της αυξημένης τυρβώδους ανάμειξης κοντά στο μέτωπο της φωτιάς (Kavouras et al. 2012). Επίσης, όπως φαίνεται και στο σχήμα 6.15 αλλά και στην εργασία Diapouli et al., (2014) κατά τις ίδιες περιόδους που αναφέρονται σε φαινόμενα καύσης βιομάζας, παρατηρήθηκε σημαντική αύξηση συγκεντρώσεων συστατικών του εδάφους στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα στον σταθμό μέτρησης της ποιότητας του ατμοσφαιρικού αερολύματος του ΕΡΠ (Diapouli et al., 2014).

Αναφορικά με το ισότοπο ⁷Be, το οποίο λόγω της φύσης του χρησιμοποιείται συχνά ως ιχνηθέτης για τη μελέτη της κίνησης των αερίων μαζών και της μεταφοράς ρύπων σε αέρια ή σωματιδιακή μορφή, τα επίπεδά του κατά την εξεταζόμενη περίοδο είναι αρκετά υψηλά, (Σχήμα 6.16). Αυτό μπορεί να εξηγηθεί, ειδικά κατά την πρώτη περίοδο όπου εμφανίζονται μεγάλης κλίμακας γεγονότα καύσης βιομάζας, από το γεγονός ότι τέτοιου είδους γεγονότα μπορούν να προκαλέσουν αστάθεια στην ατμόσφαιρα και εισβολή μαζών αέρα από την στρατόσφαιρα οι οποίες είναι εμπλουτισμένες με συγκεντρώσεις του κοσμικού ισοτόπου ⁷Be (Rogers and Nielson, 1991; Duenas et al. 2009; Feely et al. 1989). Η κύμανση της συγκέντρωσης του ισοτόπου ⁷Be δεν ακολουθεί την πορεία του ⁴⁰K το οποίο αποτελεί ιχνηθέτη φαινομένων καύσης βιομάζας.

Όσον αφορά στις μετρήσεις ολικής-β ακτινοβολίας πρέπει να αναφερθεί ότι τα ισότοπα που εκπέμπουν β-ακτινοβολία μπορούν να είναι είτε φυσικής (π.χ. ³H, ⁴⁰K, ²¹⁰Pb, βραχύβια θυγατρικά ραδονίου και θορονίου) είτε τεχνητής προέλευσης¹¹ (π.χ. ⁹⁰Sr, ⁹⁰Y, ⁵¹Cr, ⁵⁴Mn, ⁵⁹Fe, ⁵⁸Co, ⁶⁰Co, ⁶⁵Zn, ⁹⁵Nb, ⁹⁵Zr, ¹⁰³Ru, ¹⁰⁶Ru, ¹³¹I, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ¹⁴⁰Ba, ¹⁴⁰La, ¹⁴⁴Ce). Καθώς η ολική-β ακτινοβολία παρουσιάζει εποχική κύμανση, οι μεταβολές της μπορεί να περιέχουν πληροφορίες σχετικά με διάφορες ατμοσφαιρικές διεργασίες (όπως η επαναιώρηση της

¹¹ Μπορεί να ανιχνεύονται στον άερα στην περίπτωση πυρηνικού ή ραδιολογικού ατυχήματος και σε εξαιρετικές περιπτώσεις λόγω επαναιώρησης (π.χ. ¹³⁷Cs)

εδαφικής σκόνης). Τα επίπεδα της ολικής-β ακτινοβολίας κατά τους θερινούς μήνες αναμένεται να είναι σχετικά υψηλά, καθώς οι συγκεντρώσεις σκόνης είναι σχετικά υψηλές, λόγω του χαμηλότερου ρυθμού υγρής εναπόθεσης (Duenas et al. 1999). Τυπικά επίπεδα β-ακτινοβολίας, από μετρήσεις δειγμάτων ραδιενεργού αερολύματος που έχουν γίνει στο ΕΡΠ για την περίοδο του Αυγούστου είναι <5 mBq/m³ (EUR 23555 2009). Οι σημαντικά αυξημένες συγκεντρώσεις που παρατηρούνται κατά την εξεταζόμενη περίοδο, οπότε παρατηρείται μεταφορά αερίων μαζών επηρεασμένων από πλούμια καύσης βιομάζας, είναι μία σαφής ένδειξη ότι τέτοιου είδους αερολύματα μπορούν να είναι εμπλουτισμένα με β-ραδιενεργά ισότοπα (Dalaka et al., 2019).

Ο προσδιορισμός ραδιενεργών ιχνηθετών στο αερόλυμα, επέτρεψε τη διερεύνηση της συσχέτισής τους με τους παραδοσιακούς ιχνηθέτες καύσης βιομάζας (OC, EC, OC/EC, K+ και nss K+). Στον Πίνακα 6.3 που ακολουθεί παρατίθενται οι τιμές του συντελεστή συσχέτισης μεταξύ των διαφόρων ιχνηθετών.

	Ολική -β	K-40	Be-7
K+	0.67	0.69	0.78
nss-K+	0.72	0.66	0.78
EC	0.63	0.74	0.44
OC/EC	-0.07	-0.48	-0.27
OC	0.47	0.2	0.17
СС	0.33	0.48	0.05
Mg ₂ +	-0.21	0.07	0.1
Ca ₂ +	-0.41	-0.37	-0.17

Πίνακας 6.3 Συντελεστές συσχέτισης μεταξύ των συγκεντρώσεων των ραδιενεργών ιχνηθετών και των παραδοσιακών ιχνηθετών καύσης βιομάζας. Τα δεδομένα σχετικά με τις συγκεντρώσεις ιόντων, EC, OC, και CC προέρχονται από την εργασία Diapouli et al. (2014)

Λόγω του σχετικά μικρού πλήθους των διαθέσιμων δεδομένων δεν μπορεί σε πολλές περιπτώσεις να διαπιστωθεί η στατιστικά σημαντική συσχέτιση μεταξύ των ιχνηθετών, παρόλαυτά οι τιμές του συντελεστή συσχέτισης δίνουν μία καλή πληροφορία για το πόσο έντονη είναι η τάση συσχέτισης μεταξύ των ιχνηθετών. Τα γεγονότα μεταφοράς νέφους καύσης βιομάζας από τις περιοχές της Ρωσίας και της Ουκρανίας που μελετήθηκαν, χαρακτηρίζονται από αυξημένες συγκεντρώσεις ανθρακικού αερολύματος (στοιχειακού και οργανικού άνθρακα). Το κάλιο, ένας πολύ διαδεδομένος ιχνηθέτης καύσης βιομάζας, δεν βρέθηκε σε πολύ ψηλές συγκεντρώσεις. Η μεταφορά εδαφικής σκόνης μέσω του νέφους από την καύση βιομάζας τεκμηριώνεται και λόγω της αύξησης των συγκεντρώσεων του ανόργανου άνθρακα (CC) (Diapouli et al. 2014). Όπως είναι αναμενόμενο, το ⁴⁰K συσχέτιση με το K⁺ και το nss K⁺, γεγονός που δείχνει ότι οι παρατηρούμενες αυξημένες συγκεντρώσεις του δείχνει ότι οι παρατηρούμενες αυξημένες συγκεντρώσεις τοι δείχνει ότι οι παρατηρούμενες αυξημένες συγκεντρώσεις και το δομάζης του συντελου ανόργανου άνθρακα (CC) (Diapouli et al. 2014). Όπως είναι αναμενόμενο, το ⁴⁰K συσχέτιση με το K⁺ και το nss K⁺, γεγονός που δείχνει ότι οι παρατηρούμενες αυξημένες συγκεντρώσεις μπορούν κυρίως να αποδοθούν σε φαινόμενα καύσης βιομάζας. Δεν παρατηρήθηκε ισχυρή τάση συσχέτισης των συστατικών του εδάφους (CC, Ca²⁺, Mg²⁺) και ραδιενεργών ιχνηθετών (⁴⁰K και ολική –β ραδιενέργεια), και το γεγονός αυτό δείχνει ότι οι

αυξημένες συγκεντρώσεις αυτών των ισοτόπων έχουν να κάνουν περισσότερο με την καύση βιομάζας αυτή κάθε αυτή παρά με το φαινόμενο της επαναιώρησης και της μεταφοράς εδαφικής σκόνης από τις περιοχές αυτές (Dalaka et al., 2019). Αυτό επίσης δείχνει και η καλή συσχέτιση του ⁴⁰K και της ολικής–β ακτινοβολίας με τον στοιχειακό άνθρακα, ο οποίος συνδέεται πάντα με διεργασίες καύσης. Η έλλειψη συσχέτισης μεταξύ όλων των ραδιενεργών ιχνηθετών και του οργανικού άνθρακα ή του λόγου OC/EC μπορεί να έχει να κάνει με την πτητικότητα των οργανικών ενώσεων κατά τη μεταφορά του νέφους καύσης βιομάζας (Donahue et al. 2006).

6.4 Ανίχνευση ραδιενεργών ισοτόπων που σχετίζονται με ραδιολογικά ατυχήματα

Στα πλαίσια της Δ.Δ. πραγματοποιήθηκαν συστηματικές δειγματοληψίες ατμοσφαιρικού αερολύματος με χρήση αδρανειακού δειγματολήπτη πολλαπλών σταδίων και αναλύσεις με τεχνικές γ-φασματομετρίας. Τέτοιου είδους αναλύσεις γίνονταν ήδη από το 2011 και αποσκοπούν, τόσο στη δημιουργία των χρονοσειρών των ισοτόπων ενδιαφέροντος, όσο και στη γενικότερη παρακολούθηση της ραδιενέργειας στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα. Από την εμπειρία που έχει αποκτηθεί λόγω του μεγάλου όγκου των μετρήσεων που έχουν διαχρονικά πραγματοποιηθεί και από τις διεργαστηριακές επικοινωνίες στα πλαίσια του Ro5, έχι διαπιστωθεί ότι η ανίχνευση ισοτόπων τα οποία δεν αναμένεται φυσιολογικά να ανιχνεύονται στην ατμόσφαιρα ήταν πολύ συχνότερη από ό,τι κανείς θα υπέθετε (Masson et al., 2018). Εν γένει, στην περίπτωση που κάποιος σταθμός του δικτύου Ro5 ανιχνεύσει κάτι ασυνήθιστο στην ατμόσφαιρα, όπως ισότοπα που δεν αναμένεται να ανιχνεύονται, ή αυξημένες συγκεντρώσεις ισοτόπων που συνήθως ανιχνεύονται, συνήθως ακολουθείται η τακτική να μην διαδίδεται η πληροφορία αυτή έξω από τα όρια της χώρας. Όμως, σε ορισμένες περιπτώσεις, κυρίως όταν δεν υπάρχει προφανής λόγος που να δικαιολογεί την ανίχνευση κάποιου ισοτόπου – όπως για παράδειγμα όταν ο σταθμός μέτρησης είναι μακριά από κάποια πυρηνική εγκατάσταση (Masson et al., 2018) – η πληροφορία αυτή διαχέεται στην κοινότητα του Ro5.

Λαμβάνοντας υπόψ τα παραπάνω, κατά την ανάλυση των φασμάτων των δειγμάτων που συλλέχθηκαν στα πλαίσια της Δ.Δ., σε κάθε περίπτωση δινόταν προσοχή για την πιθανή ανίχνευση ισοτόπων που σχετίζονται με εκπομπές λόγω πυρηνικών ή ραδιολογικών ατυχημάτων. Τα περιστατικά όπου έχει γίνει ανίχνευση – ευτυχώς πολύ λίγα και αμελητέας ραδιοβιολογικής σημασίας – παρουσιάζονται στις επόμενες παραγράφους.

6.4.1 Ανάλυση δειγμάτων όπου ανιχνεύεται ¹³¹Ι

Ένα περιστατικό ανίχνευσης μη αναμενόμενου ραδιενεργού ισοτόπου στο αερόλυμα ήταν αυτό της ανίχνευσης ¹³¹Ι που έγινε στην περίοδο Ιανουαρίου/Φεβρουαρίου του 2017. Εν γένει, οι συγκεντρώσεις που ανιχνεύθηκαν στην Ευρώπη ήταν πολύ χαμηλές – της τάξεως των 0.1-10 μBq/m³ – με εξαίρεση μία περιοχή στη Ρωσία που έφτασε και τα μερικά mBq/m³ (Masson et al., 2018). Η ανίχνευση ¹³¹Ι ενεργοποίησε το δίκτυο εργαστήριων Ro5, τα οποία για χρονικό διάστημα περίπου 8 εβδομάδων συνέλεγαν συνεχώς δεδομένα από περίπου 30 σταθμούς μελέτης της ραδιενέργειας στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα, με σκοπό τη χρήση των δεδομένων αυτών σε μοντέλα που θα μπορούσαν να καταδείξουν την πορεία του ατμοσφαιρικού αερολύματος πίσω στον χρόνο, ώστε να προσδιορισθούν οι πιθανές πηγές και οι αιτίες της εκπομπής. Το συγκεκριμένο γεγονός, παρά την αμεληταία ραδιοβιολογική σημασία του, πήρε μεγάλες διαστάσεις στα ΜΜΕ και στα μέσα κοινωνικής
δικτύωσης (Petrova et al., 2017) όταν δημοσιεύθηκε χάρτης ο οποίος είχε όλες τις μετρήσεις μέχρι και την πρώτη εβδομάδα του Φεβρουαρίου¹².

Μια πηγή του ¹³¹Ι, η οποία εξετάσθηκε ως πιθανότητα, είναι μονάδα παραγωγής ραδιοφαρμάκων. Κατά καιρούς, μέσα στην τελευταία δεκαετία, έχουν υπάρξει αρκετές περιπτώσεις εκπομπής ¹³¹Ι από τέτοιου είδους μονάδες, οι οποίες βρίσκονται καταγεγραμμένες στην βιβλιογραφία, όπου παρέχονται πληροφορίες για τα προφίλ διασποράς των εκπομπών ¹³¹Ι στην Ευρώπη (Artus and Faurous, 1994; Tombuyses et al., 2009; Matthews et al., 2010; Vandecasteele et al., 2011; Leelossy et al., 2017; Tichy et al., 2017). Τα περισσότερα δεδομένα προέρχονται από τους σταθμούς μέτρησης της ποιότητας του αερολύματος που ανήκουν στο δίκτυο Ro5.

Η πρώτη ανίχνευση του ισοτόπου ¹³¹Ι έγινε την εβδομάδα 9-16 Ιανουαρίου 2017 από την Αρχή Ραδιολογικής Προστασίας της Νορβηγίας (Norwegian Radiation Protection Authority) στο Svanvik¹³ της Νορβηγίας, από την Φινλανδική Αρχή Ραδιολογικής και Πυρηνικής Προστασίας (Finnish Radiation and Nuclear Safety Authority) στο βορειότερο τμήμα της Φινλανδίας (Rovaniemi) και από το Κεντρικό Εργαστήριο Ραδιολογικής Προστασίας της Πολωνίας στην Βαρσοβία (Masson et al., 2018).

Αν και οι περισσότερες μετρήσεις που δόθηκαν από μέλη του Ro5 αποδείχθηκε ότι ήταν της τάξης των μBq/m³ – πολύ κοντά στα όρια ανίχνευσης – κατά τη διάρκεια του επεισοδίου σημειώθηκαν 38 συνολικά περιπτώσεις ανίχνευσης του ισοτόπου ¹³¹Ι, σε 26 διαφορετικά σημεία στην Ευρώπη, όπως φαίνονται στο σχήμα 6.18 που ακολουθεί στην επόμενη σελίδα.

Όπως παρατηρείται στο σχήμα 6.18 οι συγκεντρώσεις του ¹³¹Ι κατά την πρώτη εβδομάδα του συμβάντος είναι ιδιαίτερα υψηλές στην περιοχή της δυτικής Ρωσίας, παρέχοντας σαφείς ενδείξεις για την πιθανή πηγή της ρύπανσης. Αναφορικά με την Ελλάδα, τέθηκαν στη διάθεση του Ro5 τα αποτελέσματα των μετρήσεων που έγιναν στα πλαίσια της Δ.Δ. και τα οποία ήταν σταθερά κάτω από το όριο ανίχνευσης (0.0006 mBq/m³ – αφορά μέτρηση στον ανιχνευτή HPGe(α) για χρόνο μέτρησης μίας ημέρας).

Εξετάζοντας όλα τα εβδομαδιαία δείγματα διαπιστώνεται ότι τα επίπεδα του ¹³¹Ι παραμένουν στην ατμόσφαιρα στα επίπεδα των λίγων μBq/m³ με υψηλότερη τιμή στην Ουγγαρία (Budapest) όπου σημειώθηκε μία τιμή στα 9.8 μBq/m³, τη δυτική Ρωσία όπου το ¹³¹Ι έφτασε τις μερικές δεκάδες μBq/m³ και στην πόλη Dubna και στο Obninsk (περίπου 100 km νοτιοδυτικά της Μόσχας) όπου έφτασαν την τάξη μεγέθους των 9.8 mBq/m³ (Masson et al., 2018), γεγονός που δείχνει το ότι υπάρχει υψηλός λόγος συγκέντρωσης στην περιοχή αυτή (Masson et al., 2018). Ο σταθμός στην πόλη Dubna ανήκει στο Διεθνές Σύστημα παρακολούθησης (International Monitoring System - IMS) που υποστηρίζει τον οργανισμό CTBTO¹⁴.

¹² Detection of radioactive iodine at trace levels in Europe in January 2017.

http://www.irsn.fr/en/newsroom/news/pages/20170213_detection-of-radioactive-iodine-at trace-levels-in-europe-in-january-2017.aspx (accessed September 29, 2017)

¹³ Πρόκειται για το βορειότερο σημείο μέτρησης ποιότητας του ατμοσφαιρικού αερολύματος στην Ευρώπη.

¹⁴ (Comprehensive nuclear Test Ban Treaty Organization) (International Monitoring System. http://ims.ctbto.org/ (accessed June 30, 2017); Map of monitoring stations https://www.ctbto.org/map/ (accessed June 2017))



Σχήμα 6.18 Εβδομαδιαία κύμανση σωματιδιακού ¹³¹Ι (μΒq/m³) την περίοδο Ιανουάριο/Φεβρουάριο 2017 και διαγράμματα box για τις 36 εβδομαδιαίες τιμές (Masson et al., 2018)

Λόγω περιορισμών που επιβάλλονται από σύμφωνα εμπιστευτικότητας, δεν μπορούν να δοθούν δεδομένα για τον σταθμό IMS. Καθώς, με εξαίρεση τους σταθμούς της Ρωσίας κανείς άλλος σταθμός δεν μέτρησε αξιόλογες τιμές ¹³¹Ι, υπήρχε μία πρώτη ιδέα ως προς την πιθανή προέλευσή του ¹³¹Ι (Masson et al., 2018).

Ακολούθησε διερεύνηση προκειμένου να προσδιορισθεί καλύτερα η προέλευση του ¹³¹Ι και η πιθανή πηγή εκπομπής του. Η εργασία αυτή έγινε με βάση τα δεδομένα που προέκυψαν από τις αναλύσεις που παρείχαν τα συνεργαζόμενα εργαστήρια του Ro5. Με δεδομένο ότι υπήρχε πολύ μεγάλη διασπορά του ισοτόπου σε όλη την Ευρώπη, αλλά και το γεγονός ότι, αν και οι συγκεντρώσεις ήταν πολύ χαμηλές ήταν όλες στο ίδιο περίπου εύρος¹⁵, εύλογη ήταν η υπόθεση ότι η πηγή του ¹³¹Ι ήταν πολύ μακρινή, ή ότι υπήρξε συνδυασμός εκπομπών από περισσότερες από μία πηγές (Masson et al., 2018). Ακολούθως, πραγματοποιήθηκαν αναλύσεις επιμερισμού πηγών (source apportionment) και δοκιμάσθηκαν μία σειρά από υποθέσεις από την ομάδα του Masson, η οποία είχε αναλάβει και τη συγκέντρωση των δεδομένων από τα συνεργαζόμενα εργαστήρια. Μία εξ'αυτών ήταν η πιθανότητα ατυχήματος σε πειραματικό αντιδραστήρα, ή σε μονάδα παραγωγής ραδιοφαρμάκων. Μία άλλη υπόθεση η οποία δοκιμάσθηκε ήταν η πιθανότητα εκπομπής από κλιβάνους αποτέφρωσης αποβλήτων νοσοκομειακών μονάδων που χρησιμοποιούν ραδιοφάρμακα, ενώ δοκιμάστηκαν και ακραίες υποθέσεις, όπως η εκπομπή ¹³¹Ι από αυθόρμητη σχάση φυσικού ουρανίου ²³⁸U. Τέλος, διερευνήθηκε και το ενδεχόμενο το ¹³¹I να προέρχεται από κάποια εγκατάσταση Πυρηνικού Αντιδραστήρα Ισχύος σε συνθήκες κανονικής λειτουργίας. Όλες οι υποθέσεις βασίσθηκαν σε εκτενείς βιβλιογραφικές αναφορές που σχετίζονται με παρόμοιες εκπομπές ¹³¹Ι σε διάφορες περιοχές της Ευρώπης και στα δεδομένα τα οποία ήταν διαθέσιμα από κάθε σταθμό μέτρησης. Οι υποθέσεις αυτές παρουσιάζονται στο σχήμα 6.19 που ακολουθεί το οποίο παρουσιάζει τον καταμερισμό των πηγών του σωματιδιακού ¹³¹Ι για τα παραπάνω πιθανά σενάρια, βάσει υποθέσεων που στηρίζονται στη βιβλιογραφία.



Σχήμα 6.19 Ανάλυση επιμερισμού πηγών ¹³¹Ι (μBq/m³) στον αέρα στην Ευρώπη για την περίοδο Ιανουάριος-Φεβρουάριος 2017 βάσει υποθέσεων πηγών από τη βιβλιογραφία (Masson et al., 2018)

Από τις αναλύσεις που έγιναν προέκυψε ότι οι μόνες περιπτώσεις που δεν μπορούν να αποκλεισθούν είναι αυτές που έχουν να κάνουν με εκπομπές σε τοπική κλίμακα από κλιβάνους αποτέφρωσης νοσοκομειακών αποβλήτων η από εγκαταστάσεις παραγωγής ή διαχείρισης ραδιοφαρμάκων (Masson et al., 2018).

Μετά από αναλύσεις επιμερισμού πηγών (source apportionment) και λαμβάνοντας υπόψη τα μετεωρολογικά δεδομένα που επικρατούσαν την περίοδο κατά την οποία παρατηρήθηκε

Διδακτορική Διατριβή Αικατερίνης Δαλάκα

¹⁵ Με εξαίρεση τους σταθμούς της Ρωσίας

το συμβάν, το γενικό συμπέρασμα ήταν ότι η ανίχνευση ¹³¹Ι στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα οφείλεται σε έναν συνδυασμό, αφενός πολλαπλών πηγών εκπομπής και αφετέρου στις μτεωρολογικές συνθήκες που δημιουργούσαν συνθήκες ασθενούς διάχυσης του ατμοσφαιρικού αερολύματος. Οι πιθανές πηγές ¹³¹Ι θα μπορούσαν να είναι (Masson et al., 2018):

- Μία βιομηχανία ραδιοφαρμάκων (είναι και η πιθανότερη εκδοχή). Με βάση τα δεδομένα των αναλύσεων τα οποία προέκυψαν από τα συνεργαζόμενα εργαστήρια, και από τα μοντέλα που χρησιμοποιήθηκαν η περιοχή του Obninsk φαίνεται να είναι η πιο πιθανή περιοχή που ευθύνεται για τις εν λόγω εκπομπές σε συνδυασμό και με κάποια ποσοστά εκπομπών από το Karpov Institute τα οποία όμως ήταν εντός των επιτρεπτών ορίων.
- Άλλες εκπομπές από μονάδες παραγωγής ραδιοφαρμάκων στην Ουγγαρία και σε μικρότερο βαθμό στην Πολωνία, ενδεχομένως να εξηγούν και τις συγκεντρώσεις που παρατηρήθηκαν κατά την δεύτερη και την τέταρτη εβδομάδα (όπως φαίνεται και στο σχήμα 6.18.
- Πέρα από τις προαναφερθείσες πηγές, υπήρχαν και πολλαπλές πηγές δευτερευούσης σημασίας (πχ από νοσοκομεία στα οποία εκτελούνται θεραπείες με ραδιοφάρμακα, από κλιβάνους που διαχειρίζονται τα νοσοκομειακά απόβλητα τέτοιων εγκαταστάσεων) οι οποίες ήταν μεν πολύ ασθενείς, αλλά κι αυτές συνεισέφεραν με τη σειρά τους σε τοπική κλίμακα.
- Σε κάθε περίπτωση οι εκπομπές ¹³¹Ι από Πυρηνικά Εργοστάσια Ισχύος ήταν πολύ ασθενείς ώστε να ανιχνευθούν ακόμα και από τους σταθμούς μέτρησης οι οποίοι είναι εγκατεστημένοι στην περιοχή.

Για όλες αυτές τις εκπομπές ενδεχομένως και να μην είχε δοθεί σημασία αν οι καιρικές συνθήκες δεν ήταν τόσο δυσμενείς με έντονες αντιστροφές της κατακόρυφης κλίσης της θερμοκρασίας στα κατώτερα στρώματα της ατμόσφαιρας, κάτο που είχε ως αποτέλεσμα υπέρβαση των συγκεντρώσεων ¹³¹Ι στο επίπεδο του εδάφους και ενεργοποίηση των εργαστηρίων του Ro5.

Άλλες περιπτώσεις ανίχνευσης του ισοτόπου ¹³¹Ι

Από τότε που το Εργαστήριο Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος του ΕΚΕΦΕ – «Δημόκριτος» έγινε μέλος του συνδέσμου Ro5 έχουν προκύψει κι άλλα περιστατικά ανίχνευσης του ισοτόπου ¹³¹Ι (με πιο πρόσφατο τον Σεπτέμβριο του 2018) σε επίπεδα όμως τόσο χαμηλά που δεν παρουσίαζαν κάποιο ενδιαφέρον από ραδιοβιολογικής άποψης. Παρόμοιες ανιχνεύσεις έχουν γίνει συχνα στο παρελθόν κυρίως από χώρες της βόρειας Ευρώπης. Συγκεκριμένα, στο τέλος του φθινοπώρου του 2011, ανιχνεύθηκε ποσότητα ¹³¹Ι στην ατμόσφαιρα της Ευρώπης, μετά από εκπομπή από μία εγκατάσταση παρασκευής ραδιοφαρμάκων στην Ουγγαρία (Steinhauser et al., 2012; IAEA Source of Iodine-131 in Identified.http://www.iaea.org/newscenter/pressreleases/2011/prn201127.html Europe accessed July 2012; Masson et al., 2018). Σε χώρες της σκανδιναβικής ανιχνεύτηκαν επίσης ίχνη ¹³¹Ι και εν συνεχεία αναφέρθηκαν οι περιπτώσεις αυτές στο Ro5 σε διάφορες χρονικές στιγμές, όπως κατά τη χρονική περίοδο του Ιανουαρίου/Φεβρουαρίου 2012, Μαρτίου 2015, Οκτωβρίου 2016, και πιο πρόσφατα τον Ιανουάριο ως τις αρχές του Μαρτίου του 2018 (Masson et al., 2018). Σε όλες τις περιπτώσεις το Εργαστήριο Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος, μέσω των μετρήσεων που γίνονται στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. συμμετείχε στην διεργαστηριακή ανταλλαγή πληροφοριών, και σε κάθε περίπτωση οι τιμές της ενεργότητας ήταν σταθερά κάτω από το όριο ανίχνευσης. Ενδεικτικά, παρατίθεται ο ακόλουθος πίνακας 6.4, όπου παρουσιάζονται τα αποτελέσματα της ανάλυσης δειγμάτων στο ΕΡΠ σε περιπτώσεις κατά τις οποίες ανιχνεύθηκαν μικροποσότητες από κάποιο/ά εργαστήριο/α – μέλη του Ro5. Σε κάθε περίπτωση τα αποτελέσματα των δειγματοληψιών/ αναλύσεων στο ΕΡΠ έδειξαν ¹³¹Ι κάτω από τα όρια ανίχνευσης.

Ισότοπο	Ενέργεια	Ημερομηνία Έναρξης Ημερομηνία Λήξης		Ενεργότητα	
10010/10	[keV]	Δειγματοληψίας	Δειγματοληψίας	[mBq/m ³]	
¹³¹	364.5	3/1/2018	10/1/2018	<6.43E-04	
		10/1/2018	17/1/2018	<6.71E-04	
		13/9/2018	20/9/2018	<6.72E-04	
		20/9/2018	27/9/2018	<5.86E-04	

Πίνακας 6.4 Δείγματα που αναλύθηκαν στο ΕΡΠ τα οποία ήταν ύποπτα για πιθανή ύπαρξη ¹³¹Ι. Σε κάθε περίπτωση οι τιμές είναι κάτω από το όριο ανίχνευσης (ποσοστό εμπιστοσύνης, 90%)

6.4.2. Ανάλυση δειγμάτων όπου ανιχνεύεται ¹⁰⁶Ru

To ¹⁰⁶Ru, (χρόνος ημιζωής 373.6 ημέρες) είναι ένα ισότοπο που εκπέμπει μόνο β-ακτινοβολία. Το αντίστοιχο στοιχείο ρουθήνιο είναι μέταλλο που ανήκει στην οικογένεια των μετάλλων του λευκοχρύσου. Κατά την αποδιέγερσή του το ¹⁰⁶Ru καταλήγει στο ισότοπο ¹⁰⁶Rh το οποίο έχει πολύ μικρό χρόνο ημιζωής (30.1 sec) με συνέπεια μετά την πάροδο μερικών λεπτών να είναι εξασφαλισμένη η ισορροπία μεταξύ ¹⁰⁶Ru και ¹⁰⁶Rh. Το ¹⁰⁶Rh αποδιεγείρεται εκπέμποντας β-ακτινοβολία αλλά σε αντίθεση με το πατρικό του, η αποδιέγερσή του συνοδεύεται και από εκπομπή γ-ακτινοβολίας από το θυγατρικού του ¹⁰⁶Pd. Η ακτινοβολία αυτή μπορεί να χρησιμοποιηθεί για την ανίχνευση του ¹⁰⁶Rh και συνεπώς του ¹⁰⁶Ru, χρησιμοποιώντας τεχνικές γ-φασματοσκοπίας (Hult and Lutter, 2017).

Η ισχυρότερη φωτοκορυφή που εμφανίζεται σε ένα φάσμα δείγματος που περιέχει ¹⁰⁶Ru είναι στα 511.9 keV. Δυστυχώς όμως αυτή η φωτοκορυφή δεν είναι δυνατόν να αξιοποιηθεί καθώς είναι πολύ κοντά στην φωτοκορυφή που αντιστοιχεί στην ενέργεια εξαΰλωσης (annihilation peak) στα 511 keV. Σε κάθε περίπτωση όμως η ανίχνευση ασυνήθιστα ισχυρής φωτοκορυφής στα 511 keV θα μπορούσε να είναι μία ένδειξη της ύπαρξης του συγκεκριμένου ισοτόπου (Hult and Lutter, 2017). Η πλέον κατάλληλη φωτοκορυφή για την ανίχνευση του ¹⁰⁶Ru είναι στα 621.90 keV (ποσοστό εκπομπής 9.87%). Η φωτοκορυφή αυτή φαίνεται και στο σχήμα 6.20 που ακολουθεί, το οποίο προέρχεται από τις αναλύσεις που έγιναν στα πλαίσια της Δ.Δ.

Άλλες φωτοκορυφές που θα μπορούσαν να χρησιμοποιηθούν για την ανίχνευση του ¹⁰⁶Ru είναι από τα φωτόνια που εκπέμπει το ¹⁰⁶Rh στις ενέργειες των 1050.39 keV (ποσοστό εκπομπής 1.56%), 1128.01 keV (ποσοστό εκπομπής 0.404%) και 1562.25 keV (ποσοστό εκπομπής 0.163%). Λόγω του χαμηλού ποσοστού εκπομπής αυτών των φωτονίων, συνήθως αυτά χρησιμοποιούνται απλώς για επιβεβαίωση της ανίχνευσης του ¹⁰⁶Ru.

Το φθινόπωρο του 2017 και συγκεκριμένα την περίοδο από το τέλος Σεπτεμβρίου έως τα μέσα Οκτωβρίου ανιχνεύθηκε στον αέρα της Ευρώπης ¹⁰⁶Ru. Όπως είναι φυσικό κινητοποιήθηκε για μία ακόμα φορά το δικτυο Ro5. Στην Ελλάδα (όπως θα φανεί στη συνέχεια με λεπτομέρεια) ανιχνεύθηκε ¹⁰⁶Ru στις δειγματοληψίες που πργαματοποιήθηκαν την περίοδο από 27 Σεπτεμβρίου έως και 11 Οκτωβρίου.



Σχήμα 6.20 Φάσμα φίλτρου αέρα που περιέχει το ισότοπο ¹⁰⁶Ru. Διακρίνεται η κορυφή 621.9 keV που χρησιμοποιήθηκε προκειμένου την ανίχνευση και εν συνεχεία την ποσοτικοποίησή του.

Η πρώτη ανίχνευση του ¹⁰⁶Ru στην ατμόσφαιρα έγινε στην Ιταλία στις 3 Οκτωβρίου 2017. Παράλληλα, υπήρξε κινητοποίηση και του IRSN (Institut de Radioprotection et de Surete Nucleaire) που είναι επιφορτισμένος με την παρακολούθηση των επιπέδων της ραδιενέργειας στη Γαλλία, και ξεκίνησε η συστηματική παρακολούθηση του αερολύματος από τους δύο διαθέσιμους σταθμούς μέτρησης ποιότητας ατμοσφαιρικού αερολύματος. Για την περίοδο από τις 27 Σεπτεμβρίου ως τις 13 Οκτωβρίου ανιχνεύθηκε το ισότοπο ¹⁰⁶Ru στους σταθμούς Seyne-sur-Mer, Nice και Ajaccio με υψηλότερη τιμή τα 46 μBq/m³, η οποία ανιχνεύθηκε στο σταθμό στη περιοχή Nice για το χρονικό διάστημα μεταξύ 2 και 9 Οκτωβρίου (IRSN information report, 2017).

To ¹⁰⁶Ru ανιχνεύθηκε τελικά στις περισσότερες χώρες της Ευρώπης, με τα υψηλότερα επίπεδα, της τάξης των 100 mBq/m³, να παρατηρούνται τον Οκτώβριο (IRSN information report, 2017). Τα αποτελέσματα των μετρήσεων έδειξαν στη συνέχεια μία σταθερή πορεία μείωσης της ενεργότητας του ¹⁰⁶Ru, μέχρι της εξαφανίσεως του. Πάντως, σε κάθε περίπτωση οι συγκεντρώσεις που προσδιορίσθηκαν δεν αποτελούν κίνδυνο για την δημόσια υγεία και το περιβάλλον¹⁶.

Στον πίνακα 6.5 που ακολουθεί παρουσιάζονται τα αποτελέσματα των δειγματοληψιών και αναλύσεων δειγμάτων ατμοσφαιρικού αερολύματος που πραγματοποιήθηκαν στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. κατά την περίοδο όπου ανιχνεόνταν ¹⁰⁶Ru στην ατμόσφαιρα της Ευρώπης.

Ισότοπο	Ενέργεια [keV]	Ημερομηνία Έναρξης Δειγματοληψίας	Ημερομηνία Λήξης Δειγματοληψίας	Ενεργότητα [mBq/m³]	Αβεβαιότητα μέτρησης (%)
¹⁰⁶ Ru 621.93		27/09/2017	03/10/2017	2.64	24
	621 02	03/10/2017	04/10/2017	0.19	14
	021.95	04/10/2017	06/10/2017	0.11	13
		06/10/2017	11/10/2017	0.04	21

Πίνακας 6.5 Αποτελέσματα αναλύσεων δειγμάτων της παρούσας Δ.Δ. στα οποία ανιχνεύθηκε το ισότοπο ¹⁰⁶Ru.

Για τις ημερομηνίες που αντιστοιχούν στα υπόψη δείγματα, έγινε στο ΕΡΠ ανάλυση οπισθοτροχιών με χρήση του προγράμματος HYSPLIT, για τρια υψόμετρα 300, 700 και 1000 magl¹⁷, ακολουθώντας τη μεθοδολογία που περιγράφεται στο παράρτημα Ε. Τα αποτελέσματα των αναλύσεων αυτών παρατίθενται στα σχήματα 6.21 (α-γ).

Διδακτορική Διατριβή Αικατερίνης Δαλάκα

¹⁶ (IRSN information report, 2017;

<u>https://www.irsn.fr/EN/newsroom/News/Pages/20171109_Detection-of-Ruthenium-106-in-France-and-in-Europe-Results-of-IRSN-investigations.aspx</u> με ημερομηνία πρόσβασης 15/1/2019)¹⁷ Meters above ground level



Σχήμα 6.21 (α) Ανάλυση οπισθοτροχιών για το σημείο δειγματοληψίας του ΕΡΠ για υψόμετρο 300 magl.



Σχήμα 6.21 (β) Ανάλυση οπισθοτροχιών για το σημείο δειγματοληψίας του ΕΡΠ για υψόμετρο 700 magl.



Σχήμα 6.21 (γ) Ανάλυση οπισθοτροχιών για το σημείο δειγματοληψίας του ΕΡΠ για υψόμετρο 1000 magl.

Διδακτορική Διατριβή Αικατερίνης Δαλάκα

Όπως διαπιστώνεται, για τις περισσότερες ημέρες που αντιστοιχούν στα υπόψη δείγματα οι αέριες μάζες που καταλήγουν στο σημείο δειγματοληψίας, προέρχονται κυρίως από την ευρύτερη περιοχή της Ρωσίας.

Επιπλέον των παραπάνω μετρήσεων, κατά την περίοδο όπου ανιχνεύετο το ¹⁰⁶Ru πραγματοποιήθηκε και δειγματοληψία αεολύματος με χρήση όλων των σταδίων του αδρανειακού δειγματολήπτη και ακολούθησε ανάλυση της κατανομής μεγεθών ΑΣ, προκειμένου να προσδιορισθεί το μέγεθος των ΑΣ στα οποία υπήρξε αυξημένη συσσώρευση του ισοτόπου ¹⁰⁶Ru. Στο σχήμα 6.22 που ακολουθεί παρουσιάζεται η κατανομή μεγεθών του ¹⁰⁶Ru στα σωματίδια του ατμοσφαιρικού αερολύματος κατά το χρονικό διάστημα από 4 ως 6 Οκτωβρίου 2017.



Σχήμα 6.22 Κατανομή μεγεθών του ¹⁰⁶Ru στα σωματίδια του ατμοσφαιρικού αερολύματος κατά το χρονικό διάστημα από 4 ως 6 Οκτωβρίου 2017.

Η ανάλυση έγινε με χρήση του κώδικα αντιστροφής MICRON. Όπως παρατηρείται, το μέγιστο της κατανομής είναι στα λεπτόκοκκα σωματίδια, κάτι που δείχνει – καταρχήν – ότι τα σωματίδια τα οποία φέρουν το ισότοπο ¹⁰⁶Ru είναι «φρέσκα», και έχουν μικρό χρόνο παραμονής στην ατμόσφαιρα. Είναι γνωστό γενικά ότι οι καιρικές συνθήκες έχουν μεγάλη επίδραση στην κατανομή μεγεθών του ατμοσφαιρικού αερολύματος (Ioannidou, 2011). Συνήθως τα σωματίδια όσο βρίσκονται στην ατμόσφαιρα έχουν την τάση να προσροφούν ποσοστό υγρασίας με αποτέλεσμα την αύξηση στην αεροδυναμική τους διάμετρο, όπως έχει ήδη αναφερθεί. Η κατανομή μεγεθών για το ισότοπο ¹⁰⁶Ru εξετάσθηκε και συγκριτικά με την κατανομή μεγεθών του ⁷Be για το ίδιο χρονικό διάστημα. Τα αποτελέσματα φαίνονται στο σχήμα 6.23 που ακολουθεί. Το σχήμα αυτό δείχνει ότι οι κατανομές μεγεθών των σωματιδίων που φέρουν τα ισότοπα ⁷Be και ¹⁰⁶Ru ακολουθούν το ίδιο μοτίβο, έχοντας το μέγιστο της κατανομής τους στην λεπτόκοκκη περιοχή της κατανομής του ατμοσφαιρικού αερολύματος ίδια μετανομής του ατμοσφαιρικό διάστημα. Τα αποτελέσματα φαίνονται στο σχήμα 6.23 που ακολουθεί. Το σχήμα αυτό δείχνει ότι οι κατανομές μεγεθών των σωματιδίων που φέρουν τα ισότοπα ⁷Be και ¹⁰⁶Ru ακολουθούν το ίδιο μοτίβο, έχοντας το μέγιστο της κατανομής τους στην λεπτόκοκκη περιοχή της κατανομής του ατμοσφαιρικού αερολύματος. Το γεγονός αυτό οδηγεί στην υπόθεση ότι η εισβολή αερίων μαζών εμπλουτισμένων σε ¹⁰⁶Ru είναι αποτέλεσμα της μεταφοράς μαζών από μεγάλες αποστάσεις (long range transport).

Βασισμένοι σε μετεωρολογικά δεδομένα και στα αποτελέσματα των αναλύσεων από εργαστήρια-μέλη του Ro5 (μεταξύ των οποίων και το ΕΡΠ) πραγματοποιήθηκε από την ομάδα του Masson ανάλυση προκειμένου να προσδιορισθεί η πιθανή πηγή έκκλησης του ¹⁰⁶Ru, η ποσότητα και η περίοδος έκκλησης.



Σχήμα 6.23 Κατανομή μεγεθών του ¹⁰⁶Ru και του ⁷Be στα σωματίδια του ατμοσφαιρικού αερολύματος κατά το χρονικό διάστημα από 4 ως 6 Οκτωβρίου 2017.

Από την ανάλυση προέκυψε ο χάρτης που παρουσιάζεται στο σχήμα 6.23, ο οποίος συνοψίζει τα δεδομένα από όλα τα εργαστήρια, και επιβεβαιώνει ότι (α) η πιθανή ζώνη εκπομπής του ¹⁰⁶Ru είναι μεταξύ του ποταμού Βόλγα και των Ουραλίων, χωρίς να μπορεί να προσδιορισθεί με ακρίβεια το σημείο εκπομπής, (β) η πιθανή ποσότητα ¹⁰⁶Ru που απελευθερώθηκε στην ατμόσφαιρα ήταν μεταξύ 100 και 300 teraBq, (γ) η απελευθέρωση του ¹⁰⁶Ru συνέβη κάποια στιγμή την τελευταία εβδομάδα του Σεπτεμβρίου 2017.



Σχήμα 6.24 Χάρτης που δείχνει την πιθανή προέλευση του ¹⁰⁶Ru (IRSN information report, 2017; <u>https://www.irsn.fr/EN/newsroom/News/Pages/20171109_Detection-of-Ruthenium-106-in-France-and-in-Europe-Results-of-IRSN-investigations.aspx με ημερομηνία πρόσβασης 15/1/2019).</u>

Όσον αφορά τώρα το είδος του ατυχήματος το οποίο είχε ως αποτέλεσμα την εκπομπή του ισοτόπου ¹⁰⁶Ru στην ατμόσφαιρα, θα πρέπει να γίνει μία επισκόπηση της προέλευσης και των πιθανών χρήσεων που μπορεί να έχει το ισότοπο αυτό. Καταρχάς, δεδομένου ότι ανιχνεύθηκε μόνο το ισότοπο ¹⁰⁶Ru αποκλείεται το ενδεχόμενο ενός ατυχήματος σε έναν

Διδακτορική Διατριβή Αικατερίνης Δαλάκα

Πυρηνικό Αντιδραστήρα Ισχύος, καθώς σε μία τέτοια περίπτωση θα έπρεπε να ανιχνεύονταν και άλλα ισότοπα προϊόντα σχάσεως (IRSN information report, 2017). Άλλα πιθανά σενάρια θα μπορούσαν να είναι είτε εγκαταστάσεις παρασκευής πυρηνικού καυσίμου, είτε ατύχημα κατά τη δημιουργία πηγής ¹⁰⁶Ru, ή ακόμα και η επανείσοδος στην ατμόσφαιρα δορυφόρου εξοπλισμένου με θερμοηλεκτρική γεννήτρια Ρουθηνίου, μία υπόθεση την οποία εξέτασε η ΙΑΕΑ αλλά τελικά την απέρριψε.

Στο Παράρτημα Ζ παρατίθεται για λόγους πληρότητας, πίνακας συγκεντρώσεων του ισοτόπου ¹⁰⁶Ru από σταθμούς της Γαλλίας (IRSN information report, 2017). Πάντως, τα αποτελέσματα των αναλύσεων των συγκεντρώσεων των ισοτόπων σε χώρες της Ευρώπης, και ειδικά στην Γαλλία έδειξαν ότι τα επίπεδα της συγκέντρωσης του ισοτόπου ¹⁰⁶Ru στην ατμόσφαιρα ήταν πολύ χαμηλά για να έχουν επιπτώσεις στην ανθρώπινη υγεία και στο περιβάλλον (IRSN information report, 2017).

6.5 Μελέτη της μεταφοράς αερίων μαζών με συνδυασμένη χρήση περισσοτέρων ραδιενεργών ιχνηθετών

Έως τώρα έχει παρουσιασθεί η χρήση ραδιενεργών ιχνηθετών που εκπέμπουν ακτινοβολίαγ¹⁸ για τη μελέτη περιστατικών που συνδέονται με έκλυση ραδιενέργειας στο περιβάλλον, μεταφορά αερίων μαζών εξαιτίας φυσικών διεργασιών (όπως είναι η μεταφορά αφρικανικής σκόνης) αλλά και λόγω φαινομένων καύσης βιομάζας. Στην παράγραφο αυτή παρατίθεται η μελέτη που έγινε στα πλαίσια της Δ.Δ. με συνδυασμένη χρήση περισσότέρων του ενός ραδιενεργών ιχνηθετών. Ένα ενδιαφέρον τέτοιο πεδίο μελέτης είναι η μεταφορά σκόνης από την έρημο της Σαχάρας (Sahara dust event).

Η έρημος της Σαχάρας, είναι η μεγαλύτερη πηγή σωματιδίων σκόνης τα οποία μεταφέρονται μέσω αερίων μαζών κυρίως στις περιοχές γύρω από τη Μεσόγειο. Η Ελλάδα είναι μία από τις χώρες που επηρεάζεται από αυτή τη μεταφορά σκόνης. Ενδεικτικά αναφέρεται ότι η ποσότητα σκόνης που μεταφέρεται κατά τα επεισόδια μεταφοράς αφρικανικής σκόνης στις ευρωπαϊκές χώρες υπολογίζονται μεταξύ 80 και 120·10⁶ τόνους τον χρόνο (D'Almeida 1986). Τα γεγονότα που σχετίζονται με τη μεταφορά αφρικανικής σκόνης δημιουργούν ένα πεδίο μελέτης που σχετίζεται με τις περιβαλλοντικές συνέπειες και με τους κινδύνους που ενδεχομένως δημιουργούν για τη δημόσια υγεία. Κατά τη διάρκεια αυτών των επεισοδίων μπορούν να ανιχνευτούν στον αέρα ακόμα και χαμηλές συγκεντρώσεις τεχνητών ραδιοϊσοτόπων, όπως είναι το 137Cs, αλλά και ισότοπα του Pu, εξαιτίας κυρίως παλαιότερων πυρηνικών δοκιμών. Παρόλο που οι συγκεντρώσεις τους είναι εξαιρετικά χαμηλές και δεν ενέχουν κανένα ραδιολογικό κίνδυνο, η μελέτη τους μπορεί να δώσει σημαντικές πληροφορίες σχετικά με τη μεταφορά αερίων μαζών, καθώς και για τα φαινόμενα της ερημοποίησης και την επαναιώρησης της αφρικανικής σκόνης (Hirose et al., 2003). Τα φαινόμενα μεταφοράς αφρικανικής σκόνης δεν είναι ένα σύγχρονο φαινόμενο. Ο λόγος για τον οποίο μελετώνται σήμερα περισσότερο από ότι στο παρελθόν έχει να κάνει με το γεγονός σήμερα η ατμόσφαιρα είναι σημαντικά πιό καθαρή από το παρελθόν, ως αποτέλεσμα των κανονισμών που έχουν τεθεί σε ισχύ τις τελευταίες δεκαετίες σχετικά με την ποιότητα του ατμοσφαιρικού αέρα, κατά συνέπεια το ενδιαφέρον πλέον εστιάζεται περισσότερο σε άλλους μηχανισμούς και μακροχρόνιες διεργασίες (όπως είναι η διάβρωση του εδάφους λόγω του αέρα, οι εκπομπές σκόνης λόγω διάφορων αγροτικών δραστηριοτήτων) (Masson et al., 2010). Εξάλλου, η καύση βιομάζας που προκαλείται από ανθρωπογενείς δραστηριότητες όπως οι γεωργικές, αλλά και οι πυρκαγιές

¹⁸ Επισημαίνεται ότι η ακτινοβολία-γ εκπέμπεται μετά από από διάσπαση –α ή –β.

είναι ένα πολύ συχνό φαινόμενο σήμερα το οποίο προκαλεί παγκόσμιο περιβαλλοντικό ενδιαφέρον για πολλούς λόγους. Η καύση εκτάσεων στα πλαίσια γεωργικών δραστηριοτήτων δεν περιορίζεται μόνο στις αναπτυσσόμενες χώρες, και παρόλο που είναι απαγορευμένη σε ορισμένες χώρες, επηρεάζει την ποιότητα του αέρα αλλά και τα ποσοστά των εθνικών εκπομπών ενός κράτους.

Στην παράγραφο αυτή θα μελετηθούν τα φαινόμενα μεταφοράς αφρικανικής σκόνης και καύσης βιομάζας με χρήση ραδιενεργών ιχνηθετών στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα. Επίσης θα μελετηθεί η επίδραση του μεταφερόμενου αερολύματος στα επίπεδα ραδιενέργειας στην ατμόσφαιρα στην περιοχή της Αθήνας και θα ταυτοποιηθούν οι ραδιενεργοί ιχνηθέτες που σχετίζονται με γεγονότα μεταφοράς αφρικανικής σκόνης και αερολύματα που προέρχονται από καύση βιομάζας. Για το σκοπό αυτό συνδυάζονται α-φασματοσκοπικές¹⁹ και γ-φασματοσκοπικές αναλύσεις προκειμένου να προκύψουν πληροφορίες για την φύση του αερολύματος και τον εμπλουτισμό του σε ραδιοϊσότοπα.

Τα ισότοπα ²³⁸U και ²³²Th είναι δύο φυσικά ραδιενεργά ισότοπα τα οποία υπάρχουν στο έδαφος. Και τα δύο ισότοπα είναι πατρικοί πυρήνες των ομώνυμων σειρών και στις αλυσίδες διάσπασής τους περιλαμβάνονται – μεταξύ άλλων – τα αέρια ισότοπα του ραδονίου, ²²²Rn (ραδόνιο) και ²²⁰Rn (θορόνιο) αντίστοιχα. Αυτά τα δύο ισότοπα του ραδονίου, λόγω της φύσης τους, μπορούν να απελευθερωθούν στην ατμόσφαιρα από το σημείο παραγωγής τους. Τα στερεά θυγατρικά τους – επίσης ραδιενεργά – προσκολλώνται στα σωματίδια του ατμοσφαιρικού αερολύματος και μεταφέρονται μέσω της κίνησης των αερίων μαζών ή εναποτίθενται στο έδαφος μέσω των αδρανειακών δυνάμεων.

Προς το τέλος της σειράς τους ²³⁸U βρίσκονται διαδοχικά τα ισότοπα ²¹⁰Pb, ²¹⁰Po και το σταθερό ισότοπο 206Pb. Το ισότοπο 210Po εκπέμπει μόνο α-ακτινοβολία με χρόνο ημιζωής τις 138 ημέρες και βρίσκεται παντού στο περιβάλλον σε πολύ χαμηλές συγκεντρώσεις (π.χ. στον αέρα, στο νερό, στον καπνό του τσιγάρου, στα υλικά NORM κλπ). Το β-ραδιενεργό ισότοπο ²¹⁰Pb χρησιμοποιείται ως ιχνηθέτης ατμοσφαιρικών διεργασιών που έχουν να κάνουν με την εναπόθεση σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος, τον χρόνο παραμονής του αερολύματος πάνω από μία συγκεκριμένη περιοχή, τη σταθερότητα της ατμόσφαιρας και την κατακόρυφη κίνηση των αερολυμάτων (Baskaran, 2011). Ο ²¹⁰Pb είναι το πρώτο μακρόβιο ισότοπο, θυγατρικό του 222 Rn με χρόνο ημιζωής 22.6 έτη. Παράγεται στην ατμόσφαιρα κοντά στο επίπεδο του εδάφους, καθώς το 222Rn με χρόνο ημιζωής 3.82 ημέρες απελευθερώνεται από το έδαφος στην ατμόσφαιρα – κυρίως στην ηπειρωτική χώρα. Αν και το 222 Rn προέρχεται κυρίως από το έδαφος, αέριες μάζες εμπλουτισμένες σε αυτό, μπορούν από το οριακό στρώμα να προσεγγίσουν την ανώτερη τροπόσφαιρα, ή ακόμα και την στρατόσφαιρα (Kritz et al., 1993). Με δεδομένο ότι το 222 Rn είναι ένα ευγενές αέριο και δεν μπορεί να απομακρυνθεί από την ατμόσφαιρα με φυσικές ή χημικές διεργασίες, και καθώς ο χρόνος ημιζωής του είναι πολύ μικρότερος από τον χρόνο που απαιτείται για την ανάμειξη της ατμόσφαιρας, το προφίλ των συγκεντρώσεών του παρουσιάζει μία τάση μείωσης όσο αυξάνεται το υψόμετρο και η απόσταση από το έδαφος. Η κύρια πηγή ²¹⁰Pb στην τροπόσφαιρα είναι μία σχετικά ήπια ανύψωση του ²²²Rn και των θυγατρικών του από το επίπεδο του εδάφους, που μπορεί να αποδοθεί στις κατακόρυφες κινήσεις των αερίων μαζών και οι συγκεντρώσεις τους αναμένεται να είναι υψηλότερες στο επίπεδο του εδάφους. Το ισότοπο ²¹⁰Pb μπορεί να παρέχει πληροφορίες σχετικά με τις ηπειρωτικές αέριες μάζες στην κατώτερη τροπόσφαιρα (Rangarajan et al., 1986). Παράγοντες που έχουν να κάνουν με εναλλαγές της ατμοσφαιρικής πίεσης,

¹⁹ Οι αναλύσεια αυτές είναι απαραίτητες για τον προσδιοσριμό α-ραδιενεργών ισοτόπων που δεν εκπέμπουν ακτίνες-γ ώστε να ανιχνευθούν με τεχνικές γ-φασματοσκοπίας

θερμοκρασιακές αναστροφές, ημερήσιες ή εποχικές διακυμάνσεις στις μετεωρολογικές συνθήκες, συσσώρευση κατακρημνίσεων, υγρασία στο έδαφος, κάλυψη του εδάφους από χιόνι και πάγο, είναι γνωστό ότι επηρεάζουν την έκκληση του ²²²Rn από την επιφάνεια του εδάφους και κατά συνέπεια και τις συγκεντρώσεις του ²¹⁰Pb στον αέρα στο επίπεδο του εδάφους (Turekian et al., 1977; Feichter et al., 1991).

Εξάλλου, ο ²¹⁰Pb μπορεί να χρησιμοποιηθεί για την αξιολόγηση μοντέλων που περιγράφουν χημικές διεργασίες στην ατμόσφαιρα και να πιστοποιήσει την ορθή λειτουργία τους σχετικά με την κίνηση των ΑΣ, όχι μόνο σε παγκόσμια αλλά και σε τοπική κλίμακα (Baskaran, 2011). Το ισότοπο ²¹⁰Pb συσχετίζεται με ΑΣ με μέγεθος τέτοιο ώστε να μπορούν να απομακρυνθούν από την ατμόσφαιρα μέσω της απόπλυσης (από τις κατακρημνίσεις), ενώ υψηλότερες συγκεντρώσεις του ισοτόπου ²¹⁰Pb παρατηρούνται κατά τους μήνες του φθινοπώρου και χαμηλότερες κατά την άνοιξη.

Όπως έχει ήδη αναφερθεί σε προηγούμενο κεφάλαιο, το ισότοπο ⁴⁰Κ είναι ένα φυσικό ισότοπο του καλίου με χρόνο ημιζωής τα 1.248·10⁹ yr που συσσωρεύεται στους φυτικούς και στους ζωικούς ιστούς. Το ⁴⁰Κ υπάρχει ακόμα διαλυμένο στα νερά των ωκεανών (Draganic et al., 1991) στα μεταλλικά νερά, και στα διάφορα άλατα. Επίσης, το κάλιο είναι ένα συνηθισμένο συστατικό των λιπασμάτων, οπότε τα επίπεδα του ⁴⁰Κ στο έδαφος μπορεί να είναι έντονα επηρεασμένα από την χρήση λιπασμάτων στις καλλιέργειες. Τα επίπεδα του ⁴⁰Κ στο έδαφος μπορεί να είναι έντονα επηρεασμένα από την χρήση λιπασμάτων στις καλλιέργειες. Τα επίπεδα του ⁴⁰Κ στο έδαφος μπορεί να είναι έντονα επηρεασμένα από την χρήση λιπασμάτων στις καλλιέργειες. Τα επίπεδα του ⁴⁰Κ στα δείγματα φίλτρεων που αναλύθηκαν στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. είναι εν γένει πολύ χαμηλά εν συγκρίσει με την βιβλιογραφία (Korontzi et al., 2006), εμφανίζουν όμως μέγιστα και ελάχιστα. Αυτά τα μέγιστα (>0.1 mBq/m³) οφείλονται στην πραγματικότητα στην προέλευση του ⁴⁰Κ που έχει να κάνει με την καύση βιομάζας σε τοπική ή ευρύτερη κλίμακα (Dalaka et al., 2019) και στην εδαφική σκόνη. Η μέχρι τώρα ανάλυση έχει δείξει το ότι σχετικά υψηλές συγκεντρώσεις του ισοτόπου ⁴⁰Κ εμφανίζονται και μετά από επιβεβαιωμένα επεισόδια αφρικανικής σκόνης. Τέτοιου είδους δεδομένα έχουν παρουσιασθεί σε προηγούμενη παράγραφο.

Στα πλαίσια της Δ.Δ., επιλεγμένα δείγματα από αυτά τα οποία συστηματικά συλλέγονται στο ΕΡΠ, αναλύθηκαν και με τεχνικές α-φασματοσκοπίας. Τα δείγματα επιλέχθηκαν με γνώμονα τις ημερομηνίες όπου παρατηρούντο έντονα φαινόμενα καύσης βιομάζας (η επιλογή έγινε με βάση δορυφορικούς χάρτες που απεικονίζουν την ύπαρξη εστιών φωτιάς), μεταφορά αφρικανικής σκόνης (η ανάλυση έγινε με χρήση οπισθοτροχιών και το μοντέλο HYSPLIT), αλλά και ημέρες που δεν σημειώθηκε κανενός είδους τέτοιο συμβάν, για λόγους σύγκρισης. Εξυπακούεται ότι για τα δείγματα αυτά, τα οποία συλλέχθηκαν ακολουθώντας τα γνωστά πρωτόκολλα δειγματοληψίας, έγινε και ανάλυση και με τεχνικές γφασματοσκοπίας.

Η α-φασματοσκοπική ανάλυση των δειγμάτων έγινε στα εργαστήρια της ΕΕΑΕ (Ελληνική Επιτροπή Ατομικής Ενέργειας) στα πλαίσια διεργαστηριακής συνεργασίας και αφορούσε στον προσδιορισμό των ισοτόπων ²³⁸U, ²³⁴U, ²¹⁰Po. Οι μετρήσεις των συγκεντρώσεων των παραπάνω ισοτόπων έγινε μετά από ραδιοχημικό διαχωρισμό, μέσω ενός πλήρως αυτοματοποιημένου συστήματος α-φασματοσκοπίας (AAnalyst Canberra) το οποίο αποτελείται από 12 ανιχνευτές πυριτίου (Passivated Implanted Planar Silicon Detectors – PIPS) με ενεργή περιοχή 600 mm². Η απόδοση του ανιχνευτή είναι 24%.

Για τον ποσοτικό προσδιορισμό της συγκέντρωσης των ισοτόπων που αναλύθηκαν χρησιμοποιήθηκαν ως ιχνηθέτες ²⁰⁹Ρο για την ανάλυση των ισοτόπων ²¹⁰Ρο και ²³²U για την ανάλυση των ισοτόπων ²³⁸U και ²³⁴U. Το χημικό ποσοστό της απόδοσης (chemical yield) για τα ισότοπα του ουρανίου ποικίλει μεταξύ 45% και 90% και για το ²¹⁰Ρο είναι μεταξύ 46% και

79% περίπου. Για την ανάλυση του ουρανίου, χρησιμοποιήθηκε στα φίλτρα γνωστή ποσότητα ιχνηθέτη ²³²U και τα φίλτρα στη συνέχεια απανθρακώθηκαν στους 500°C για 4 ώρες. Στη συνέχεια, η τέφρα διαλύθηκε σε μικρή ποσότητα 8M HCl και μεταφέρθηκε σε στήλη ανταλλαγής ανιόντων με ρητίνη Bio-Rad AG1-X4. Τέλος, το προς μέτρηση δείγμα δημιουργήθηκε με ηλεκτραπόθεση (Eaton et al., 1995). Για την ανάλυση και τον προσδιορισμό των επιπέδων του ²¹⁰Po σε κάθε φίλτρο χρησιμοποιήθηκε γνωστή ποσότητα ²⁰⁹Po ως ιχνηθέτης, και στη συνέχεια το φίλτρο αυτό ξηράνθηκε στον αέρα. Μετά από κατάλληλη χημική προεργασία το ²¹⁰Po αποτέθηκε «αυθόρμητα» σε πλάκα νικελίου (Blanchard et al., 1966). Η ενεργότητα του ²¹⁰Pb στα δείγματα φίλτρων μετρήθηκε από τα διαλύματα που δημιουργήθηκαν για την εξαγωγή του ²¹⁰Po. Στη συνέχεια, τα δείγματα αυτά αποθηκεύτηκαν για χρονικό διάστημα 5-6 μηνών, προκειμένου να παραχθεί ²¹⁰Po από την διάσπαση των πυρήνων του ²¹⁰Pb. Ακολούθως, οι πυρήνες του ²¹⁰Po αποτέθηκαν σε πλάκα νικελίου και αναλύθηκαν με τεχνικές α-φασματοσκοπίας. Οι συγκεντρώσεις του ²¹⁰Pb υπολογίσθηκαν μέσω της μέτρησης της ενεργότητας του ²¹⁰Po (Blanchard et al., 1966).

6.5.1 Αποτελέσματα μετρήσεων

6.5.1.1 Ενεργότητα των ²¹⁰Pb και U κατά την διάρκεια επεισοδίων μεταφοράς αφρικανικής σκόνης

Στο σχήμα 6.25 παρουσιάζεται ένα α-φάσμα με τα ισότοπα του ουρανίου (²³⁸U και ²³⁴U) από δείγμα που προέκυψε μετά από επιβεβαιωμένο συμβάν μεταφοράς αφρικανικής σκόνης.



Σχήμα 6.25 Τυπικό φάσμα α-φασματοσκοπίας δείγματος που προέκυψε μετά από επεισόδιο μεταφοράς αφρικανικής σκόνης

Στον Πίνακα 6.6 που ακολουθεί παρατίθενται τα αποτελέσματα των αναλύσεων μετά από επιβεβαιωμένα επεισόδια μεταφοράς αφρικανικής σκόνης. Οι τιμές συνοδεύονται από τη συνολική αβεβαιότητα σε επίπεδο 2σ. Από τα αποτελέσματα του πίνακα διαπιστώνεται ότι οι συγκεντρώσεις των ισοτόπων αυτών είναι αρκετά χαμηλές και σε αρκετές περιπτώσεις κάτω από το MDA (Minimum Detectable Activity – 0.05 μBq/m³ για το ²³⁸U και 0.09 μBq/m³για το ²³⁴U). Επίσης, η ενεργότητα του ²³⁴U παρουσιάζεται πάντα αυξημένη από την αντίστοιχη του ²³⁸U, αν και η διαφορά αυτή, λόγω της υψηλής αβεβαιότητας των μετρήσεων δεν είναι στατιστικά σημαντική.

Ημερομηνία	Μέγεθος Σωματιδίων	238 U [μ Bq/m ³]	234 U [μ Bq/m ³]	²³⁴ U/ ²³⁸ U	²¹⁰ Pb [µBq/m ³]
22.5.2014 - 29.5.2014	2.5 <dp<10< td=""><td>< MDA</td><td>< MDA</td><td>-</td><td></td></dp<10<>	< MDA	< MDA	-	
	d _p <2.5	0.31 ± 0.12	0.37 ± 0.13	1.19 ± 0.62	
26.6.2014 - 3.7.2014	2.5 <dp<10< td=""><td>0.16 ± 0.15</td><td>0.22 ± 0.19</td><td>1.40 ± 1.78</td><td>18 ± 1</td></dp<10<>	0.16 ± 0.15	0.22 ± 0.19	1.40 ± 1.78	18 ± 1
	d _p <2.5	0.08 ± 0.06	0.13 ± 0.08	1.60 ± 1.55	290 ± 23
25.11.2014 - 2.12.2014	2.5 <dp<10< td=""><td>< MDA</td><td>< MDA</td><td>-</td><td></td></dp<10<>	< MDA	< MDA	-	
	d _p <2.5	0.08 ± 0.03	0.15 ± 0.05	1.87 ± 0.94	
27.1.2015 - 3.2.2015	2.5 <d<sub>p<10</d<sub>	0.60 ± 0.28	0.81 ± 0.38	1.35 ± 0.89	10 ± 2
	d _p <2.5	1.07 ± 0.29	1.19 ± 0.30	1.10 ± 0.41	69 ± 8
17.2.2015 - 24.2.2015	2.5 <dp<10< td=""><td>0.17 ± 0.08</td><td>0.28 ± 0.11</td><td>1.64 ± 1.01</td><td>27 ± 2</td></dp<10<>	0.17 ± 0.08	0.28 ± 0.11	1.64 ± 1.01	27 ± 2
	d _p <2.5	0.08 ± 0.04	0.10 ± 0.05	1.25 ± 0.88	132 ± 9
6.4.2016 - 13.4.2016	2.5 <dp<10< td=""><td>< MDA</td><td>< MDA</td><td>-</td><td></td></dp<10<>	< MDA	< MDA	-	
	d _p <2.5	0.19 ± 0.06	0.20 ± 0.07	1.05 ± 0.49	
18.5.2016 - 25.5.2016	2.5 <dp<10< td=""><td>0.14 ± 0.04</td><td>0.20 ± 0.05</td><td>1.42 ± 0.54</td><td></td></dp<10<>	0.14 ± 0.04	0.20 ± 0.05	1.42 ± 0.54	
_	d _p <2.5	0.14 ± 0.05	0.18 ± 0.06	1.28 ± 0.63	

Πίνακας 6.6 Αποτελέσματα αναλύσεων ισοτόπων ²¹⁰Pb και U κατά τη διάρκεια επιβεβαιωμένων επεισοδίων μεταφοράς αφρικανικής σκόνης

Η διαφορά στην ενεργότητα μεταξύ ²³⁸U και ²³⁴U είναι κάτι που απαντάται συχνά στη βιβλιογραφία και οφείλεται στην απομάκρυνση του ²³⁴U λόγω ανάκρουσης κατά την αδιάσπαση. Όπως έχουν δείξει στις μελέτες τους οι De Paolo et al. (2006) και οι Maher et al. (2004, 2006) οι απώλειες του ²³⁴U λόγω ανάκρουσης (recoil loss) πρέπει να είναι μεγαλύτερες σε ορυκτά με μεγαλύτερους λόγους επιφάνειας προς όγκο (δηλαδή μικρούς κόκκους). Πάντως αυτό που φαίνεται να είναι μία καλή καταρχήν παραδοχή είναι ότι ο λόγος των ²³⁴U/²³⁸U δεν θα πρέπει να διαφέρει από τη μονάδα σε σκόνη που προέρχεται από τη διάβρωση βράχων. Όσον αφορά στο λόγο ²³⁴U/²³⁸U, οι τιμές που προσδιορίσθηκαν στα πλαίσια τη Δ.Δ είναι εν γένει υψηλότερες – αν και δεν διαφέρουν στατιστικά σημαντικά – από τις τιμές της βιβλιογραφίας, όπου εκτιμήθηκε τιμή του λόγου 1.09 για τη Γαλλία (Masson et al., 2010) και τιμή 0.9-1.15 στο Μονακό (Pham et al., 2017).

Οι σχετικά υψηλότερες τιμές του λόγου ²³⁴U/²³⁸U που παρατηρήθηκαν στα πλαίσια της Δ.Δ μπορεί να οφείλονται και στις ειδικές κλιματολογικές συνθήκες που επικρατούν στην ευρύτερη περιοχή της Σαχάρας και στον συνδυασμό της έντονης ηλιοφάνειας με την υγρασία. Αυτοί οι παράγοντες έχουν επιδράσει στα σωματίδια σκόνης στην έρημο της Σαχάρας εδώ και περίπου 6000 χρόνια πριν (Schuster et al., 2006). Αυτός άλλωστε μπορεί να είναι και ο λόγος που τα σωματίδια της αφρικανικής σκόνης δεν έχουν σε ισορροπία τα ²³⁴U και ²³⁸U και οδηγούν σε λόγους μεγαλύτερους της μονάδας.

Μία άλλη παρατήρηση που μπορεί να γίνει στα αποτελέσματα του πίνακα 6.6 αφορά στον ²¹⁰Pb, όπου φαίνεται ότι η ενεργότητα στα λεπτόκοκκα ΑΣ (<2.5 μm) να είναι πολύ υψηλότερη από αυτήν στο πλέον χονδρόκοκκα, κάτι που θα πρέπει να αποδίδεται στο μεγαλύτερο λόγο επιφάνειας/μάζας που αυτά παρουσιάζουν. Πάντως, επισημαίνεται ότι τα πειραματικά σημεία είναι πολύ λίγα για να προκύψει τεκμηριωμένο συμπέρασμα. Η αυξημένη τιμή του ²¹⁰Pb στο κλάσμα αυτό του αερολύματος οφείλεται κατά κύριο λόγο στη φύση του ισοτόπου αυτού, καθώς αμέσως μετά την παραγωγή του προσκολλάται σε

σωματίδια του ατμοσφαιρικού αερολύματος τα οποία διασπείρονται στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα.

Στο σχήμα 6.26 που ακολουθεί παρουσιάζονται οι αναλύσεις οπισθοτροχιών για τις μέρες που αντιστοιχούν στα δείγματα στα οποία ανιχνεύθηκαν υψηλότερες τιμές του λόγου ²³⁴U/²³⁸U.



Σχήμα 6.26 Ανάλυση οπισθοτροχιών κατά τη διάρκεια φαινομένων μεταφοράς αφρικανικής σκόνης (πρόκειται για ημερομηνίες που παρατηρούνται αυξημένες συγκεντρώσεις U)

Όπως φαίνεται, κατά τις περιόδους όπου παρατηρήθηκαν στα δείγματα υψηλότερες συγκεντρώσεις των ισοτόπων του ουρανίου η προέλευση των μαζών είναι από την ευρύτερη περιοχή της Σαχάρας. Κατά τις ημέρες αυτές οι μέσες συγκεντρώσεις για ΑΣ μεταξύ 10 και 2.5 μm είναι για το ²³⁸U 0.27 μBq/m³, για το ²³⁴U είναι 0.38 μBq/m³ και για το ²¹⁰Pb 18.5 μBq/m³. Για ΑΣ με μεγέθη μικρότερα από 2.5 μm ισχύει για το ²³⁸U είναι 0.28 μBq/m³ για το ²³⁴U είναι 0.33 μBq/m³ και για τον ²¹⁰Pb είναι 163.7 μBq/m³.

Κατά τη μεταφορά των αερίων μαζών, αυτές διέρχονται πάνω από διαφορετικές περιοχές και υψόμετρα. Οι διαφορετικές συνθήκες που επικρατούν σε αυτές τις περιοχές συνεισφέρουν στα χαρακτηριστικά των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος (όπως για παράδειγμα η σχετική υγρασία η οποία μπορεί να επηρεάσει και το σχήμα αλλά και το μέγεθος των σωματιδίων). Μπορεί λοιπόν να γίνει η εύλογη υπόθεση ότι οι αέριες μάζες μπορούν να αποκτήσουν χαρακτηριστικά από τις περιοχές όπου διέρχονται εάν μείνουν σε αυτές για μεγάλη χρονική περίοδο. Επίσης, οι αέριες μάζες μπορούν να διέλθουν και από περιοχές όπου απελευθερώνονται στην ατμόσφαιρα συγκεκριμένα ισοτόπα, με αποτέλεσμα να εμπλουτίζονται με αυτά, αυξάνοντας τις συγκεντρώσεις τους στα ΑΣ.

Είναι πολύ ενδιαφέρον να εξετασθεί και η επίδραση που έχει στα ΑΣ ο χρόνος παραμονής του αερολύματος πάνω από την ηπειρωτική χώρα. Αυτό μπορεί να μέσω του προσδιορισμού της ενεργότητας των ισοτόπων ⁷Be και ²¹⁰Pb. Όπως έχει ήδη αναφερθεί, το ισότοπο ⁷Be λόγω της κοσμογενούς προέλευσής του αναμένεται να έχει υψηλότερες συγκεντρώσεις σε μεγαλύτερα υψόμετρα, δεδομένου ότι ο ρυθμός παραγωγής του είναι μεγαλύτερος στα ανώτερα στρώματα της τροπόσφαιρας. Το αντίθετο συμβαίνει στην περίπτωση του ²¹⁰Pb, το οποίο παράγεται κυρίως στα κατώτερα στρώματα της τροπόσφαιρας, με συνέπεια η ενεργότητα του να μειώνονται με το υψόμετρο. Βάσει των

ανωτέρω, αέριες μάζες οι οποίες διερχονται κυρίως πάνω από ηπειρωτικές εκτάσεις θα είναι περισσότερο εμπλουτισμένες με ²¹⁰Pb. Από την άλλη μεριά, οι συγκεντρώσεις του ⁷Be στον αέρα δεν αναμένεται να ποικίλουν με την προέλευση των αερίων μαζών, αν δηλαδή πρόκειται κατά κύριο λόγο για μάζες που προέρχονται από την θάλασσα ή την ξηρά) (Likuku, 2006), αλλά από το ύψος από το οποίο προέρχονται οι αέριες μάζες.

Τα μοναδικά χαρακτηριστικά που έχουν τα ισότοπα ⁷Be και ²¹⁰Pb, λόγω της τόσο διαφορετικής προέλευσής τους υποδεικνύει ότι μπορούν να παρέχουν μία προσέγγιση ως προς τις εναλλαγές στα διάφορα στρώματα της στρατόσφαιρας και της τροπόσφαιρας μελετώντας τα επίπεδα των συγκεντρώσεών τους στον ατμοσφαιρικό αέρα (Rehfeld et al., 1995; Dibb et al., 2003), λειτουργώντας ως ιδανικά εργαλεία για την απεικόνιση διεργασιών μεταφοράς σε ολόκληρη την ατμόσφαιρα (Brost et al., 1991; Feichter et al., 1991; Dibb et al., 1992; Koch et al., 1996). Όπως φαίνεται και στο σχήμα 6.27 που ακολουθεί φαίνεται – παρά το πολύ μικρό πλήθος σημείων – να υπάρχει μία θετική συσχέτιση μεταξύ των συγκεντρώσεων ²¹⁰Pb και ⁷Be κατά τη διάρκεια των επεισοδίων μεταφοράς αφρικανικής σκόνης. Αυτό αποτελεί ένδειξη ότι αέριες μάζες κατά τη διάρκεια των επεισοδίων αυτών ενδεχομένως να προέρχονται από μεγαλύτερα υψόμετρα.



Σχήμα 6.27 Συγκεντρώσεις ισοτόπων ⁷Be και ²¹⁰Pb κατά τη διάρκεια επεισοδίων μεταφοράς αφρικανικής σκόνης.

6.5.1.2 Ενεργότητα των ²¹⁰Pb και U σε δείγματα που δεν έχουν επηρεασθεί από φαινόμενα μεταφοράς αφρικανικής σκόνης

Στον πίνακα 6.7 που ακολουθεί παρουσιάζονται τα αποτελέσματα των α-φασματοσκοπικών αναλύσεων δειγμάτων τα οποία συλλέχθηκαν σε ημέρες που δεν χαρακτηρίζονται από γεγονότα μεταφοράς αφρικανικής σκόνης.

Όπως φαίνεται στον παραπάνω πίνακα, οι συγκεντρώσεις των ισοτόπων ²³⁸U και ²³⁴U είναι σε αυτήν την περίπτωση κατά κύριο λόγο κάτω από τα όρια ανίχνευσης (0.05 μBq/m³ για το ²³⁸U και 0.09 μBq/m³ για το ²³⁴U). Όσον αφορά την ενεργότητα του ²¹⁰Pb φαίνεται ότι υπάρχει μία έντονη τάση οι τιμές της ενεργότητας να είναι πολύ υψηλότερες στο κλάσμα 2.5<d_p<10 από ότι στο κλάσμα d_p<2.5. Αντίστοιχο φαινόμενο παρατηρείται και στις μετρήσεις του πίνακα 6.6, όπου όμως η τάση αυτή είναι πολύ ασθενέστερη.

Ημερομηνία	Μέγεθος Σωματιδίων	²³⁸ U [µBq/m ³]	234 U [µBq/m ³]	²³⁴ U/ ²³⁸ U	²¹⁰ Pb [µBq/m ³]
14.8.2014 - 21.8.2014	2.5 <dp<10< td=""><td>< MDA</td><td>< MDA</td><td>-</td><td>9.46 ± 1.20</td></dp<10<>	< MDA	< MDA	-	9.46 ± 1.20
	d _p <2.5	< MDA	< MDA	-	234 ± 18
30.9.2014 - 7.10.2014	2.5 <d<sub>p<10 d_p<2.5</d<sub>	< MDA < MDA	< MDA < MDA	-	7.30 ± 0.80 206 ± 14
10.2.2015 - 7.10.2015	2.5 <dp<10 dp<2.5</dp<10 	< MDA < MDA	< MDA < MDA	-	$\begin{array}{c} 8.18 \pm 0.90 \\ 285 \pm 19 \end{array}$
24.2.2015 - 3.3.2015	2.5 <d<sub>p<10 d_p<2.5</d<sub>	$\begin{array}{c} 0.37 \ \pm 0.12 \\ 0.07 \pm 0.04 \end{array}$	0.44 ± 0.11 0.12 ± 0.06	1.17 1.7	13 ± 1 101 ± 7

Πίνακας 6.7 Συγκεντρώσεις ισοτόπων δειγμάτων που δεν υπόκεινται σε περιστατικά μεταφοράς αφρικανικής σκόνης

Αντίστοιχες μελέτες έχουν διεξαχθεί αν τον κόσμο και σε λεγόμενες «καθαρές περιοχές», δηλαδή περιοχές χαμηλού υποβάθρου ως προς τα εν λόγω ισότοπα. Σύμφωνα με τις μελέτες αυτές, οι ενεργότητα του ²³⁸U στην Ανταρκτική είναι 0.037 μBq/m³ (Hamilton, 1970), στα βόρεια της Νορβηγίας είναι 0.068 μ Bq/m³ (Kolb, 1995), και στο Τόκιο 0.3 μ Bq/m³ (Hirose & Sugimura 1981). Όσον αφορά στις συγκεντρώσεις του ²¹⁰Pb έχουν βρεθεί 0.45 mBq/m³ στην Τσούκουμπα της Ιαπωνίας (Sato et al., 1994), 0.74 mBq/m³ στο Παλέρμο στην Ιταλία (Cannizaro et al., 1999), 0.62 mBq/m³ στην Γρανάδα στην Ισπανία (Azahra et al., 2004), 0.2-1.2 mBq/m³ στο Νιού Χέβεν στο Κονέκτικατ (Turekian et al., 1983), 0.036-0.524 mBq/m³ στη Λισσαβώνα στην Πορτογαλία (Carvalho et al., 1995), 1.15 mBq/m³ στο Ντιτρόιτ των ΗΠΑ (McNeary & Baskaran, 2003), 0.57 mBq/m³ στη Γερμανία (Winkler & Rosner, 2000). Συγκρίνοντας τα δεδομένα αυτά με τις μετρήσεις που έγιναν στα πλαίσια της Δ.Δ. σε ημέρες που δεν υπήρχε επίδραση από περιστατικά μεταφοράς αφρικανικής σκόνης (βλέπε παρακάτω στον πίνακα 6.8) προκύπτει ότι ο σταθμός μέτρησης ποιότητας του ατμοσφαιρικού αερολύματος του ΕΡΠ δεν έχει σημαντικό υπόβαθρο όσον αφορά τα ισότοπα αυτά, οπότε οι σχετικά υψηλότερες τιμές που σημειώθηκαν μπορούν να αποδοθούν σε εισβολές σωματιδίων σκόνης από την έρημο της Σαχάρας.



Στο σχήμα 6.28 που ακολουθεί παρουσιάζεται η ανάλυση οπισθοτροχιών που αφορούν στα δείγματα που δεν έχουν επηρεαστεί από φαινόμενα μεταφοράς αφρικανικής σκόνης.

Σχήμα 6.28 Ανάλυση οπισθοτροχιών που αναφέρονται σε δείγματα τα οποία δεν επηρεάζονται από γεγονότα μεταφοράς αφρικανικής σκόνης

Διδακτορική Διατριβή Αικατερίνης Δαλάκα

Όπως επιβεβαιώνεται από τις οπισθοτροχιές, οι αέριες μάζες προέρχονται από την κεντρική και ανατολική Ευρώπη. Κατά τις ημέρες που δεν παρατηρήθηκαν φαινόμενα μεταφοράς αφρικανικής σκόνης οι αναλύσεις στα δείγματα αυτά έδειξαν ότι για μεγέθη ατμοσφαιρικού αερολύματος μεταξύ 2.5 μm και 10 μm οι συγκεντρώσεις των ισοτόπων του ουρανίου είναι κάτω από το όριο ανίχνευσης και η μέση ενεργότητας του ²¹⁰Pb για τα σωματίδια του ατμοσφαιρικού αερολύματος μεταξή ΑΣ μικρότερα από 2.5 μm η μέση συγκέντρωση ενεργότητας για το ²³⁸U είναι 0.14 μBq/m³, για το ²³⁴U είναι 0.31 μBq/m³ και για τον ²¹⁰Pb είναι 206.5 μBq/m³. Η αυξημένη τιμή του ²¹⁰Pb στο κλάσμα αυτό του αερολύματος οφείλεται κατά κύριο λόγο στη φύση του ισοτόπου αυτού, καθώς αμέσως μετά την παραγωγή του προσκολλάται σε σωματίδια του ατμοσφαιρικό αερολυμα.

Στο σχήμα σχήμα 6.29 φαίνεται να υπάρχει μία αρνητική τάση μεταξύ των των ισοτόπων ²¹⁰Pb και ⁷Be – αν και όχι στατιστικά σημαντική λόγω του μικρού πλήθους δεδεομένων – στις περιόδους που δεν υπάρχει μεταφορά αφρικανικής σκόνης. Το γεγονός αυτό θα μπορούσε να σημαίνει ότι οι αέριες μάζες κατά την περίοδο αυτή οι οποίες είναι εμπλουτισμένες με ²¹⁰Pb προέρχονται από χαμηλότερα υψόμετρα, δεδομένης της προέλευσης και του κατακόρυφου προφίλ συγκέντρωσης που έχει το ισότοπο ⁷Be.



Σχήμα 6.29 Ενεργότητα των ισοτόπων ²¹⁰Pb και ⁷Be δειγμάτων που δεν έχουν επηρεαστεί από φαινόμενα μεταφοράς αφρικανικής σκόνης

6.5.1.3 Ενεργότητα ραδιενεργών ιχνηθετών κατά τη διάρκεια επεισοδίων που έχουν να κάνουν με καύση βιομάζας

Όπως έχει ήδη αναφερθεί, ραδιενεργοί ιχνηθέτες όπως το ⁷Be και ⁴⁰K παρουσιάζουν διαφοροποιήσεις στην ενεργότητα τους στην ατμόσφαιρα, λόγω της διαφορετικής προέλευσής και συμπεριφορά τους. Τα δύο αυτά ισότοπα προσδιορίσθηκαν στα πλαίσια της Δ.Δ. με τεχνικές γ-φασματοσκοπίας και οι ενεργότητές τους παρουσιάζονται στο σχήμα 6.30 που ακολουθεί στην επόμενη σελίδα. Στο σχήμα αυτό παρατηρείται ότι το μέγιστο ενεργότητας των δύο ισοτόπων εμφανίζεται κατά την ίδια χρονική στιγμή. Καθένα από τα ισότοπα αυτά συσχετίσθηκαν και με την ενεργότητα των ²¹⁰Po και ²¹⁰Pb (σχήμα 6.31) που ακολουθεί, στο οποίο παρουσιάζονται οι χρονοσειρές των μετρήσεων των ισοτόπων ²¹⁰Po, ²¹⁰Pb, ⁴⁰K και ⁷Be.



Σχήμα 6.30 Κυμάνσεις συγκεντρώσεων ισοτόπων ⁷Be και ⁴⁰K



Σχήμα 6.31 Χρονοσειρά μετρήσεων ενεργότητας των ισοτόπων ⁷Be, ⁴⁰K, ²¹⁰Po και ²¹⁰Pb

Όπως παρατηρείται από τα παραπάνω σχήμα, υπάρχει μία συγκεκεριμένη εβδομάδα όπου όλα τα ισότοπα παρουσιάζουν μέγιστο, με εξαίρεση το ²¹⁰Po. Όπως έχει ήδη αναφρθεί το ισότοπο ⁴⁰K συνδέεται με γεγονότα καύσης βιομάζας (Dalaka et al., 2019), ενώ οι υψηλές συγκεντρώσεις του ⁷Be συνδέονται με την εισβολή αερίων μαζών από τα ανώτερα ατμοσφαιρικά στρώματα (Dalaka et al., 2019).

Περαιτέρω ανάλυση με χρήση δορυφορικών εικόνων που απεικονίζουν τα γεγονότα καύσης βιομάζας και αναλύσεις οπισθοτροχιών (σχήμα 6.32), έχουν δείξει ότι κατά την παραπάνω χρονική περίοδο υπήρχε εκτεταμένη καύση βιομάζας στην ευρύτερη περιοχή της Ρωσίας και της Ουκρανίας, κάτι αναμενόμενο για την περίοδο αυτή (Korontzi et al., 2006).

Κατά τη διάρκεια αυτών των επεισοδίων δεδομένων των τυρβωδών αναταράξεων που δημιουργούνται (Kavouras et al., 2012; Pio et al., 2008), υπάρχει εισβολή αερίων μαζών από

τα ανώτερα ατμοσφαιρικά στρώματα, οπότε αυτές οι αέριες μάζες είναι εμπλουτισμένες με ⁷Be, κάτι που εξηγεί τις αυξημένες τιμές ⁷Be. Ενδιαφέρον παρουσιάζει η συμπεριφορά του ²¹⁰Po που φαίνεται να ακολουθει ένα διαφορετικό μοτίβο, σε σχέση με το ²¹⁰Pb.



Σχήμα 6.32 Ανάλυση οπισθοτροχιών. Τα κίτρινα σημεία αφορούν επιβεβαιωμένα επεισόδια καύσης βιομάζας (NASA/FIRMS)

6.5.1.4 Συμπεράσματα από τις μετρήσεις ενεργότητας των ²¹⁰Po και ²¹⁰Pb

Οι πυρήνες ²¹⁰Po και ²¹⁰Pb μετά τον σχηματισμό τους προσκολλώνται σε σωματίδια του ατμοσφαιρικού αερολύματος και στη συνέχεια απομακρύνονται από την ατμόσφαιρα μέσω διεργασιών απόθεσης των ΑΣ. Καθώς το ²¹⁰Po στις αέριες μάζες που βρίσκονται κοντά επιφάνεια του εδάφους είναι θυγατρικό του ²¹⁰Pb, η τιμή που παρουσιάζει ο λόγος τους συσχετίζεται με τον χρόνο παραμονής τους στην ατμόσφαιρα (Baskaran, 2011). Κατά συνέπεια ο λόγος ²¹⁰Po/²¹⁰Pb μπορεί να παρέχει πληροφορίες σχετικά με τον χρόνο παραμονής αερίων μαζών (Baskaran, 2011; Wang et al., 2014).

Σε παγκόσμια κλίμακα αναμένεται οι περιοχές που βρίσκονται σε μεσαία γεωγραφικά πλάτη να έχουν ψηλότερα ποσοστά απόθεσης ²¹⁰Pb και ²¹⁰Po (ως θυγατρικό του ²¹⁰Pb αναμένεται να ακολουθεί παρόμοια συμπεριφορά ως προς την εναπόθεσή του) από ό,τι στις περιοχές του Ισημερινού και των πόλων, λόγω της μεγάλης κάλυψης από νερό και χιόνι των στα χαμηλά και στα ψηλά γεωγραφικά πλάτη, που έχει ως αποτέλεσμα μικρότερη ηπειρωτική έκταση εκτεθειμένη στις αέριες μάζες που κινούνται από πάνω της και συνεπώς χαμηλότερες συγκεντρώσεις του αερίου ²²²Rn (Schell, 1977).

Στο σχήμα 6.33 που ακολουθεί στην επόμενη σελίδα παρουσιάζονται τυπικά α-φάσματα του ισοτόπου ²¹⁰Po από την ανάλυση δειγμάτων που δεν έχουν επηρεαστεί από φαινόμενα μεταφοράς αφρικανικής σκόνης. Με δεδομένο ότι η ποσότητα του ιχνηθέτη ²⁰⁹Po που έχει χρησιμοποιηθεί σε όλα τα δείγματα είναι η ίδια, προκύπτει αμέσως ότι η ενεργότητα του ²¹⁰Po αυξάνει όσο το μέγεθος του ΑΣ μικραίνει, κάτι που επιβεβαιώνεται και από τα αποτελέσματα του πίνακα 6.8. Στον πίνακα 6.8 παρατίθενται – μεταξύ άλλων – τα αποτελέσματα των μετρήσεων ²¹⁰Pb και ²¹⁰Po που έγιναν με μεθόδους α-φασματοσκοπίας στα πλαίσια της Δ.Δ., σε δείγματα που συλλέχθηκαν το 2017. Όπως διαπιστώνεται η ενεργότητα είναι σε αυτά με ευκολία. Αντιστοιχα συμπεράσματα προκύπτουν και για τον ²¹⁰Pb, ο οποίος εμφανίζει και πολύ υψηλότερες τιμές από το ²¹⁰Po.



Σχήμα 6.33. Τυπικά φάσματα α-φασματοσκοπικής ανάλυσης του ²¹⁰Ρο από δείγματα που δεν έχουν επηρεαστεί από περιστατικά μεταφοράς αφρικανικής σκόνης

Ημερομηνία	Μέγεθος σωματιδίων	²¹⁰ Po [µBq/m ³]	Αβεβαιότητα	MDA	²¹⁰ Pb [µBq/m ³]	Αβεβαιότητα	MDA	Χρόνος παραμονής [ημέρες]
14.3.2017 - 21.3.201	d _p >10	0.66	0.22	0.27	2.42	0.11	0.11	55
	2.5 <dp<10< td=""><td>3.42</td><td>0.37</td><td>0.17</td><td>9.62</td><td>0.30</td><td>0.07</td><td>71</td></dp<10<>	3.42	0.37	0.17	9.62	0.30	0.07	71
	d _p <2.5	88.1	6.90	0.58	363	7.80	0.15	49
11.4.2017 - 18.4.201	d _p >10	1.25	0.21	0.13	5.46	0.18	0.12	46
	2.5 <d<sub>p<10</d<sub>	2.32	0.30	0.18	12.03	0.30	0.09	39
	d _p <2.5	80.2	5.80	0.54	401	7.25	0.18	40
25.4.2017 - 2.5.2017	d _p >10	1.18	0.22	0.20	4.05	0.14	0.10	58
	2.5 <d<sub>p<10</d<sub>	7.14	0.65	0.13	19.70	0.44	0.11	73
	d _p <2.5	50.7	3.30	0.17	643	12.48	0.20	16
2.5.2017 - 9.5.2017	d _p >10	1.90	0.28	0.11	6.44	0.18	0.13	59
	2.5 <dp<10< td=""><td>4.82</td><td>0.45</td><td>0.07</td><td>19.90</td><td>0.53</td><td>0.10</td><td>49</td></dp<10<>	4.82	0.45	0.07	19.90	0.53	0.10	49
	d _p <2.5	148.00	9.68	0.45	359	7.47	0.18	83
16.5.2017 - 23.5.201	d _p >10	1.29	0.21	0.17	2.93	0.09	0.05	89
	2.5 <d<sub>p<10</d<sub>	4.60	0.42	0.11	11.00	0.30	0.12	84
	d _p <2.5	125.00	10.80	1.45	170	3.03	0.10	148

Πίνακας 6.8 Συγκεντρώσεις των ισοτόπων ²¹⁰Pb, ²¹⁰Po και εκτίμηση του χρόνου παραμονής ΑΣ στην ατμόσφαιρα

Βασιζόμενοι στην υπόθεση ότι το ²¹⁰Po της ατμόσφαιρας προέρχεται μόνο από τη διάσπαση του πατρικού του ²¹⁰Pb, ο λόγος μεταξύ των ²¹⁰Pb και ²¹⁰Po μπορεί να χρησιμοποιηθεί προκειμένου να προκύψει ο χρόνος παραμονής του αερολύματος στην ατμόσφαιρα, με την θεώρηση ότι αυτοί οι πυρήνες αποτίθενται σε σωματίδια του ατμοσφαιρικού αερολύματος αμέσως μετά την παραγωγή τους (Baskaran and Shaw, 2001). Σύμφωνα με το μοντέλο ανισσοροπίας των ²¹⁰Pb που χρησιμοποιήθηκε από τους Baskaran and Shaw (2001) και από τους Wang et al, 2014, σε ένα καλά αναμεμειγμένο και απομονωμένο ατμοσφαιρικό δείγμα, όπου ο ρυθμός της παροχής αερίου ραδονίου λόγω εκροής από το έδαφος είναι σταθερός, ισχύει η παρακάτω σχέση:

$$\frac{dA_{Po}}{dt} = \lambda_{Pb}A_{Pb} - (\lambda_{Po} + \kappa)A_{Po}$$
 (Σχέση 6.5)

όπου:

Διδακτορική Διατριβή Αικατερίνης Δαλάκα

 λ_{Pb} , λ_{Po} : οι σταθερές διάσπασης των ²¹⁰Po και ²¹⁰Pb

κ : η σταθερά απομάκρυνσης του ²¹⁰Po από την ατμόσφαιρα (d⁻¹).

Σε συνθήκες μόνιμης κατάστασης η παραπάνω εξίσωση είναι σταθερή με τον χρόνο οπότε ισχύει:

$$\kappa = \frac{\lambda_{Pb}A_{Pb}}{A_{Po}} - \lambda_{Po}$$
 (Σχέση 6.6)

και τελικά για τον χρόνο παραμονής του αερολύματος ισχύει:

$$\tau = \frac{1}{\kappa}$$
 (Σχέση 6.7)

Η μεθοδολογία αυτή χρησιμοποιήθηκε για να εκτιμηθεί ο χρόνος παραμονής του αερολύματος στην ατμόσφαιρα που παρουσιάζεται στον πίνακα 6.8.

Όπως διαπιστώνεται, ο χρόνος παραμονής κυμαίνεται σε μεγάλη περιοχή τιμών, από 16 έως και 148 ημέρες, χωρίς να φαίνεται κάποια εξάρτησή του από τις κλάσεις μεγέθους του αερολύματος που χρησιμοποιήθηκαν. Για τους υπολογισμούς θεωρήθηκε ότι (α) η αρχική συγκέντρωση ²¹⁰Po είναι μηδέν τη χρονική στιγμή που οι αέριες μάζες έφτασαν στο σημείο δειγματοληψίας, (β) όλο το ²¹⁰Po προέκυψε από τις διασπάσεις του ²¹⁰Pb και (γ) ότι δεν υπάρχουν πηγές ²¹⁰Po στο αερόλυμα το οποίο συγκεντρώθηκε γι'αυτή τη μελέτη. Διαπιστώνεται ότι οι υποθέσεις αυτές δεν είναι επαρκείς για να οδηγήσουν σε χρόνους παραμονής που να προσεγγίζουν τις εκτιμήσεις που αναφέρονται στη βιβλιογραφία με άλλες μεθόδους με μέγιστο τις 15 μέρες στα ανώτατα τμήματα της ατμόσφαιρα (Williams et al., 2002)

Μελέτες για την εκτίμηση του χρόνου παραμονής των αερίων μαζών στις ηπειρωτικές περιοχές των ΗΠΑ, οι οποίες βασίζονται στον λόγο των συγκεντρώσεων ²¹⁰Po/²¹⁰Pb κατέληξαν σε χρόνους της τάξης του ενός μήνα ή και περισσότερο (Moore et al., 1976; Robbins, 1978; Baskaran and Shaw, 2001; Wang et al., 2014). Εξάλλου, oι Marley et al (2000) χρησιμοποιώντας το λόγο ²¹⁰Po/²¹⁰Pb έδειξαν ότι ο χρόνος παραμονής των αερίων μαζών για μικρότερα μεγέθη ΑΣ (<0.62 μm) είναι 47-57 ημέρες. Αυτοί οι χρόνοι παραμονής, που για το συγκεκριμένο μέγεθος ΑΣ θεωρούνται αρκετά υψηλοί, μπορεί να οφείλονται σε πρόσθετες πηγές του ²¹⁰Ρο στην ατμόσφαιρα, όπως για παράδειγμα αμμοθύελλες, θερμικά εργοστάσια με καύση άνθρακα, πυρκαγιές και άλλες βιομηχανικές δραστηριότητες, όπως η παραγωγή τσιμέντου και διάφορων μετάλλων (Moore et al., 1976). Άλλες μελέτες (Baskaran and Shaw, 2001) κατέληξαν σε τιμές του χρόνου παραμονής πρακτικά μηδενικές. Η εξήγηση που είχε δοθεί στην περίπωση αυτή ήταν ότι ενδεχομένως δεν υπήρχαν πρόσθετες πηγές ²¹⁰Ρο στον αέρα κατά την περίοδο των μετρήσεων. Όσον αφορά τα αποτελέσματα της παρούσης εργασίας, οι χαμηλότεροι χρόνοι παραμονής είναι 16 ημέρες και το γεγονός αυτό, σε συνδυασμό με τα συμπεράσματα της βιβλιογραφίας δείχνει ότι εκτός από τις εισβολές των θυγατρικών του ²²²Rn στην ατμόσφαιρα, υπάρχουν και πρόσθετες πηγές.

Μία μελέτη από τους Kim et al., (2000) σχετικά με τα επίπεδα των ⁷Be, ²¹⁰Pb και του σταθερού Pb στον κόλπο του Chesapeake, έδειξε ότι η μεταφορά του ²¹⁰Pb γίνεται κατά κύριο λόγο από τα χαμηλά επίπεδα της ατμόσφαιρας. Όταν μεταφέρεται μόνο το ²²²Rn και δεν υπάρχει κάποια πρόσθετη πηγή ²¹⁰Po πέρα από τις διασπάσεις του ²¹⁰Pb, το να υπολογίζεται ο χρόνος παραμονής του αερολύματος χρησιμοποιώντας το λόγο ²¹⁰Po/²¹⁰Pb είναι μία αρκετά ρεαλιστική προσέγγιση.

Πρέπει στο σημείο αυτό να τονιστεί ότι η αξιοπιστία των τιμών του χρόνου παραμονής του ατμοσφαιρικού αερολύματος – πέραν από την αβεβαιότητα στο προσδιορισμό της ενεργότητας των ²¹⁰Po και ²¹⁰Pb – εξαρτάται πολύ από την αρχική συγκέντρωση του ²¹⁰Po στις εισερχόμενες αέριες μάζες στο σημείο συλλογής ατμοσφαιρικού αερολύματος. Αν υπάρχουν ποσότητες ²¹⁰Pb στο περιβάλλον όταν το αερόλυμα φτάσει την περιοχή δειγματοληψίας, τότε αυτό θα επηρεάσει και την εκτίμηση του χρόνου παραμονής του αερολύματος.

Γενικά, η μελέτη της συσχέτισης των ισοτόπων ²¹⁰Pb και ⁷Be παρουσιάζει πολύ μεγάλο ενδιαφέρον. Δεδομένου ότι η οι μηχανισμοί παραγωγής του ²¹⁰Pb και ⁷Be είναι τόσο διαφορετικοί, σχετικά υψηλή συσχέτιση μεταξύ των συγκεντρώσεων του ⁷Be και του ²¹⁰Pb θα μπορέσει να δώσει πληροφορίες σχετικά με την ατμοσφαιρική συμπεριφορά των ισοτόπων αυτών αλλά και πληροφορίες σχετικά με το κατά πόσο αυτά τα δύο ισότοπα μπορούν να χρησιμοποιηθούν ως ατμοσφαιρικοί ιχνηθέτες (Todd et al., 1989; Baskaran et al., 1993; Baskaran, 1995).

Ο λόγος ενεργότητας ⁷Be/²¹⁰Pb έχει εκτιμηθεί σε διάφορες μελέτες, συγκεκριμένα έχει βρεθεί να έχει την τιμή περί το 6 για δείγματα αερολύματος από αρκτικές περιοχές, ενώ σε δείγματα από το Galveston των ΗΠΑ βρέθηκε να είναι της τάξης του 15 (Baskaran et al., 1993). Στον πίνακα 6.9 που ακολουθεί παρατίθενται οι τιμές του λόγου ⁷Be/²¹⁰Pb που προέκυψαν από τα δείγματα αερολύματος που συλλέχθηκαν στο ΕΡΠ (σε περιόδους που δεν υπάρχουν φαινόμενα μεταφοράς αφρικανικής σκόνης).

Διαστήματα δειγματοληψίας	Αεροδυναμική διάμετρος	⁷ Be/ ²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po/ ²¹⁰ Pb
14.3.2017 - 21.3.2017	d _p < 2.5	17.72	0.24
11.4.2017 - 18.4.2017	d _p < 2.5	17.92	0.20
25.4.2017 - 2.5.2017	d _p < 2.5	19.23	0.08
2.5.2017 - 9.5.2017	d _p < 2.5	29.97	0.41
16.5.2017 - 23.5.2017	d _p < 2.5	45.74	0.73

Πίνακας 6.9 Λόγοι ενεργότητας ισοτόπων ⁷Be, ²¹⁰Pb, ²¹⁰Po

Πέραν το λόγου μεταξύ των ισοτόπων ²¹⁰Pb, και ²¹⁰Po ενδιαφέρον παρουσιάζει και η σχέση μεταξύ των τριών ισοτόπων ⁷Be, ²¹⁰Pb και ²¹⁰Po. Στο σχήμα 6.34 που ακολουθεί παρουσιάζονται οι συσχετίσεις μεταξύ ⁷Be και ²¹⁰Pb, και μεταξύ ²¹⁰Po και ²¹⁰Pb. Στο σχήμα 6.34α φαίνεται να υπάρχει μία θετική τάση μεταξύ των ισοτόπων ⁷Be και ²¹⁰Pb – χωρίς όμως να αποδεικνύεται στατιστικά σημαντική συσχέτιση λόγω του πολύ μικρού πλήθους δεδομένων. Αυτό το γεγονός αποτελεί ένδειξη ότι τα δύο αυτά ισότοπα έχουν παρόμοια ατμοσφαιρική συμπεριφορά και ότι δεν μπορούν να χρησιμοποιηθούν ως ανεξάρτητοι ατμοσφαιρικοί ιχνηθέτες, με εξαίρεση λίγους ηπειρωτικούς σταθμούς μέτρησης όπου ενδέχεται οι μεταβολές στις συγκεντρώσεις τους να γίνονται ανεξάρτητα (Todd et al., 1989; Baskaran et al., 2001). Τα δεδομένα τα οποία συλλέχθηκαν στην παρούσα εργασία είναι δυστυχώς περιορισμένα και δεν επαρκούν για να εξετασθεί το

ενδεχόμενο να μπορούν να χρησιμοποιηθούν ως ανεξάρτητοι ιχνηθέτες ή όχι. Όσον αφορά στα ισότοπα ²¹⁰Po και ²¹⁰Pb, αυτά παρουσιάζουν αρνητική τάση, όπως φαίνεται στο σχήμα 6.34β και αυτό είναι κάτι που ήταν αναμενόμενο καθώς το ²¹⁰Po είναι θυγατρικό του ²¹⁰Pb, οπότε οι υψηλότερες τιμές ενεργότητας του ²¹⁰Pb καταλήγουν σε μειωμένες συγκεντρώσεις του ²¹⁰Po (το γεγονός αυτό προϋποθέτει ότι το ²¹⁰Po στο σύνολό του προέρχεται από το ²¹⁰Pb και ότι δεν υπάρχουν πρόσθετες πηγές).



Σχήμα 6.34 Συσχέτιση ισοτόπων (α) ⁷Be με τον ²¹⁰Pb και (β) ²¹⁰Po με τον ²¹⁰Pb, σε περιόδους που δεν έχουμε επιδράσεις από μεταφορά αφρικανικής σκόνης

Συνοψίζοντας τα αποτελέσματα που παρουσιάσθηκαν στο κεφάλαιο αυτό μπορεί να λεχθεί ότι οι τιμές ενεργότητας του ισοτόπου 210Pb και των ισοτόπων του ουρανίου κατά τη διάρκεια επεισοδίων που σχετίζονται με περιστατικά μεταφοράς αφρικανικής σκόνης είναι πολύ χαμηλές – συχνά κάτω από τα όρια ανίχνευσης. Επίσης οι συγκεντρώσεις ενεργότητας του ²³⁴U είναι υψηλότερη για τα σωματίδια ατμοσφαιρικού αερολύματος με μέγεθος <2.5 μm. Η μεγάλη αβεβαιότητα στις μετρήσεις με τεχνικές α-φασματοσκοπίας δεν επιτρέπει την εξαγωγή ασφαλών συμπερασμάτων σχετικά με το κατά πόσον αυτό οφείλεται στη μεταβλητότητα της σύστασης της σκόνης η οποία προέρχεται από διάφορες περιοχές της Σαχάρα, ή απλά στη μεγάλη αβεβαιότητα των μετρήσεων. Τα δείγματα που έχουν αναλυθεί αποδεικνύουν ότι οι συγκεντρώσεις ενεργότητας του ²¹⁰Pb είναι υψηλότερες τον χειμώνα εξαιτίας του χαμηλού ορίου ανάμειξης και χαμηλότερες το καλοκαίρι εξαιτίας της ανάμειξης της τροπόσφαιρας λόγω της ηλιακής δραστηριότητας. Οι συγκεντρώσεις των ισοτόπων του ουρανίου που αφορούν στη μελέτη αυτή είναι χαμηλότερες από ό,τι στη βιβλιογραφία, και ο λόγος 234 U/ 238 U έχει υψηλότερες τιμές από ό,τι η βιβλιογραφία δείχνοντας ότι ενδεχομένως δεν υπάρχει ισορροπία στη σκόνη από την περιοχή της Σαχάρα για τα ισότοπα ²³⁴U και ²³⁸U.

Στις περιόδους όπου δεν υπάρχει μεταφορά αφρικανικής σκόνης οι συγκεντρώσεις των ισοτόπων ²³⁸U και ²³⁴U είναι τις περισσότερες περιπτώσεις κάτω από τα όρια ανίχνευσης και οι συγκεντρώσεις του ²¹⁰Pb είναι σημαντικά χαμηλότερες συγκριτικά με αυτές που σημειώνονται κατά τη διάρκεια επιβεβαιωμένων επεισοδίων μεταφοράς αφρικανικής σκόνης. Επίσης, συγκρίνοντας δεδομένα από τη βιβλιογραφία με μετρήσεις που που έχουν γίνει στο ΕΡΠ σε μέρες όπου δεν υπάρχει μεταφορά αφρικανικής σκόνης, προκύπτει το συμπέρασμα ότι ο σταθμός μέτρησης της ποιότητας του ατμοσφαιρικού αερολύματος του ΕΡΠ δεν επηρεάζεται από τοπικές πηγές, ούτε έχει σημαντικό υπόβαθρο στα ισότοπα αυτά.

Ένα ακόμα ενδιαφέρον συμπέρασμα είναι ότι τα ισότοπα ²¹⁰Pb και ⁷Be φαίνεται να παρουσιάζουν θετική συσχέτιση κατά την διάρκεια ημερών που δεν επηρεάζονται από επεισόδια μεταφοράς αφρικανικής σκόνης, δείχνοντας ότι οι αέριες μάζες κατά τη περίοδο αυτή οι οποίες είναι εμπλουτισμένες με το ισότοπο ²¹⁰Pb, προέρχονται από υψηλότερα υψόμετρα.

Όσον αφορά στα ισότοπα ²¹⁰Po και ²¹⁰Pb, διαπιστώθηκε ότι παρουσιάζουν υψηλότερη ενεργότητα στα ΑΣ με μέγεθος < 2.5 μm, γεγονός που δείχνει μία προτίμηση του ισοτόπου ²¹⁰Po να προσκολλάται σε αυτά τα μεγέθη. Ο χρόνος παραμονής των αερίων μαζών, ο οποίος υπολογίσθηκε με βάση την ανισορροπία στις συγκεντρώσεις αυτών των ισοτόπων υπολογίσθηκε στις 16 με 148 ημέρες. Αυτές οι τιμές είναι σύμφωνες με τη βιβλιογραφία, για περιπτώσεις που υπάρχουν ενδείξεις πρόσθετων πηγών του ισοτόπου ²¹⁰Po.

Η ατμοσφαιρική συμπεριφορά των ισοτόπων ⁷Be και ²¹⁰Pb βρέθηκε να είναι ίδια στη μελέτη αυτή, οπότε θεωρείται ότι δεν μπορούν να χρησιμοποιηθούν ως ανεξάρτητοι ιχνηθέτες ατμοσφαιρικών διεργασιών. Τέλος τα ισότοπα ²¹⁰Po και ²¹⁰Pb παρουσιάζουν αρνητική συσχέτιση σύμφωνα με τα αποτελέσματα της εργασίας αυτής, εύρημα αναμενόμενο βάσει της βιβλιογραφίας.

Κεφάλαιο 7

Επίλογος

Το Κεφάλαιο αυτό αποτελεί τον επίλογο ουσιαστικά της παρούσας Διδακτορικής Διατριβής. Αρχικά συνοψίζονται τα όσα διεξοδικά παρουσιάσθηκαν προηγουμένως στα επιμέρους κεφάλαια, δίνοντας έμφαση στα αποτελέσματα των δειγματοληψιών και των αναλύσεων που έγιναν και στα συμπεράσματα και ευρήματα τα οποία προέκυψαν από τα αποτελέσματα αυτά. Στη συνέχεια, επισημαίνονται τα επιτεύγματα και τα σημεία πρωτοτυπίας της, αλλά και οι δυσκολίες που παρουσιάσθηκαν και γίνονται προτάσεις για μελλοντική επέκταση της έρευνας στο αντικείμενο της Δ.Δ. Τέλος, παρουσιάζονται οι δημοσιεύσεις που έγιναν στα πλαίσια της εκπόνησης της Δ.Δ. σε επιστημονικά περιοδικά και επιστημονικά συνέδρια.

7.1 Συνοπτική παρουσίαση της Διδακτορικής Διατριβής

Αντικείμενο της Δ.Δ. ήταν η διερεύνηση της δυνατότητας αξιοποίησης ραδιενεργών ισοτόπων που ανιχνεύονται στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα, ως ιχνηθέτες ατμοσφαιρικών διεργασιών. Στο πλαίσιο αυτό αρχικά μελετήθηκαν οι ιδιότητες, η φυσική και κινητική του αερολύματος και παρουσιάστηκαν οι αρχές δειγματοληψίας αερολυμάτων και τα χρησιμοποιούμενα μέσα. Τα παραπάνω αναλύθηκαν εκτενώς στο Κεφάλαιο 2.

Σε αυτό το κεφάλαιο, παρουσιάστηκαν οι βασικοί ορισμοί και η χρησιμοποιούμενη ορολογία στη μελέτη του ατμοσφαιρικού αερολύματος, ενός πολύ ιδιαίτερου αντικειμένου με προεκτάσεις σε διάφορους τομείς. Ορίστηκαν έννοιες όπως το αερόλυμα και τα Αιωρούμενα Σωματίδια – ΑΣ (τόσο φυσικής όσο και τεχνητής προέλευσης), παρουσιάστηκε η ταξινόμησή τους (ομίχλη – σκόνη – αιθάλη κλπ) και η δυνατότητά τους να επηρεάζουν διάφορες ατμοσφαιρικές διεργασίες (όπως ο σχηματισμός ομίχλης για παράδειγμα). Έγινε λόγος για τον διαχωρισμό των ΑΣ σε πρωτογενή και δευτερογενή και για τους μηχανισμούς μετάβασης από τη πρώτη κατηγορία στη δεύτερη. Ακολούθως, παρουσιάστηκαν οι φυσικές ιδιότητες των ΑΣ, όπως η φυσική, αεροδυναμική, και η ισοδύναμη κατά Stokes διάμετρος, και η σημασία των μεγεθών αυτών στη συμπεριφορά των ΑΣ (όπως πχ η εναπόθεσή τους στα διάφορα τμήματα της αναπνευστικής οδού). Τα παραπάνω μεγέθη χρησιμοποιήθηκαν για την κατηγοριοποίηση των ΑΣ βάσει του μεγέθους τους (πχ σε λεπτόκοκκα, υπέρ λεπτόκοκκα, χονδρόκοκκα), κάτι που όπως θα φανεί ήταν σημαντικό για τις μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν.

Στο ίδιο κεφάλαιο παρουσιάστηκαν ακόμα βασικοί όροι της μηχανικής ρευστών και εξετάστηκαν φαινόμενα, όπως το φαινόμενο Kelvin και οι δυνάμεις που αναπτύσσονται σε ένα σωματίδιο του ατμοσφαιρικού αερολύματος (π.χ. ελκτικές, αποκόλλησης), ενώ δόθηκαν και βασικοί ορισμοί που αφορούν στην κίνηση των ΑΣ στο αέριο μέσο. Όλα τα παραπάνω είναι ιδιαίτερα σημαντικά και βρίσκουν εφαρμογή στο βασικό κομμάτι με το οποίο ασχολείται η Δ.Δ. που είναι η δειγματοληψία ατμοσφαιρικού αερολύματος. Ακολούθως στο 2° κεφάλαιο παρουσιάσθηκαν οι βασικές αρχές δειγματοληψίας και οι διαθέσιμοι δειγματολήπτες (μονού ή και πολλαπλών σταδίων), ανάλογα με το κλάσμα στο οποίο ανήκουν τα προς μελέτη ΑΣ και το ειδικό χαρακτηριστικό των ΑΣ που είναι προς εξέταση. Έγινε η βασική κατηγοριοποίηση των δειγματοληπτών, ανάλογα με τη μεθοδολογία συλλογής ΑΣ (παθητικοί – ενεργητικοί) και δόθηκαν οι βασικοί ορισμοί που συνδέονται με την απόδοσή τους αλλά και οι λόγοι οι οποίοι μπορούν να εισάγουν δυσκολείες και σφάλματα κατά τις δειγματοληψίες που έχουν να κάνουν τόσο με τα ΑΣ όσο και με το εκάστοτε χρησιμοποιούμενο σύστημα συλλογής. Ιδιαίτερη έμφαση δόθηκε στη λειτουργία αλλά και τη φυσική πίσω από έναν αδρανειακό συλλέκτη πολλαπλών σταδίων, καθώς ένας τέτοιου είδους δειγματολήπτης τελικά χρησιμοποιήθηκε και στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. Τέλος, αναλύθηκαν διεξοδικά και τα διαθέσιμα ήδη φίλτρων συλλογής ΑΣ και η κατηγοριοποίησή τους βάσει του υλικού και του τρόπου κατασκευής τους, βάσει του μεγέθους της ίνας, του πορώδους, χαρακτηριστικά δηλαδή που τελικά θα οδηγήσουν τον χρήστη στην επιλογή του κατάλληλου φίλτρου, ανάλλογα με το είδος της δειγματοληψίας που επιθυμεί να διεξάγει, ενώ παρουσιάζονται και ορισμένοι βασικοί κανόνες δειγματοληψίας ατμοσφαιρικού αερολύματος, κανόνες που εφαρμόστηκαν στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ.

Οι βασικές αρχές και μεθοδολογίες δειγματοληψίας και ανάλυσης δειγμάτων ατμοσφαιρικού αερολύματος που εφαρμόσθηκαν στα πλαίσια της Δ.Δ. παρουσιάστηκαν στο 3° Κεφάλαιο. Στο κεφάλαιο αυτό παρουσιάστηκαν επίσης τα πρωτόκολλα και οι μεθοδολογίες που χρησιμοποιήθηκαν βάσει των οποίων έγιναν οι οι μετρήσεις και προέκυψαν τα βασικά συμπεράσματα της παρούσας Δ.Δ.

Αρχικά παρουσιάστηκαν με λεπτομέρεια η λειτουργία και οι φυσικές αρχές πίσω από έναν δειγματολήπτη πρόσκρουσης πολλαπλών σταδίων (όπως και αυτός οποίος χρησιμοποιήθηκε και στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ.). Ακολούθως αναλύθηκαν οι διαφορές μεταξύ ενός δειγματολήπτη υψηλού και ενός δειγματολήπτη χαμηλού όγκου και ο όρος «αεροδυναμική διάμετρος αποκοπής σωματιδίων ανά στάδιο» βάσει του οποίου έγινε και η τελική επιλογή του τύπου του δειγματολήπτη που χρησιμοποιήθηκε στα πλαίσια της Δ.Δ. Ο δειγματολήπτης αυτός παρουσιάζεται με κάθε λεπτόμέρεια.

Στη συνέχεια, στο Κεφάλαιο 3 έγινε λόγος για τα φίλτρα που χρησιμοποιήθηκαν, για το λόγο επιλογής τους και για τη διαδικασία προετοιμασίας τους τόσο για τη δειγματοληψία όσο και για την εν συνεχεία ανάλυσή τους με την τεχνική της γ-φασματοσκοπίας.

Εκτενής λόγος έγινε και για τα ισότοπα τα οποία παρουσιάζουν ενδιαφέρον για τη παρούσα εργασία. Ένα από αυτά είναι το φυσικό ραδιενεργό ισότοπο κοσμικής προέλευσης ⁷Be, το οποίο χρησιμοποιείται ως ιχνηθέτης για την μελέτη της κίνησης των αερίων μαζών, των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος και της ρύπανσης της ατμόσφαιρας. Στην παρούσα Δ.Δ. έπαιξε πολύ σημαντικό ρόλο και στη μελέτη (μεταξύ άλλων) της κατανομής μεγέθους ΑΣ στα διάφορα κλάσματα του ατμοσφαιρικού αερολύματος, στη μελέτη της εποχικής διακυμανσης ατμοσφαιρικών παραμέτρων, της κίνησης των αερίων μαζών και των κατακόρυφων εναλλαγών στα ατμοσφαιρικά ²¹⁰Pb, ²¹⁰Po, ⁴⁰K, ²³⁴U και ²³⁸U και το προϊόν σχάσεως ¹³⁷C.

Για την ανάλυση των δειγμάτων αερολύματος και τον προσδιορισμό των επιπέδων της ενεργότητάς τους χρησιμοποιήθηκαν κυρίως τεχνικές γ-φασματοσκοπίας, όπως αναλύθηκε εκτενώς στο Κεφάλαιο 4. Η γ-φασματοσκοπία είναι μία μη καταστρεπτική μέθοδος για την ανίχνευση και τον ποσοτικό προσδιορισμό ραδιενεργών ισοτόπων που εκπέμπουν γακτινοβολία. Στο Κεφάλαιο αυτό παρουσιάστηκαν οι βασικές συνιστώσες μίας διάταξης γφασματοσκοπίας, έγινε ιδιαίτερος λόγος για τις συγκεκριμένες ανιχνευτικές διατάξεις υπερκάθαρου γερμανίου (High Purity Germanium – HPGe) οι οποίες βαθμονομήθηκαν και χρησιμοποιήθηκαν για τις ανάγκες τις παρούσας Δ.Δ. και παρουσιάστηκαν τα βασικά στοιχεία της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης, με έμφαση τη διαδικασία βαθμονόμησής απόδοσης, η οποία έγινε με συνδυασμό πειραματικών τεχνικών και τεχνικών προσομοίωσης Monte-Carlo. Ειδικότερα για τη βαθμονόμηση μέσω προσομοίωσης χρησιμοποιήθηκε ο κώδικας PENELOPE 2011 και συγκεκριμένα το πρόγραμμα PENMAIN που διατίθεται με τον κώδικα.

Η διαδικασία βαθμονόμησης απόδοσης για τις ανιχνευτικές διατάξεις που χρησιμοποιήθηκαν στα πλαίσια της Δ.Δ. περιγράφηκε με λεπτομέρεια στο 5° Κεφάλαιο.

Για την εφαρμογή τεχνικών προσομοίωσης Monte-Carlo, οι ανιχνευτές έπρεπε προηγουμένως να έχουν χαρακτηρισθεί, δηλαδή να έχουν προσδιορισθεί με τη μεγαλύτερη δυνατή ακρίβεια τα γεωμετρικά τους χαρακτηριστικά – κυρίως τα dead layers του ανιχνευτή. Αυτό επετεύχθη με εφαρμογή μίας επαναληπτικής διαδικασίας που συνδυάζει πειραματικές μετρήσεις και υπολογιστικές προσομοιώσεις.

Από αυτή τη διαδικασία προέκυψαν σημεία (Ε, eff) τα οποία σε ορισμένες περιπτώσεις (για πειραματικά σημεία και φωτόνια συγκεκριμένων ισοτόπων) έπρεπε να διορθωθούν για το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης (ταυτόχρονη αλληλεπίδραση του ανιχνευτή με δύο φωτόνια τα οποία προέρχονται από τη διάσπαση του ίδιου πυρήνα). Στο Κεφάλαιο αυτό παρουσιάζεται η μεθοδολογία εργασίας και τα προγράμματα τα οποία χρησιμοποιήθηκαν ώστε να εκτιμηθούν οι κατάλληλοι συντελεστές διόρθωσης των πειραματικών τιμών και φαίνεται ξεκάθαρα από τους υπολογισμούς αυτούς ότι το πρόβλημα είναι περισσότερο έντονο στους ανιχνευτές που έχουν υψηλή απόδοση, όπως ο ανιχνευτές τύπου φρέατος και ο ανιχνευτής σχετικής απόδοσης 91.5% του ΕΡΠ. Ιδιαίτερη έμφαση δόθηκε στην παρουσίαση της βαθμονόμησης του ανιχνευτή τύπου φρέατος του ΕΡΠ, ο οποίος βαθμονομήθηκε για πρώτη φορά στα πλαίσια της Διατριβής. Αποτέλεσμα των βαθμονομήσεων ήταν να προκύψουν οι συναρτήσεις βαθμονόμησης απόδοσης για όλους τους ανιχνευτές και τις γεωμετρίες που χρησιμοποιήθηκαν.

Το Κεφάλαιο 5 αποτελεί και ένα εγχειρίδιο το οποίο επιτρέπει σε όποιον το μελετήσει να κατανοήσει πλήρως τη διαδικασία και τη μεθοδολογία βαθμονόμησης ανιχνευτών γερμανίου με χρήση προσομοίωσης Monte-Carlo, αλλά και τη μεθοδολογία προσδιορισμού συντλεστών για διόρθωση του φαινομένου της πραγματικής σύμπτωσης, καθώς περιγράφονται με λεπτομέρια τα βήματα που ακολουθήθηκαν τόσο στο πειραματικό όσο και στο υπολογιστικό κομμάτι της εργασίας.

Η βαθμονόμηση των ανιχνευτικών διατάξεων για δύο γεωμετρίες φίλτρων ήταν ένα πολύ σημαντικό βήμα, το οποίο επέτρεψε τελικά την ανάλυση των δειγμάτων ατμοσφαιρικού αερολύματος και στο προσδιορισμό της ενεργότητάς τους. Η αξιολόγηση των αποτελεσμάτων των αναλύσεων που έγιναν με την τεχνική της γ-φασματοσκοπίας, επέτρεψε την εξαγωγή πλήθους συμπερασμάτων τα οποία παρουσιάστηκαν εκτενώς στο Κεφάλαιο 6.

Στο 6ο κεφάλαιο, γίνεται παρουσίαση των αποτελεσμάτων των αναλύσεων και η συσχέτιση της ενεργότητας των ραδιενεργών ισοτόπων του ατμοσφαιρικού αερολύματος με διάφορες μετεωρολογικές παραμέτρους και άλλα φαινόμενα. Τα δείγματα αερολύματος που αναλύθηκαν προέκυψαν με εφαρμογή του πρωτοκόλλου δειγματοληψιών και με χρήση αδρανειακού δειγματολήπτη πολλαπλών σταδίων, το οποίο εφαρμόσθηκε για τη παρακολούθηση του ραδιενεργού υποβάθρου και τη μελέτη της κύμανσης της συγκέντρωσης των ραδιενεργών ισοσόπων στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα (τόσο σε καθημερινή βάση, όσο και σε περιπτώσεις έκτακτης ανάγκης, όπως κάποιο ραδιολογικό ατύχημα). Οι δειγματοληψίες και τις αναλύσεις που έγιναν επέτρεψαν:

- 1. Τον προσδιορισμό στο αερόλυμα του ⁷Be και τη συσχέτισή του με διάφορες μετεωρολικές παραμέτρους. Συγκεκριμένα, για χρονική περίοδο έξι ετών παρουσίαζεται η χρονοσειρά της ενεργότητας του ⁷Be, η εξάρτηση του από τη σχετική υγρασία, το επίπεδο βροχόπτωσης, τη θερμοκρασία, την ηλιακή δραστηριότητα και το ύψος του ορίου ανάμιξης της ατμόσφαιρας. Η ενεργότητα του ⁷Be στα δείγματα που συλλέχθηκαν έδειξαν να έχουν έντονη εποχική κύμανση με μέγιστες τιμές κατά τους θερινούς και ελάχιστες κατά τους χειμερινούς. Σε ορισμένες περίπτώσεις επιβεβαιώθηκε η ύπαρξη στατιστικά σημαντικής συσχέτισης μεταξύ της ενεργότητας του ⁷Be και του αντίστοιχου μεγέθους, ενώ σε άλλες διαπιστώθηκε απλώς η ύπαρξη μίας τάσης. Συγκεκριμένα, η ενεργότητα του ισοτόπου ⁷Be έχει αρνητική συσχέτιση με τη σχετική υγρασία, ενώ είναι θετικά συσχετισμένη με τη θερμοκρασία περιβάλλοντος και τα επίπεδα της ηλιακής ακτινοβολίας. Επίσης η ενεργότητα του ισοτόπου ⁷Βε φαίνεται να εξαρτάται από το ύψος του οριακού στρώματος ανάμειξης (MLH) και τη βροχόπτωση, χωρίς όμως να διαπιστώνεται στατιστικά σημαντική συσχέτιση. Τέλος δεν κατέστη δυνατή η συσχέτιση με το πλήθος των ηλιακών κηλίδων.
- 2. Την ανάλυση της κατανομής μεγέθους των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος τα οποία είναι φορείς του ⁷Be για μία πολύ μεγάλη χρονική περίοδο. Εξετάζοντας την ενεργότητα του ισοτόπου ⁷Be σε όλη την περίοδο των μετρήσεων, προέκυψε το συμπέρασμα ότι η κατανομή μεγεθών της μέσης ενεργότητας του ⁷Be ήταν στην περιοχή της συσσώρευσης (accumulation), ενώ ένα δευτερογενές μοτίβο προέκυψε στην περιοχή των χονδρόκοκκων σωματιδίων. Οι κατανομές μεγεθών στα επιμέρους δείγματα φαίνεται να έχουν πιο πολύπλοκα μοτίβα, καταδεικνύοντας ότι τα σωματίδια ατμοσφαιρικού αερολύματος υπόκεινται σε περίπλοκες διεργασίες που διέπουν την διαμόρφωση και τον μετασχηματισμό τους. Το κυρίαρχο μοτίβο του AMAD της ενεργότητας του ισοτόπου ⁷Be έδειξε να μειώνεται όσο αυξάνονται οι ενεργότητας του ⁷Be, πιθανόν λόγω της κατακόρυφης ανάμειξης που ενισχύει τη μεταφορά του κοσμικού ισοτόπου ⁷Be. Επίσης το AMAD έδειξε να παρουσιάζει μία αρνητική τάση με τη θερμοκρασία, κυρίως λόγω του γεγονότος ότι οι υψηλές θερμοκρασίες ευνοούν την διείσδυση στρατοσφαιρικών αερίων μαζών που είναι εμπλουτισμένες με το ισότοπο ⁷Be. Από την άλλη, το AMAD έδειξε να είναι θετικά συσχετισμένο – αν και οριακά – με τη σχετική υγρασία, καθώς οι συνθήκες υψηλής υγρασίας ευνοούν την ανάπτυξη των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος.
- 3. Τη μελέτη της συσχέτισης μεταξύ της ολικής ενεργότητας και της περιεκτικότητας σε υγρασία των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος. Η μελέτη αυτή οδήγησε στο συμπέρασμα ότι η ολική ενεργότητα είναι θετικά συσχετισμένη με την ολική επιφάνεια των σωματιδίων, δείχνοντας ότι όσο μεγαλύτερη είναι η επιφάνεια των σωματιδίων, δείχνοντας ότι όσο μεγαλύτερη είναι η επιφάνεια των σωματιδίων τόσο υψηλότερη είναι και η ενεργότητα του ατμοσφαιρικού αερολύματος. Λαμβάνοντας υπόψη όλα αυτά τα ευρήματα, είναι προφανές ότι η ενεργότητα του ⁷Be και οι κατανομές μεγεθών του μπορούν να χρησιμοποιηθούν ως ιχνηθέτες για να περέχουν πληροφορίες, εκτός των άλλων, και για τον χρόνο παραμονής στην ατμόσφαιρα των σωματιδίων του αερολύματος. Ειδικότερα για το χρόνο παραμονής του αερολύματος, από τους υπολογισμούς που έγιναν με βάση τα αποτελέσματα των αναλύσεων που έγιναν προέκυψε ότι ο ελάχιστος χρόνος παραμονής των ΑΣ ήταν 2.04 ημέρες και ο μέγιστος 6.91 (μέσος χρόνος παραμονής 3.57 ημέρες), χρόνοι παραπλήσιοι με αυτούς που δίνει η βιβλιογραφία.
- 4. Την ανάλυση κύμανσης της ενεργότητας ισοτόπων που σχετίζονται με φαινόμενα καύσης βιομάζας, κατόπιν μελέτης περιστατικών καύσης βιομάζας σε ιδιαίτερα

απομακρυσμένες από την Ελλάδα περιοχές (τις περιοχές της Ρωσίας). Ο στόχος της μελέτης αυτής ήταν το να εκτιμηθεί η επίδραση των περιστατικών αυτών στις μετρούμενες συγκεντρώσεις ραδιενεργών ισοτόπων – ιχνηθετών καύσης βιομάζας στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα της Αθήνας. Στα πλαίσια αυτής της ανάλυσης μετρήθηκαν αυξημένα επίπεδα ραδιενέργειας (τόσο –γ όσο και –β) κατά τη διάρκεια φαινομένων καύσης βιομάζας, εν σχέσει με την υπόλοιπη περίοδο. Ανιχνεύθηκαν υψηλότερα επίπεδα των Φυσικών ραδιενεργών ισοτόπων, 40Κ και το ⁷Be αν και η κύμανση του ισοτόπου ⁷Be δεν ακολουθεί την κύμανση της συγκεντρώσεως του ⁴⁰Κ. Η εξεταζόμενη περίοδος που αφορά στη μεταφορά πλουμίου καύσης βιομάζας από τις περιοχές της Ρωσίας και της Ουκρανίας χαρακτηρίζεται και από αυξημένες συγκεντρώσεις ανθρακικού αερολύματος (στοιχειακού και οργανικού άνθρακα). Αυξημένες συγκεντρώσεις ανόργανου άνθρακα (CC) καταδεικνύουν την μεταφορά εδαφικής σκόνης κατά τη διάρκεια του φαινομένου καύσης βιομάζας. Οι συγκεντρώσεις του ισοτόπου 40Κ συσχετίσθηκαν με το K⁺ και το nss K⁺. Οι συγκεντρώσεις του ισοτόπου ⁷Be και της ολικής-β ακτινοβολίας έδειξαν επίσης μία καλή συσχέτιση με το K⁺ και το nssK⁺, και το γεγονός αυτό δείχνει ότι οι παρατηρούμενες αυξημένες συγκεντρώσεις μπορούν κατά βάση να αποδοθούν σε γεγονότα καύσης βιομάζας. Δεν παρατηρήθηκε ισχυρή συσχέτιση μεταξύ των συστατικών του εδάφους (CC, Ca²⁺, Mg²⁺) και ραδιενεργών ιχνηθετών (40Κ και ολικής -β ραδιενέργειας). Επίσης παρατηρήθηκε καλή συσχέτιση μεταξύ των συγκεντρώσεων του ισοτόπου 40Κ και της ολικής-β ακτινοβολίας με τον στοιχειακό άνθρακα η ύπαρξη του οποίου πάντα σχετίζεται με διεργασίες καύσης. Πρέπει πάντως να τονισθεί ότι οι παραπάνω «συσχετίσεις» δεν είναι τίποτα παραπάνω παρά απλές τάσεις και όχι στταιστικά τεκμηριωμένες συσχετίσεις, καθώς το πλήθος των δεδομένων δεν ήταν επαρκές για κάτι τέτοιο.

5. Την ανίχνευση ραδιενεργών ισοτόπων που σχετίζονται με ραδιολογικά ατυχήματα και συγκεκριμένα δύο περιπτώσεις ανίχνευσης επιπέδων ¹³¹Ι και ¹⁰³Ru στο ατμοσφαιρικό αερόλυμα, όπου ενεργοποίηθηκε και το δίκτυο εργαστηρίων Ro5.

Πέραν των γ-φασματσκοπικών αναλύσεων των δειγμάτων που έγιναν, μία σειρά επιλεγμένων δειγμάτων υπεβλήθη και σε α-φασματοσκοπική ανάλυση στα εργαστήρια της ΕΕΑΕ, με στόχο τον προσδιορισμό των φυσικών ραδιενεργών ισοτόπων του ²³⁸U, ²³⁴U και ²¹⁰Pb. Τα ισότοπα αυτά μπορούν να χρησιμοποιηθούν και ως ιχνηθέτες για τη μελέτη της μεταφοράς αερίων μαζών που σχετίζονται με τη μεταφορά αφρικανικής σκόνης και τη καύση βιομάζας. Οι αναλύσεις αυτές έδειξαν ότι:

- 6. Η ενεργότητα των ισοτόπων ²³⁸U και ²³⁴U κατά τη περίοδο που οι αέριες μάζες έφταναν στην Αθήνα από τις περιοχές της κεντρικής και ανατολικής Ευρώπης είναι στις περισσότερες περιπτώσεις κάτω από το όριο ανίχνευσης. Αντίθετα τα ισότοπα αυτά ανιχνεύονταν στις περισσότερες περιπτώσεις κατω αρικανικής σε περιόδους όπου υπήρχαν επιβεβαιωμένα περιστατικά μεταφοράς αφρικανικής σκόνης.
- 7. Η ενεργότητα του ισοτόπου ²³⁴U είναι υψηλότερη για μικρότερα μεγέθη σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος (<2.5 μm).</p>
- 8. Η τιμή του λόγου ²³⁴U/²³⁸U ήταν σε κάθε περίπτωση >1, δείχνοντας ότι υπάρχει ανισσοροπία μεταξύ των ισοτόπων ²³⁴U και ²³⁸U στην περιοχή της Σαχάρας, αν και η αβεβαιότητα των μετρήσεων δεν επέτρεψε τη διαπίστωση στατιστικά σημαντική διαφοράς από τη μονάδα.
- 9. Οι αναλύσεις για το ²¹⁰Pb δείχνουν ότι η ενεργότητα του είναι υψηλότερες κατά τους χειμερινούς μήνες, πιθανότατα λόγω του χαμηλού ορίου ανάμιξης της ατμόσφαιρας και χαμηλότερες κατά τους θερινούς μήνες λόγω της ανάμιξης της τροπόσφαιρας λόγω των αυξημένων θερμοκρασιών. Επιπλεόν η ενεργότητα του ²¹⁰Pb είναι υψηλότερη στα λεπτότερα κλάσματα (d_p< 2.5 μm).</p>

- 10. Συγκρίνοντας τα αποτελέσματα της εργασίας αυτής με αυτά της βιβλιογραφίας και αναφερόμενοι σε ημέρες όπου δεν υπήρχε εισβολή αερίων μαζών από τη περιοχή της Σαχάρας, προκύπτει το συμπέρασμα ότι στο σταθμό μέτρησης αερολύματος στον Δημόκριτο δεν υπάρχουν τοπικές πηγές ή έστω κάποιο ιδιαίτερο υπόβαθρο στα ισότοπα αυτά και ότι η ανίχνευσή τους οφείλεται καθαρά στην εισβολή σωματιδίων σκόνης από τις περιοχές της Σαχάρας.
- 11. Οι συγκεντρώσεις των ισοτόπων ²¹⁰Pb και ⁷Be παρουσιάζουν αρνητική συσχέτιση, δείχνοντας ότι οι αέριες μάζες κατά τα περιστατικά αυτά, προέρχονται από χαμηλότερα ύψη. Οι συγκεντρώσεις των ισοτόπων ²¹⁰Po και ²¹⁰Pb είναι υψηλότερε για μεγέθη σωματιδίων < 2.5 μm, καταδεικνύοντας τη προτίμηση του ²¹⁰Po να προσκολλάται σε αυτά.
- 12. Ο χρόνος παραμονής των μαζών του ατμοσφαιρικού αερολύματος μελετήθηκε βάσει του λόγου ²¹⁰Pb/²¹⁰Po και προσδιορίστηκε στις 16 με 148 ημέρες. Αυτές οι τιμές είναι σε συμφωνία με τη βιβλιογραφία, όσον αφορά περιστατικά που καταδεικνύουν την ύπαρξη και πρόσθετων πηγών ²¹⁰Po.
- 13. Η συμπεριφορά των ισοτόπων ⁷Be και ²¹⁰Pb βρέθηκε να είναι πρακτικά η ίδια στη μελέτη αυτή και αυτό δείχνει ότι τα δύο αυτά ισότοπα δεν μπορούν να χρησιμοποιηθούν ανεξάρτητα ως ιχνηθέτες στη μελέτη της συμπεριφοράς των αερίων μαζών.
- 14. Τέλος, βρέθηκε ότι οι συγκεντρώσεις των ισοτόπων ²¹⁰Po και ²¹⁰Pb είναι σε αρνητική συσχέτιση, γεγονός που ήταν αναμενόμενο βάσει της βιβλιογραφίας.

7.2 Επιτεύγματα και σημεία πρωτοτυπίας της παρούσας Δ.Δ.

Τα βασικά επιτεύγματα και τα στοιχεία πρωτοτυπίας της παρούσας Δ.Δ., μπορούν να συνοψιστούν ως εξής:

- Έγινε μία ενδελεχής και για μεγάλη χρονική περίοδο μελέτη του ισοτόπου ⁷Be και των παραγόντων που επηρεάζουν τα επίπεδά του στην ατμόσφαιρα, όπως είναι διάφορες περιβαλλοντικές και εποχικές παράμετροι.
- Μελετήθηκε η κατανομή μεγεθών των σωματιδίων που φέρουν το ⁷Be η εποχική τους κύμανση και προσδιορίστηκε το εύρος το οποίο δείχνει ιδιαίτερη προτίμηση.
- Εκτιμήθηκε ο χρόνος παραμονής των Αιωρούμενων Σωματιδίων στον αέρα αλλά και της περιεκτικότητάς τους σε υγρασία
- Απόδείχθηκε ότι η ενεργότητα του ⁷Be και οι κατανομές μεγεθών του μπορούν να χρησιμοποιηθούν ως ιχνηθέτες προκειμένου να παρέχουν πληροφορίες σχετικά με διάφορες ατμοσφαιρικές διεργασίες αλλά και το χρόνο παραμονής των σωματιδίων του ατμοσφαιρικού αερολύματος.
- Από τις μετρήσεις που έγιναν σε περιόδους που δεν υπήρχαν συμβάντα καύσης βιομάζας και γεγονότα μεταφοράς αφρικανικής σκόνης αποδείχθηκε ότι το ΕΡΠ είναι ένα εργαστήριο χαμηλού υποστρώματος το οποίο μπορεί να μετρήσεις και αξιοποιήσει τα φυσικά και τεχνητά ισότοπα που μελετήθηκαν ως ιχνηθέτες ατμοσφαιρικών διεργασιών.
- Προσδιορίσθηκαν ισότοπα τα οποία μπορούν να χρησιμοποιηθούν ως ιχνηθέτες σε περιστατικά καύσης βιομάζας και μεταφοράς αφρικανικής σκόνης, δύο καταστάσεις που χαρακτηρίζονται από έντονα τυρβώδεις αναμείξεις στο στρώμα της ατμόσφαιρας και μπορούν να είναι ο λόγος για τη μεταφορά μεγάλων ποσοτήτων Αιωρούμενων Σωματιδίων σε ιδιαίτερα μεγάλες αποστάσεις.
- Ανιχνεύθηκαν ισότοπα τεχνητής προέλευσης στην ατμόσφαιρα, και σε συνεργασία με το δικτύου Ro5 εκτιμήθηκε η πιθανότερη πηγή προέλευσής τους.

- Προσδιορίσθηκαν τα φυσικά α-ραδιενεργά ισότοπα ²³⁴U και ²³⁸U και συσχετίσθηκε η ανίχνευσή τους με φαινόμενα όπως η μεταφορά αφρικανικής σκόνης, ενώ υπολογίσθηκε και ο λόγος τους.
- Για την πραγματοποίηση των μετρήσεων που έγιναν στα πλαίσια της Διατριβής χαρακτηρίσθηκαν και βαθμονομήθηκαν μία σιερά ανιχνευτικών διατάξεων γερμανίου με χρήση πειραματικών τεχνικών και προσομοίωσης Monte-Carlo και αντιμετωπίσθηκε το προβλήμα λόγω του φαινομένου πραγματικής σύμπτωσης, το οποίο μάλιστα για έναν από τους ανιχνευτές (well type) έχει ιδίαιτερη σημασία.

Στο σημείο αυτό πρέπει να επισημανθεί ότι η σημαντικότερη δυσκολία που παρουσάστηκε στα πλαίσια της Δ.Δ. οφείλεται στα χαμηλά επίπεδα των ισοτόπων τα οποία μελετήθηκαν, κάτι που μοιραία εισάγει ανεπιθύμητα υψηλές αβεβαιότητες στις μετρήσεις και κατά συνέπεια στα συμπεράσματα που προκύπτουν εξ αυτών. Ένα άλλο πρόβλημα ήταν το σχετικά μικρό πλήθος μετρήσεων κάτω από συγκεκριμένες συνθήκες (π.χ. καύση βιομάζας) το οποίο επίσης εισάγει αβεβαιότητα στα συμπεράσματα που προκύπτουν από αυτές. Τέλος ένα πρόβλημα που παρουσιάσθηκε κατά τη διαδικασία βαθμονόμησης ήταν η έλλειψη προτύπων πσιτοποιημένων πηγών βαθμονόμησης.

7.3 Ιδέες για μελλοντική έρευνα

Με βάση τα αποτελέσματα και τις διαπιστώσεις από αυτή τη μελέτη, παρατίθενται στη συνέχεια μία σειρά από ιδέες για επέκταση της έρευνας στον τομέα της χρήσης ραδιενεργών ιχνηθετών για τη μελέτη της συμπεριφοράς των ατμοσφαιρικών αερολυμάτων:

- Συνέχιση των δειγματοληψιών με στόχο την απόκτηση μεγαλύτερου όγκου δεδομένων, κάτι που θα επιτρέψει την καλύτερη συσχέτιση ή και την απόδειξη της στατιστικα σημαντικής συσχέτισης μεταξύ μία σειράς μεγεθών.
- Εξέταση της δυνατότητας δειγματοληψίας ή/και φασματοσκοπικής ανάλυσης μεγαλύτερης διάρκειας, ή και την υιοθέτηση άλλου πρωτοκόλλου, με στόχο τη βελτίωση της στατιστικής των μετρήσεων και των επιπέδων ανίχνευσης κάτι που θα επιτρέψει την καλύτερη παρακολούθηση των φαινομένων και τη συσχέτιση μεταξύ μεγεθών.
- Συσχέτιση των αποτελεσμάτων των μετρήσεων με αποτελέσματα άλλων εργαστηρίων ή και συνεργασία/συντονισμός με άλλα εργαστήρια που πραγματοποιούν αντίστοιχες δειγματοληψίες και αναλύσεις κάτι που θα επιτρέψει την πλέον ολοκληρωμένη παρακολούθηση των ιχνηθετών στο περιβάλλον.
- Συνεργασία/συντονισμός με άλλα εργαστήρια για την ταυτόχρονη παρακολούθηση της ενεργότητας των ραδιενεργών ιχνηθετών στις υγρές και ξηρές ατμοσφαιορικές κατακρημνίσεις.
- Συσχέτιση των μετρουμένων μεγεθών και με άλλες παραμέτρους, όπως για παράδειγμα το όζον στην ατμόσφαιρα κ.α.
- Διασύγκριση μετρήσεων των ραδιενεργών ιχνηθετών με άλλα εργαστήρια και ταυτόχρονες μετρήσεις για τη διαπίστωση της χωρικής κύμανσης τους.
- Διερεύνηση της δυνατότητας ανίχνευσης και αξιοποίησης του ισοτόπου κοσμικής προέλευσης ²²Na ως ιχνηθέτη σε συνδυασμό με το ⁷Be.
- Καθώς τα ισότοπα που μελετήθηκαν αποδείχθηκε ότι μπορούν να χρησιμοποιηθούν γως ιχνηθέτες ατμοσφαιρικών διεργασιών θα μπρούσε να ξεκινήσει μία συστηματική παρακολούθηση και μελέτη αυτών των ατμοσφαιρικών διεργασιών, στις οποίες θα μπορούσαν να περιληφθούν και οι πυρκαγιές που δυστυχώς όλο και περισσότερο παρουσιάζονται στη χώρα.

7.4 Δημοσιεύσεις – Ανακοινώσεις σε συνέδρια

Κατά τη διάρκεια εκπόνησης της Δ.Δ. πραγματοποιήθηκαν μία σιερά από δημοσιεύσεις σε διεθνή επιστημονικά περιοδικά και ανακοινώσεις σε διεθνή συνέδρια. Όλα αυτά παρουσιάζονται στη συνέχεια:

ΔΗΜΟΣΙΕΥΣΕΙΣ ΣΕ ΕΠΙΣΤΗΜΟΝΙΚΑ	
ΣΥΝΕΔΡΙΑ	
2014	E. Dalaka , M. Anagnostakis, K. Eleftheriadis, "Long term measurements of Radioactive tracers at the Demokritos GAW station" Ring of five workshop, 7/9/2014, Barcelona, Spain (poster presentation)
2015	E. Dalaka, M. Anagnostakis, K. Eleftheriadis, "Factors influencing ambient concentrations of ⁷ Be over "Demokritos GAW station" EAC2015, European Aerosol Conference, 6-11 September 2015, Milan, Italy (poster presentation)
2015	 E. Dalaka, M. Anagnostakis, K. Eleftheriadis, "Seasonal variability of ⁷Be AMAD and dependency on atmospheric conditions in Athens", ENVIRA2015, International conference environmental radioactivity 21-25 September, Thessaloniki, Greece (oral presentation)
2016	E. Dalaka, M. Anagnostakis, K. Eleftheriadis, "Temporal Variations of ⁷ Be and its AMAD over "Demokritos" GAW station", HNPS2016, 25 th Symposium of the Hellenic Nuclear Physics Society, 3-4 June 2016, Athens, Greece (oral presentation)
2016	E. Dalaka, M. Anagnostakis, K. Eleftheriadis, "Long term measurements of radioactive tracers over "Demokritos GAW station" HNPS2016, 25 th Symposium of the Hellenic Nuclear Physics Society, 3-4 June 2016, Athens, Greece (oral presentation)
2016	E. Dalaka, M. Anagnostakis, K. Eleftheriadis, "Long term measurements of Radioactive tracers in Athens", EAC2016, European Aerosol Conference, 4-9 September 2016, Tours, France (poster presentation)
2017	E. Dalaka, K. Kehagia, K. Eleftheriadis, "Lead and Uranium isotopes in Sahara Dust Aerosol observed in Athens by Alpha spectrometry", HNPS2017, 26 th Symposium of the Hellenic Nuclear Physics Society, 9- 10 June 2017, Anavyssos, Greece (oral presentation)
2017	E. Dalaka, K. Kehagia, K. Eleftheriadis, "Lead and Uranium isotopes in Sahara Dust Aerosol observed in Athens by Alpha spectrometry", 4 th International Conference on Radioecology and Environmental Radioactivity (ICRER) in Berlin, Germany, 3-8 September 2017 (oral presentation)
ΔΗΜΟΣΙΕΥΣΕΙΣ ΣΕ ΕΠΙΣΤΗΜΟΝΙΚΑ ΠΕΡΙΟΔΙΚΑ	
2018	"Potential Source Apportionment and Meteorological Conditions Involved in Airborne 1311 Detections in January/February 2017 in Europe", O. Masson, G. Steinhauser, H. Wershofen, J. W. Mietelski, H. W. Fischer, L. Pourcelot, O. Saunier, J. Bieringer, T. Steinkopff, M. Hýža, B. Møller, T. W. Bowyer, E. Dalaka , A. Dalheimer, A. de Vismes-Ott, K.

	Eleftheriadis, M. Forte, C. Gasco Leonarte, K. Gorzkiewicz , Z. Homoki, K.
	Isajenko, T. Karhunen, C. Katzlberger, R. Kierepko, J. Kövendiné Kónyi,
	H. Malá, J. Nikolic, P. P. Povinec, M. Rajacic, W. Ringer, P. Rulík, R.
	Rusconi, G. Sáfrány, I. Sykora, D. Todorović, J. Tschiersch, K. Ungar, and
	B. Zorko, Environmental Science and Technology, 2018, 52 (15), pp
	8488–8500, DOI: 10.1021/acs.est.8b01810
2019	"Long range transported biomass-burning aerosols from large scale
	wildfires in Russia and surrounding Regions with respect to radioactive
	tracers", Ekaterini Dalaka, Maria I. Gini, Evangelia Diapouli and
	Konstantinos Eleftheriadis, Air Quality Atmosphere and Health, 2019
2020	"Efficiency Calibration of a Well-Type HPGe Detector Using
	Experimental And Monte Carlo Simulation techniques", Ekaterini
	Dalaka, Georgios Kuburas, Konstantinos Eleftheriadis and Marios J.
	Anagnostakis, Nuclear Technology and Radiation Protection, Vol. 35,
	No.2, pp. 121-129
2021	"Calibration and QA/QC methods for custom – made low activity
	sources", Ekaterini Dalaka , Mikael Hult, Konstantinos Eleftheriadis,
	Gerd Marissens, Guillaume Lutter, Heiko Stroh, JRC Technical Reports,
	European Commision, 2021

- Aciego S., Aarons S., Sims K., "The uranium-isotopic composition of Saharan dust collected over the central Atlantic Ocean", Aeolian Research 17, 61-66, (2015).
- Agostinelli S., Allison J., Amako K., Apostolakis J., Araujo H., Arce P., Asai M., Axen D., Banerjee S., Barrand G., Behner F., Bellagamba L., Boudreau J., Broglia L., Brunengo A., Burkhardt H., Chauvie S., Chuma J., Zschiesche D., "GEANT 4 a simulation toolkit", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, Vol 506, Issue 3, pages 250-303 (2003).
- Agrafiotis K., Karfopoulos K.L., Anagnostakis M.J., "Calibration o an in-situ BEGe detector using semiempirical and Monte Carlo techniques", Applied Radiation and Isotopes, 69 (8), pp. 1151-1155 (2011).
- Akhtar N., Tufail M., Ashraf M., Mohsin Iqbal M., "Measurement of environmental radioactivity for estimation of radiation exposure from saline soil of Lahore, Pakistan", Radiation Measurements 39, 11-14 (2005).
- Aksoy A., "Efficiency calibration of HPGe detector in far and close geometries", Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry, 169 (1993), pp. 463- 469 (1993).
- Aldahan A., Possnert G., Vintersved I., "Atmospheric interactions at northern high latitudes from weekly Beisotopes in surface air", Applied Radiation and Isotopes, 54, pp. 345-353 (2001).
- Allison J., Amako K., Apostolakis J., Araujo H., Arce Dubois P., Asai M., Barrand G., Capra R., Chauvie S., Chytracek R., Cirrone G.A.P., Cooperman G., Cosmo G., Cuttone G., Daquino G.G., Donszelmann M., Dressel M., Folger G., Foppiano F., Generowicz J., Grichine V., Guatelli S., Gumplinger P., Heikkinen A., Hrivnacova I., Howard A., Incerti S., Ivanchenko V., Johnson T., Jones F., Koi T., Kokoulin R., Kossov M., Kurashige H., Lara V., Larsson S., Lei F., Link O., Longo F., Maire M., Mantero A., Mascialino B., McLaren I., Mendez Lorenzo P., Minamimoto K., Murakami K., Nieminen P., Pandola L., Parlati S., Peralta L., Perl J., Pfeiffer A., Pia M.G., Ribon A., Rodrigues P., Russo G., Sadilov S., Santin G., Sasaki T., Smith D., Starkov N., Tanaka S., Tcherniaev E., Tomé B., Trindade A., Truscott P., Urban L., Verderi M., Walkden A., Wellisch J. P., Williams D.C., Wright D., and Yoshida H., "Geant4 Developments and Applications", IEEE transactions on nuclear science, vol. 53, No. 1 (2006).
- Alves C.A., Gonçalves C., Pio C.A., Mirante F., Caseiro A., Tarelho L., Freitas M.C., Viegas D.X., "Smoke emissions from biomass burning in a Mediterranean shrubland". ATMOS ENVIRON, 44: 3024-3033 (2010).
- Amiridis V., Zerefos C., Kazadzis S., Gerasopoulos E., Eleftheratos K., Vrekoussis M., Stohl A., Mamouri R.E., Kokkalis P., Papayannis A., Eleftheriadis K., Diapouli E., Keramitsoglou I., Kontoes C., Kotroni V., Lagouvardos K., Marinou E., Giannakaki E., Kostopoulou E., Giannakopoulos C., Richter A., Burrows J.P., Mihalopoulos N., "Impact of the 2009 Attica Wild Fires on the Air Quality in Urban Athens". Atmospheric Environment, Vol. 46, pp. 536-544. doi:10.1016/j.atmosenv.2011.07.056 (2012).
- Amiro B.D., Sheppard S.C., Johnston F.L., Evenden W.G., Harris D.R., "Burning radionuclide question: What happens to iodine, cesium and chlorine in biomass fires?". The Science of the Total Environment 187: 93-103 (1996).
- Anagnostakis M.J., Simopoulos S.E., "An experimental numerical method for the efficiency calibration of Low Energy Germanium detectors", Environmental International 22(1), S93-S99 (1995).
- Andersen Instruments Inc. "Operations Manual Model GS2310 Series", (1991).
- Artus J.C., Faurous P., "Atmospheric and liquid releases by hospitals" Radioprotection, 29 (4), 489–501 (1994).

- Ashrafi S., Likar A., Vidmar T., "Precise modeling o a coaxial HPGe detector" Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 438 (2-3), pp. 421-428 (1999).
- Azahra M., Camacho-Garcia A., Gonzalez-Gomez C., Lopez-Penalver J.J., El Bardouni T., "Seasonal 7Be concentrations in near-surface air of Granada (Spain) in the period 1993-2001., Applied Radiation Isotopes 59, 159-164, (2003).
- Azahra, M., Gonzalez-Gomez, C., Lopez-Penalver, J.J., El Bardouni, T., Camacho Garcia, A., Boukhal, H., El Moussaoui, F., Chakir, E., Erradi, L., Kamili, A., Sakaki, A., "Seasonal variation of 7Be and 210Pb concentrations in air", Radiat. Phys. Chem. 71, 789-790 (2004a).
- Baeza A., Rodriguez-Perulero A., Guillen J., "Anthropogenic and naturally occurring radionuclide content in near surface air in Caceres (Spain)". Journal of Environmental Radioactivity 165 24-31 (2016).
- Baro J., Sempau J., Fernandez-Varea J., Salvat F., "PENELOPE: An algorithm for Monte Carlo simulation of the penetration and energy loss of electrons and positrons in matter", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 100 (1), pp. 31-46 (1995).
- Baron P.A., Willeke K., "Aerosol Measurement, Principles, Techniques and Applications", second edition, Wiley-Interscience, A John Wiley and sons inc., publication (2001).
- Baskaran M., Coleman C. H., and Santschi P.H. "Atmospheric depositional fluxes of 7Be and 210Pb at Galveston and College Station, Texas". Journal of Geophysical Research, 98, 20,555-20,571 (1993).
- Baskaran, M. and Shaw, G.E., "Residence Time of Arctic Haze Aerosols Using the Concentrations and Activity Ratios of 210Po, 210Pb and 7Be". J. Aerosol Sci. 32: 443–452 (2001).
- Baskaran M., "210Po and 210Pb as atmospheric tracers and global atmospheric 210Pb fallout: a review, Special issue on the International Topical Meeting on Polonium and Radioactive lead isotopes". Journal of environmental radioactivity, 500-513 (2011).
- Belgin E.E., Aycik G.A., "Potassium compounds for gamma spectrometer efficiency verification", Applied Radiation and Isotopes, 125, 30-33 (2017).
- Berger M., Selt er, S., "Monte Carlo Transport of Electrons and Photons", Plenum, Νέα Υόρκη, Η.Π.Α., (1988).
- Bhandari N., Lal D., Rama T., "Stratospheric circulation studies based on natural and artificial radioactive tracer elements", Tellus 18, 391-405 (1966).
- Bhatti T.M., Malik K.A., "Phosphate fertilizers as a potential source for Uranium recovery as by product. A technical Report on Paec/NIBGE-2/1994". National Institute for Biotechnology & Genetic Engineering (NIBGE), Faisalabad (1994).
- Bieringer J., Bleher M., Dalheimer A., Dersch G., Herrmann J., Peter J., Roos N., Steinkopff T., Tait D., Wershofen H., "Messergebnisse aus Deutschland in Zusammenhang mit den Reaktorunfällen in Fukushima" (in German). In Umweltradioaktivität in der Bundesrepublik Deutschland - Stand (2011).
- Biscaye P., Grousset F., Revel M., Van der Gaast S., Zielinski G., Vaars A., Kukla G., "Asian provenance of glacial dust (stage 2) in the Greenland ice sheet project 2 ice core", Summit, Greenland. J. Geophys. Res. 102 (C12), 26765–26781 (1997).
- Blaauw M., "Calibration of the well type germanium gamma ray detector employing two gamma ray spectra", Nucl. Instr. and Meth. A 419, 146 (1998).
- Blanchard R.L., "Rapid determination of 210Pb and 210Po in environmental samples by deposition on nickel", Anal Chem 38: 189-192 (1966).
- Bonasoni P., Evangelisti F., Bonafe U., Ravegnani F., Calzolari F., Stohl A., Tositti L., Tubertini O., Colombo T. Stratospheric ozone intrusion episodes recorded at Mt. Cimone during the VOTALP project: case studies. Atmospheric Environment 34, 1355e1365 <u>http://dx.doi.org/10.1016/S1352-2310(99)00280-</u> 0 (2000).
- Bond T.C., Doherty S.J., Fahey D.W., Forster P.M., Berntsen T., De Angelo B.J., Flanner M.G., Ghan S., Kärcher B., Koch D., Kinne S., Kondo Y., Quinn P.K., Sarofim M.C., Schultz M.G., Schulz M., Venkataraman C., Zhang H., Zhang S., Bellouin N., Guttikunda S.K., Hopke P.K., Jacobson M.Z., Kaiser J.W., Klimont Z., Lohmann U., Schwarz J.P., Shindell D., Storelvmo T., Warren S.G., Zender C.S., "Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment". J GEOPHYS RES-ATMOS, 118: 5380-5552, doi: 10.1002/jgrd.50171 (2013).
- Bondietti E.A., Hoffman F.O., Larsen I.L., "Air-to-vegetation transfer rates of submicron aerosols", Journal of environmental Radioactivity 1, 5-27 (1984).
- Boson J., Agren G., Johansson L., "A detailed investigation o HPGe detector response or improved Monte Carlo efficiency calculations", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 587 (2-3), pp. 304-314 (2008).
- Bourcier L, Sellegri K, Masson O, Zangrando R, Barbante C, Gambaro A, Pichon J-M, Boulon J, Laj P, "Experimental evidence of biomass burning as a source of atmospheric 137Cs, puy de Dôme (1465 m a.s.l.), France". Atmospheric Environment 44: 2280-2286 (2010).
- Brost R.A., Feichter J., Heimann M., "Three-dimensional simulation of 7Be in a global climate model", Journal of Geophysical Research 96 (D12), 22423-22445 (1991).
- Brun, R., Bruyant, F., Maire, M., McPherson, A., Zanarini, P., "GEANT 3". DD/EE/84-1, CERN, Γενεύη, Ελβετία (1987).
- Canberra Industries, Mirion technologies <u>https://www.mirion.com/contact</u> (access December 2018).
- Cannizaro, F., Greco, G., Ranelli, M., Spitale, M.C., Tomarchio, E., "Determination of 210Pb concentration in the air ground-level by gamma spectrometry". Appl. Radiat. Isot. 51, 239-245 (1999).
- Cannizzaro F., Greco G., Raneli M., Spitale M.C. Tomarchio E., "Concentration measurements of 7Be at ground level air at Palermo, Italy comparison with solar activity over period of 21 years" Journal of Environmental Radioactivity 72, 259-271, (2004).
- Carvahlo F.P., "Origins and concentrations of 222Rn, 210Pb, 210Bi and 210Po in the surface air at Lisbon, Portugal, at the Atlantic Edge of the European Continental Landmass", Atmos Environ., 29: 1809–19 (1995).
- Carvalho F.P., Oliveira J.M., Malta M., "Forest fires and resuspension of radionuclides into the atmosphere", American Journal of Environmental Sciences 8(1): 1-4, (2012).
- Carvalho A.C., Reis M., Silva L., Madruga M.J., "A decade of 7Be and 210Pb activity in surface aerosols measured over the Western Iberian Peninsula", Atmospheric Environment 67 193-202 (2013).
- Carvalho F.P., Oliveira J.M., Malta M., "Exposure to radionuclides in smoke from vegetation fires". Science of The Total Environment Volume 472 (2014).
- Chao J.H., Chiu Y.J., Lee H.P., Lee M.C., "Deposition of berylluym-7 in Hsinchu, Taiwan", Applied radiation and Isotopes 70, 415-422 (2012).
- Chouak A., Vuister P., Paic G., Berrada M., Csikai J., "Determination of U and Ra in rock samples by Gamma Spectrometric method", Journal of Radioanalytical chemistry 45, 445-451 (1978).
- Clouvas A., Xanthos S., Antonopoulos-Domis M., "Monte Carlo based method for conversion of in-situ gamma ray spectra obtained with a portable Ge detector to an incident photon lux energy distribution", *Health Physics*, 74 (2), pp. 216-23 (1998).

- Colbeck, K. Eleftheriadis and I. "THE FRACTIONATION OF ATMOSPHERIC COARSE AEROSOL BY A TUNNEL SAMPLER EMPLOYING SINGLE STAGE IMPACTORS". J. Aerosol Sci., 31, pp. 321-334 (2000).
- Coles D.G., Meandows J.W.T., Lindeken C.L., "The direct measurement of ppm levels of uranium in soils using high-resolution GE(Li) gamma-ray spectroscopy", The science of the Total Environment 5, 171-179 (1976).
- Currie L.A., "Limits for qualitative detection and quantitative determination" Anal. Chem. Vol. 40, No3, (1968).
- D'Almeida, G.A., "A model for Saharan dust transport", Journal of Climate and Applied Meteorology 25, 903-316 (1986).
- Daish S.R., Dale A.A., Dale C.J., May R., Rowe J.E., "The temporal variations of 7 Be, 210Pb and 210Po in air in England", Journal of Environmental Radioactivity 84, 457-467, (2005).
- Dalaka E., Anagnostakis M., Eleftheriadis K., "Long term measurements of Radioactive tracers in Athens", EAC2016, European Aerosol Conference, 4-9 September 2016, Tours, France (2016).
- Dalaka E., Gini M.I., Diapouli E., Eleftheriadis K., "Long-range transported biomass-burning aerosols from large-scale wildfires in Russia and surrounding regions with respect to radioactive tracers"., Air Quality, Atmosphere and Health, Volume 12, Issue 5, pp 627–634 (2019).
- De Felice P., Angelini P., Fazio A. and Biagini R., "Fast procedures for coincidence-summing correction in γray spectrometry", Applied Radiation and Isotopes 52, 745-752 (2000).
- De Felice P., Angelini P., Fazio A. and Capogni M., "A national Campaign for Coincidence-Summing Correction in γ-Ray spectrometry", Applied Radiation and Isotopes 56, 117-123 (2002).
- Debertin K. and Schotzig U., "Nuclear Instruments and Methods" vol.158, pp. 471 (1979).
- Debertin K., Helmer R., "Gamma and x-ray spectrometry with semiconductor detectors", Elsevier, (1988).
- DePaolo D.J., Maher K., Christensen J.N., McManus J., "Sediment transport time measured with U-series isotopes: results from ODP North Atlantic drift site 984", Earth Planet. Sci. Lett. 248 (1-2), 394–410 (2006).
- Detection of radioactive iodine at trace levels in Europe in January 2017. http://www.irsn.fr/en/newsroom/news/pages/20170213_ detection-of-radioactive-iodine-at-trace-levels-in-europe-in-january-2017.aspx (accessed September 29, 2017).
- Detection of Ruthenium 106 in France and in Europe: Results of IRSN's investigations, https://www.irsn.fr/EN/newsroom/News/Pages/20171109_Detection-of-Ruthenium-106-in-Franceand-in-Europe-Results-of-IRSN-investigations.aspx με ημερομηνία πρόσβασης 15/1/2019).
- Diapouli E., Popovicheva O., Kistler M., Vratolis S., Persiantseva N., Timofeev M., Kasper-Giebl A., Eleftheriadis K., "Physicochemical characterization of aged biomass burning aerosol after long-range transport to Greece from large scale wildfires in Russia and surrounding regions, Summer 2010", Atmospheric Environment 96, 393-404 (2014).
- Diapouli E., Manousakas M., Vratolis S., Vasilatou V., Maggos Th. Saraga D., Grigoratos Th., Argyropoulos G., Voutsa D., Samara C., Eleftheriadis K., "Evolution of air pollution source contributions over one decade, derived by PM10 and PM2.5 source apportionment in two metropolitan urban areas in Greece", Atmospheric Environment 164, 416-430 (2017).
- Dibb J.E., Talbot R.W., Gregory G.L., "Beryllium 7 and Lead 210 in the Western Hemisphere Arctic Atmosphere: Observations from three recent aircraft-based sampling programs", Journal of Geophysics Res. 91 (D15),16709-16715 (1992).

- Dibb J.E., Talbot R.W., Scheuer E., Seid G., DeBell L., Lefer B., Ridley B., "Stratospheric influence on the northern North American free troposphere during TOPSE: 7Be as a stratospheric tracer", Journal of Geophysics Res. 108 (D4), 8363 (2003).
- Dibb J. E., "Vertical mixing above Summit, Greenland: insights into seasonal and high frequency variability from the radionuclide tracers 7Be and 210Pb", Atmospheric Environment 41, 5020- 5030, (2007).
- Doi T., Masumoto K., Toyoda A., Tanaka A., Shibata Y., Hirose K., "Anthropogenic radionuclides in the atmosphere observed at Tsukuba: Characteristics of the radionuclides derived from Fukushima", Journal of Environmental Radioactivity, 122, pp. 55-62. doi: 10.1016/j.jenvrad.2013.02.001 (2013).
- Donahue N.M., Robinson A.L., Stanier C.O., Pandis S.N., "Coupled partitioning, dilution, and chemical aging of semivolatile organics", Environmental Science and Technology 40, 2635–2643 (2006).
- Draganic I.G., Bjergbakke E., Draganic Z.D., and Sehested K. "Decomposition of ocean waters by potassium-40 radiation 3800 Ma ago as a source of oxygen and oxidizing species", Precambrian Research, 52, 337-345 337 (1991).
- Draxler R.R., and Taylor A.D., "Horizontal dispersion parameters for long-range transport modeling", J. Appl. Meteorol., 21, 367-372 (1982).
- Draxler R.R. and Stunder B.J.B., "Modeling the CAPTEX vertical tracer concentration profiles", Jnl appl. Met., 27, 617-25 (1988).
- Draxler R.R., "The calculation of low-level winds from the archived data of a regional primitive equation model", Jnl appl. Met., 29, 240-8 (1990).
- Draxler R.R., "Hybrid single-particle Lagrangian integrated trajectories (HY-SPLIT): Version 3.0 User's guide and model description", NOAA Tech. Memo. ERL ARL-195, 26 pp. and Appendices. [Available from National Technical Information Service, 5285 Port Royal Road, Springfield, VA 22161] (1992).
- Draxler R.R., Hess G.D., "Description of the HYSPLIT_4 modeling system", NOAA Technical Memorandum ERL ARL-224, Air Resources Laboratory, Silver Spring, Maryland (1997).
- Draxler R.R., Hess G.D., "An overview of the HYSPLIT_4 modeling system for trajectories, dispersion and deposition", Aust. Met. Mag., 295-308 (1998).
- Draxler R.R., Rolph G.D. "HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website (http://ready.arl.noaa.gov/ HYSPLIT.php)", NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD (2012).
- Dryak P., Kovar P., "Experimental and MC determination of HPGe detector efficiency in the 40–2754 keV energy range for measuring point source geometry with the source-to-detector distance o 25 cm", Applied Radiation and Isotopes, 64 (10-11), pp. 1346-1349 (2006).
- Duenas C., Fernandez M.C., Liger E., Carretero J., "Gross alpha, gross beta activities and 7Be concentrations in surface air: analysis of their variations and prediction model". Atmospheric Environment 33 3705-3715 (1999).
- Duenas C., Fernandez M.C., Canete S., Perez., "7Be to 210Pb concentration ration in ground level air in Malaga (36.7 °N, 4.5 °W), Atmospheric Research 92 49-57 (2009).
- Duenas C., Fernandez M.C., Cabello M., Gordo E., Liger E., Canete S., Perez M., "Study of the cosmogenic factors influence on temporal variation of 7Be air concentration during the 23rd solar cycle in Malaga (South Spain)" J Radioanal Nucl Chem 303:2151–2158 DOI 10.1007/s10967-014-3737-2 (2015).
- Dunbar C., Kataya A., Tiangbe T., "Reducing bounce effects in the Andersen cascade impactor", International Journal of Pharmaceutics, 301, pp. 25-32 (2005).

- Dutkiewicz V.A., Husain L., "Stratospheric and tropospheric components of 7Be in surface air", Journal of Geophysical Research 90 (D3), 5783-5788 (1985).
- Dwyer Instruments International, <u>http://www.dwyer-inst.com/Products/CatalogSearch.cfm</u> (accessed June 30, 2017).
- Eaton A.D., Clesceri L.S., Greenberg A.E., "Standard methods for the examination of water and wastewater, 19th edn". American Public Health Association, Washington, DC, (1995).
- El-Gharbawy H.A., Metwally S.M., Sharshar T., Elnimr T., Badran H.M., "Establishment of HPGe detector efficiency for point source including true coincidence correction", Nuclear Instruments and Methods A550, pp. 201-211 (2005).
- Erickson M., "The procedures manual of the environmental measurements laboratory, Vol1. 28th edition", US Department of Energy, (1997).
- European Commission EUR 23555 2009. Environmental Radioactivity in the European Community 2002 2003 Edited by: M.De Cort, B. Doherty, T. Tollefsen and C. Gitzinger Luxembourg: Office for Official Publications of the European Communities 112 pp
- Evangeliou N., Balkanski Y., Cozic A., Hao W.M., Mouillot F., Thonicke K., Paugam R., Zibtsev S., Mousseau T.A., Wang R., Poulter B., Petkov A., Yue C., Cadule P., Koffi B., Kaiser J.W., Møller A.P., "Fire evolution in the radioactive forests of Ukraine and Belarus: future risks for the population and the environment". Ecological Monographs 85(1): 49–72 (2015).
- Ewa I., Bodizs D., Czifrus S., Molnar Z., "Monte Carlo determination of full energy peak efficiency for a HPGe detector", Applied Radiation and Isotopes, 55 (1), pp. 103-108 (2001).
- Feely H.W., Larsen R.J., Sanderson C.G. "Factors that cause seasonal variations in Beryllium-7 concentrations in surface air", Journal of Environmental Radioactivity 9,223-249 (1989).
- Feichter J., Brost R.A., Heimann M., "Three-Dimensional Modeling of the Concentration and Deposition of 210Pb Aerosols", Journal of Geophysics Res. 96 (D12), 22447-22460 (1991).
- Ferrari A., Sala P.R., Fasso A., Ranft J., "FLUKA: A Multi-Particle Transport Code", SLAC-R-773, Stanford Linear Accelerator Center, Stanford university, Stanford, CA 94309 (2005).
- Friedman R., Reichard M., Blue T., Brown A., "Evaluation of scatter contribution from shielding materials used in scatter measurements for calibration range characterization", Health Physics, 80 (1), pp. 54-61 (2001).
- Fuchs N.A., "The Mechanics of Aerosols", p. 154. Pergamon Press, New York, (1964).
- Gehrke R.J., Helmer R.G. and Greenwood R.C., Nuclear Instruments and Methods 147, 405 (1977).
- Geiss A., Wiegner M., Bonn B., Schäfer K., "Mixing layer height as an indicator for urban air quality?" Atmos. Meas. Tech., 10, 2969–2988, (2017).
- Gerasopoulos E., Zerefos C.S., Papastefanou C., Zaris P., O Brien K., "Low-frequency variability of beyillium-7 surface concentrations over Eastern Mediterranean. Atmos. Environ. 37, 1745–1756 (2003).
- Gerasopoulos E., Zanis P., Papastefanou C., Zerefos C.S., Ioannidou A., Wernli H., "A complex case study of down to the surface intrusions of persistent stratospheric air over the Eastern Mediterranean", Atmospheric Environment 40 (22), 4113-4125 (2006).

Gilmore, G., Hemingway, J., "Practical Gamma Ray", John Wiley & Sons, Νέα Υόρκη, Η.Π.Α. (1995).

Grabowska S., Mietelski J.W., Kozak K., Gaca P., "Gamma emitters on microbecquerel activity level in air at Krakow (Poland)", J. Atmos. Chem. 46, 103-116 (2003).

- Gregory J.C., "Atmospheric radioactive isotopes at orbital altitudes", Radiation Measurements, Vol. 26, No. 6, pp. 841-850, (1996).
- Gurriaran R., Barker E., Bouisset P., Cagnat X., Ferguson C., "Calibration of a very large ultra-low background well – type Ge detector for environmental sample measurements in an underground laboratory", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 524, 264-272 (2004).
- Gustafson P.F., Kerrigan M.A., Brar S.S., "Comparison of berrylium-7 and caseium-137 radioactivity in ground level air", Nature 191, 454-456 (1961).
- Haase G., Tait D., Wiechen A., "Monte Carlo simulation of several gamma-emitting source and detector arrangements for determining corrections of self-attenuation and coincidence summation in gamma spectrometry", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A329, pp. 483-492 (1993).
- Hakonson T. E. and Whicker F. W., "Tissue distribution of radiocesium in the mule deer". Health Phys., 21,864—6 (1971).
- Halbleib, J., Kensek, R., Mehlhorn, T., Valdez, G., Seltzer, S., "ITS version 3.0: the integrated TIGER series of coupled electron / photon Monte Carlo transport codes", Report SAND91-1634, Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM (1992).
- Hamilton, E.I., "The concentration of uranium in air from contrasted natural environments". Health Phys. 19, 511e520, (1970).
- Hardy J., Iacob V., Sanchez-Vega M., Effinger R., Lipnik P., Mayes V., Willis D.K., Helmer R.G., "Precise efficiency calibration of an HPGe detector: source measurements and Monte Carlo calculations with sub-percent precision", Applied Radiation and Isotopes, 56 (1-2), pp. 65-69 (2002).
- Hayward E., Hubbell J., "The albedo of various materials for 1-MeV photons", Phys. Rev. 93, 955 (1954).
- Helmer R., "Modern tools or precise γ-ray spectrometry with Ge detectors", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 505 (1-2), pp. 297-305 (2003).
- Helmer R.G., Hardy J.C., Jacob V.E., Sanchez-Vega M., Neilson R.G., Nelson J., "The use of Monte Carlo calculations in the determination of a Ge detector efficiency curve", Nuclear Instruments and Methods A 511, 360-381 (2003).
- Hernandez F., El-Daoushy F., "Accounting for incomplete charge collection in Monte Carlo simulations of the efficiency of well-type Ge-detectors", Nuclear Instruments and Methods A 498, 340-351 (2003).
- Herold L., Kouzes R., "Intrinsic germanium detector efficiency calculations" IEEE Transactions on Nuclear Science, 38 (2), pp. 231-238 (1991).
- Hirayama H., Namito Y., Bielajew A.F., Wilderman S.J., Nelson W.R., "The EGS5 Code system", Stanford Linear Accelerator Center, Stanford University, Stanford, CA, Slac Report 730, (2005).
- Hirose, K., Sugimura, Y., "Concentration of uranium and the activity ratio of 234U/238U in surface air: effects of atmospheric burn-up of cosmos-954". Met. Geophys 32 (42), 317e332, (1981).
- Hirose K., Igarashi Y., Aoyama M., Kim C.K., Kim C.S., Chang B.W., "Recent trends of plutonium fallout observed in Japan: plutonium as a proxy for desertification", Journal of Environmental Monitoring 5, 302-307 (2003).
- Hoetzl H., Rosner G., Winkler R., "Correlation of 7Be concentrations in surface air precipitation with the solar cycle", Naturwissenschaften 78, 215-217 (1991).
- Holloway T., Fiore A., Hastings M.G. "Intercontinental transport of air pollution: Will emerging science lead to a new hemispheric treaty?" ENVIRON SCI TECHNOL, 37: 4535-4542 (2003).

- Hult M., Lutter G., "Detections of ¹⁰⁶Ru, via the decay of its daughter ¹⁰⁶Rh, in gamma-ray spectra", Technical considerations for laboratory work, JRC Technical reports, European Commission, EUR 28850 EN, (2017).
- Hurtado S., Garcia-Leon M., Garcia-Tenorio R., "Monte Carlo simulation of the response of a germanium detector for low-level spectrometry measurements using GEANT4", Applied Radiation and Isotopes, 61 (2-3), pp. 139-143 (2004).
- Huy N., Binh D., An V., "Study on the increase of inactive germanium layer in a high-purity germanium detector after a long time operation applying MCNP code", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 573 (3), pp. 384-388 (2007).
- IAEA Source of Iodine-131 in Europe Identified, http://www. iaea.org/newscenter/pressreleases/2011/prn201127.html (accessed July 2012).
- Igarashi Y., "Anthropogenic radioactivity in aerosol A Review Focusing on Studies during the 2000s". Japanese Journal of Health Physics 3: 313-323 (2009).
- International Monitoring System. <u>http://ims.ctbto.org/ (accessed</u> June 30, 2017).
- International Union of Radioecology (IUR). The Ring of Five task group. <u>http://www.iur-uir.org/en/task-</u>groups/id-22--ring-of-fivetask- group (accessed September 29, 2017).
- Ioannidou A., Manolopoulou M., Papastefanou C., "Temporal changes of 7Be and 210Pb concentrations in surface air at temperature latitudes (40 °N), Applied Radiation and Isotopes 63, 277-284 (2005).
- Ioannidou A., Papastefanou C., "Precipitation scavenging of 7Be and 137Cs radionuclides in air", *Journal of Environmental Radioactivity*, 85 (1), pp. 121-136 (2006).
- Ioannidou A., "Activity size distribution of 7Be in association with trace metals in the urban area of the city of Thessaloniki, Greece", Atmospheric Environment 45, 1286-1290, (2011).
- Ioannidou A. and Paatero J., "Activity size distribution and residence time of 7Be aerosols in the Arctic atmosphere", Atmospheric Environment 88, 99-106, (2014).
- IRSN, Institut de Radioprotection et de Surete Nucleaire, "Detection of ruthenium 106 in France and in Europe, results of IRSN's investigations", Information report, update of report of 09/10/2017, November 9, (2017).
- Israel Science and Technology, http://www.science.co.il/PTelements.asp, 22 November (2014).
- James F., "Monte Carlo Theory and Practice Data Handling Division", CERN, Geneva (1980).
- Jasiulionis R., Wershofen H., "A study of the vertical diffusion of the cosmogenic radionuclides 7Be and 22Na in the atmosphere", Journal of Environmental Radioactivity 79, 157-169 (2005).
- Jordan C.E., Dibb J.E., Finkel R.C., "10Be/7Be tracer of atmospheric transport and stratosphere-troposphere exchange", J. Geophys. Res. 108 (D8), 4234, (2003).
- Kalogridis A.C., Popovicheva O.B., Engling G., Diapouli E., Kawamura K., Tachibana E., Ono K., Kozlov V.S., Eleftheriadis K., "Smoke aerosol chemistry and aging of Siberian biomass burning emissions in a large aerosol chamber", Atmospheric Environment 185, 15–28. doi:10.1016/j.atmosenv.2018.04.033 (2018).
- Kalos M.H. and Whitlock P.A., "Monte Carlo Methods", Wiley-Interscience, New York (1986).
- Kamboj S., Kahn B., "Evaluation of Monte Carlo simulation of photon counting efficiency for germanium detectors", *Health Physics*, 70 (4), pp. 512-519 (1996).
- Karamanis D., "Efficiency simulation of HPGe and Si(Li) detectors in γ- and in X-ray spectroscopy", Nuclear Instruments and Methods in Physics A 505, 282-285 (2003).

- Karamanis D., Lacoste V., Andriamonje S., Barreau G., Petit M., "Experimental and simulated efficiency of an HPGe detector with point-like and extended sources", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 487 (3), pp. 477-487 (2002).
- Karfopoulos K.L., Anagnostakis M.J., "Parameters affecting full energy peak efficiency determination during Monte Carlo simulation", Applied Radiation and Isotopes article in press Kawrakow, (2009).
- Karfopoulos K.L., Anagnostakis M.J., "Parameters affecting full energy peak efficiency determination during Monte Carlo simulation", Applied Radiation and Isotopes, Vol. 68, Issues 7-8, pages 1435-1437 (2010).
- Kavouras I.G., Nikolich G., Etyemezian V., DuBois D.W., King J., Shafer D., "In situ observations of soil minerals and organic matter in the early phases of prescribed fires", J GEOPHYS RES-ATMOS, 117(D12), doi: 10.1029/2011JD017420 (2012).
- Kawrakow, I., Rogers, D., "The EGSnrc code system: Monte Carlo simulation of electron and photon transport", PIRS-701, National Research council of Canada, Ottawa, Καναδάς (2000).
- Kikuchi S., Sakurai H., Gunji S., Tokanai F., "Temporal variation of 7Be concentrations in atmosphere for 8y from 2000 at Yamagata, Japan: solar influence on the 7Be time series", Journal of Environmental Radioactivity 100, 515-521 (2009).
- Kim, G., Hussain, N., Scudlark, J., & Church, T. M., "Factors influencing the atmospheric depositional fluxes of stable Pb, Pb-210, and Be-7 into Chesapeake Bay", Journal of Atmospheric Chemistry, 36, 65-79, (2000).
- Koch D.M., Jacob D.J., Graustein W.C., "Vertical transport of tropospheric aerosols as indicated by 7Be, 210Pb, in a chemical model", Journal Geophysics Res. 101, 18651-18666 (1996).
- Kolb, W., "Thorium, uranium and plutonium in surface air at Vardo", J. Environ. Radioact. 31 (1), 1-6, (1995).
- Konovalov I.B., Beekmann M., Kuznetsova I.N., Yurova A., Zvyagintsev A.M., "Atmospheric impacts of the 2010 Russian wildfires: Integrating modeling and measurements of an extreme air pollution episode in the Moscow region", ATMOS CHEM PHYS, 11: 10036-10051 (2011).
- Korontzi S., McCarty J., Loboda T., Kumar S., "Global distribution of agricultural fires in croplands from 3 years of Moderate resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) data", Global Biochemical Cycles, vol. 20, GB2021 (2006).
- Korun M., Likar A., Vidmar T., "Monte-Carlo calculation of the spatial dependence of the coaxial HPGe detector efficiency for point sources", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 390 (1-2), pp. 203-208 (1997).
- Krenevicius R., Jasiulionis R., "Investigations of vertical turbulent diffusion in the area of the Ignalin nuclear power plant with the use of cocmogenic 7Be", Atmos. Phys., Acad. Sci. Lithuania, 12, (1988).
- Kritidis P., Florou H., Eleftheriadis K., Evangeliou N., Gini M., Sotiropoulou M., Diapouli E. and Vratolis S., "Radioactive Pollution in Athens, Greece due to the Fukushima Nuclear Accident", Journal of Environmental Radioactivity 114: 100-104. doi:10.1016/j.jenvrad.2011.12.006 (2012).
- Kritz M.A., Rosner S.W., Kelly K.K., Loewenstein M., Chan, K.R., "Radon measurements in the lower tropical stratosphere: evidence for rapid vertical transport and dehydration of tropospheric air", Journal of Geophysics Res. 98, 8725-8736 (1993).
- Kulan A., "Seasonal 7Be and 137Cs activities in surface air before and after the Chernobyl Event", Journal of Environmental radioactivity, 90, 2, pp. 140-150, (2006).

- Kulkarni P., Baron P.A., Willeke K., "Aerosol Measurement, Principles, Techniques and Applications" third edition, Wiley, (2011).
- Laborie J.M., Le Petit G., Abt D., Girard M., "Monte Carlo calculation of the efficiency calibration curve and coincidence summing corrections in low level gamma ray spectrometry using well type HPGe detectors", Applied Radiation and Isotopes 53, 57-62 (2000).
- Laborie J.M., Le Petit G., Abt D., Girard M., "Monte Carlo calculation of the efficiency response of a lowbackground well-type HPGe detector", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 479 (2-3), pp. 618-630 (2002).
- Lal D. & Peters D., "On the production of radioisotopes in the atmosphere by cosmic radiation and their application to meteorology", Journal of Atmospheric and Terrestrial Physics, Vol. 12, 306-328 (1958).
- Lal D. & Peters B., "Cosmic ray produced radioactivity on the Earth", Handbuch der Physik 46, 551-612 (1967).
- Lai S.C., Zou S.C., Cao J.J., Lee S.C., Ho K.F., "Characterizing ionic species in PM2.5 and PM10 in four Pearl River Delta cities, south China", J ENVIRON SCI, 19: 939-947 (2007).
- Lee S.J., Demokritou P., Koutrakis P., "Performance evaluation of commonly used impaction substrates under various loading conditions", Journal of Aerosol Science, 36, pp. 881-897 (2005).
- Lee S., Kim H.K., Yan B., Cobb C.E., Hennigan C., Nichols S., Chamber M., Edgerton E.S., Jansen J.J., Hu Y.T., Zheng M., Weber R.J., Russell A.G., "Diagnosis of aged prescribed burning plumes impacting an urban area", Environ.Sci. Technol. 42, 1438-1444 (2008).
- Leelössy Á., Mészáros R., Kovács A., Lagzi I., Kovács T., "Numerical simulations of atmospheric dispersion of iodine-131 by different models", PLoS One, 12 (2), e0172312 (2017).
- Likuku A.S., "Factors influencing ambient concentrations of 210Pb and 7Be over the city of Edinburgh", Journal of Environmental Radioactivity 87, 289-304 (2006).
- Liu L., Ma J., Didier F., Loic d. C., Zhang B., "Monte Carlo efficiency transfer method for full energy peak efficiency calibration of three type HPGe detectors: A coaxial N-type, a coaxial P-type and four BEGe detectors", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 564 (1), pp. 608-613 (2006).
- Ludington M., Helmer R., "High accuracy measurements and Monte Carlo calculations of the relative efficiency curve of an HPGe detector from 433 to 2754 keV", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 446 (3), pp. 506-521 (2000).
- Maher K., DePaolo D.J., Lin J. C.F., "Rates of silicate dissolution in deep-sea sediment: in situ measurement using U-234/U-238 of pore fluids", Geochim. Cosmochim. Acta 68 (22), 4629–4648 (2004).
- Maher K., DePaolo D.J., Christensen J., "U-Sr isotopic speedometer: fluid flow and chemical weathering rates in aquifers", Geochim. Cosmochim. Acta 70 (17), 4417–4435 (2006).
- Maleka P., Maucec M., "Monte Carlo uncertainty analysis o germanium detector response to γ-rays with energies below 1 MeV", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 538 (1-3), pp. 631-639 (2005).
- Marley, N. A., Gaffney, J. S., Drayton, P. J., Cunningham, M. M., Orlandini, K. A., & Paode, R., "Measurement of 210Pb, 210Po, and 210Bi, in size-fractionated atmospheric aerosols: An estimate of fine-aerosol residence times", Aerosol Science and Technology, 32, 569-583 (2000).
- Marple V.A. and Liu B.Y.H., "Characteristics of laminar jet impactors", Environ. Sci. Technol. 8, 648-654 (1974).
- Marple V.A., and Liu B.Y.H., "On fluid flow and aerosol impaction in inertial impactors", J. Colloid Interface Sci. 53, 31-34 (1975).

Marple V.A., Willeke K., "Impactor Design", Atmospheric Environment Vol. 10, pp. 891-896 (1976).

- Martell EA., and Moore H.E., "Tropospheric aerosol residence times: A critical review" J. Rech. Atmos.,8, 903-10 (1974).
- Masarik, J., Beer, J., "Simulation of particle fluxes and cosmogenic nuclide production in the earth's atmosphere", *Journal of Geophysical Research*, 104 (D10), pp. 12099-12111 (1999).
- Masson, O., Damien, P., Gurriaran, R. and D'Amico, D., "Impact of an exceptional Saharan dust outbreak in France: PM10 and artificial radionuclides concentrations in air and in dust deposit", Atmospheric Environment 44, 2478-2486 (2010).
- Masson O., Baeza A., Bieringer J., Brudecki K., Bucci S., Cappai M., Carvalho, F.P., Connan O., Cosma C., Dalheimer A., Didier D., Depuydt G., De Geer L.E., De Vismes A., Gini L., Groppi F., Gudnason K., Gurriaran R., Hainz D., Halldorsson O., Hammond D., Hanley O., Holey K., Homoki Z., Ioannidou A., Isajenko K., Jankovic M., Katzlberger C., Kettunen M., Kierepko R., Kontro R., Kwakman P.J.M., Lecomte M., Leon Vintro L., Leppanen A.P., Lind B., Lujaniene G., McGinnity P., McMahon C., Mala H., Manenti S., Manolopoulou M., Mattila A., Mauring A., Mietelski J.W., Muller B., Nielsen S.P., Nikolic J., Overwater R.M.W., Palsson S.E., Papastefanou C., Penev I., Pham M.K., Povinec P.P., Rameback H., Reis M.C., Ringer W., Rodriguez A., Rulik P., Saey P.R.J., Samsonov V., Schlosser C., Sgorbati G., Silobritiene B.V., Soderstrom C., Sogni R., Solier L., Sonck M., Steinhauser G., Steinkopff T., Steinmann P., Stoulos S., Sykora I., Todorovic D., Tooloutalaie N., Tositti L., Tschiersch J., Ugron A., Vagena E., Vargas A., Wershofen H., Zhukova O., "Tracking of Airborne Radionuclides from the Damaged Fukushima Dai-Ichi Nuclear Reactors by European Networks", Environ. Sci. Technol., 45 (18), 7670–7677 (2011).
- Masson O., Ringer W., Malá H., Rulik P., Dlugosz-Lisiecka M., Eleftheriadis K., Meisenberg O., De Vismes-Ott A., and Gensdarmes F., "Size Distributions of Airborne Radionuclides from the Fukushima Nuclear Accident at several Places in Europe", Environmental Science and Technology 47 (19): 10995-11003 (2013).
- Masson O., Steinhauser G., Wershofen H., Mietelski J.W., Fischer H.W., Pourcelot L., Saunier O., Bieringer J., Steinkopff T., Hýža M., Møller B., Bowyer T.W., Dalaka E., Dalheimer A., De Vismes-Ott A., Eleftheriadis K., Forte M., Gasco Leonarte C., Gorzkiewicz K., Homoki Z., Isajenko K., Karhunen T., Katzlberger C., Kierepko R., Kövendiné Kónyi J., Malá H., Nikolic J., Povinec P.P., Rajacic M., Ringer W., Rulík P., Rusconi R., Sáfrány G., Sykora I., Todorović D., Tschiersch J., Ungar K., Zorko B.,"Potential source apportionment and meteorological conditions involved in airborne 1311 detections in January/February 2017 in Europe", Environ Sci Technol 52(15):8488–8500 (2018).
- Matthews M., Vandergrift G., Ponsard B., Solin L.M., Dolinar G., Carranza E., Ringbom A., Hoffman E., Duran E., Turinetti J., Achim P., Hebel S., Saey P., Ramamoorthy N., Mikolajczak R., Fisher D., Higgy R., Biegalski S., Sameh A.A., Barbosa L., Zähringer M., Mercer D., Popov V., Becker A., Bowyer T., Cutler C., Tsipenyuk Y.M., Ungar K., Schraick I., Deconnick B., Amaya D., Camps J., Rao A., Auer M., Steinhauser G., Solomon S., "Workshop on Signatures of Medical and Industrial Isotope Production^DA Review" PNNL-19294, PNNL: Richland, (2010).
- McCallum G.J., Coote G.E., "Influence of source-detector distance on relative intensity and angular correlation measurements with Ge(Li) spectrometers", Nucl. Instrum. and Meth. 130, 189-197 (1975).
- McMurry, P.H., Wilson, J.C., "Growth laws for the formation of secondary ambient aerosols: implications for chemical conversion mechanisms. Atmos.Environ. 16, 121e134 (1982).
- McNeary, D., Baskaran, M., "Depositional characteristics of 7Be and 210Pb in southeastern Michigan", J. Geophys. Res. 108, 4210. doi:10.1029/2002JD003021 (2003).
- Mei L., Xue Y., De Leeuw G., Guang J., Wang Y., Li Y., Xu H., Yang L., Hou T., He X., Wu C., Dong J., Chen Z., "Integration of remote sensing data and surface observations to estimate the impact of the Russian wildfires over Europe and Asia during August 2010", BIOGEOSCIENCES, 8: 3771–3791 (2011).

- Mitchel N., Perez-Sanchez D., Thorne M.C., "A review of the behavior of U-238 series radionuclides in soils and plants", JOURNAL OF RADIOLOGICAL PROTECTION, R17-R48 (2013).
- Monaghan M.C., "Lead-210 in surface and soils from California: implications for the behavior of trace constituents in the planetary layer", Journal of Geophysical Research 94 (D5), 6449-6456 (1989).
- Montgomery D.C, Runger G.C., "Applied Statistics and Probability for Engineers", 3rd edition, John Wiley & Sons, Inc., ISBN 0-471-20454-4 (2003).
- Moore, H.E., Martell, E.A., Poet, S.E., "Sources of polonium-210 in the atmosphere". Environmental Science and Technology, 10, 586-591 (1976).

National Nuclear Data Center <u>https://www.nndc.bnl.gov/nudat2/chartNuc.jsp</u> (access data January 2018).

- Nelson, W., Hirayama, H., Rogers, "The EGS4 Code System", Stanfors Linear Accelerator Center, Stan ord, Καλιφόρνια, Η.Π.Α. (1985).
- Newton G.J., Cheng Y.S., Barr E.B. and YEH H.C., "Effects of collection substrates on performance and wall loses in cascade impactors", J. Aerosol Sci., 21, pp. 467-470 (1990).
- Niemi J.V., Tervahattu H., Vehkamaki H., Martikainen J., Laakso L., Kulmala M., Aarnio P., Koskentalo T., Sillanpaa M., Makkonen U., "Characterization of aerosol particle episodes in Finland caused by wildfires in Eastern Europe", ATMOS CHEM PHYS, 5: 2299–2310 (2005).
- Nir-El Y., Sima O., "Angular response o a HPGe detector to gamma-rays in situ measurements", Applied Radiation and Isotopes, 55 (1), pp. 1-7 (2001).
- Nix D.W., Powers R.P., Kanipe L.G., "Application of Germanium Detectors to Environmental Monitoring", Division of Environmental Planning, Tennessee Valley Authority, US, TVA/EP-79/06, 1979 (1979).
- O'Brien, K., "Secular variations in the production of cosmogenic isotopes in the earth's atmosphere", J. Geophys. Res., Volume 84, Issue A2, 423-431, (1979).
- O'Brien K., De La Zerda Lerner A., Shea M.A., Smart D.F., "The production of cosmogenic isotopes in the earth's atmosphere and their inventories. The Sun in Time", University of Arizona Press, Tucson, AZ, pp. 317-342 (1991).
- Osan J., Alfoldy B., Torok S., Van Grieken R., "Characterization of wood combustion particles using electron probe microanalysis", ATMOS ENVIRON, 36: 2207-2214 (2002).
- Paatero J., Vesterbacka K., Makkonen U., Kyllonen K., Hellen H., Hatakka J., Anttila P., "Resuspension of radionuclides into the atmosphere due to forest fires", Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 282(2): 473–476 (2009).
- Papandreou S., Savva M.I., Karfopoulos K.L., Karangelos D.J., Anagnostakis M.J., Simopoulos S.E., "Monitoring o Be-7 atmospheric concentration using short term measurements", Nuclear Technology & Radiation Protection, 26 (2), pp. 101-109 (2011).
- Papastefanou C., Ioannidou A., "Aerodynamic Size Association of 7Be in Ambient Aerosols", Journal of Environmental Radioactivity 26, 273-282, (1995).
- Papastefanou C. and Ioannidou A., "Beryllium-7 and solar activity", Applied Radiation and Isotopes 61, 1493-1495, (2004).
- Pekney N. and Davidson C.I, "Determination of trace elements in ambient aerosol samples", Anal. Chim. Acta, 5σα40, pp. 269–277 (2005).
- Percot S., Ruban V., Roupsard P., Maro D., Millet M., "Use of beryllium-7 as a surrogate to determine the deposition of metal and polycyclic aromatic hydrocarbon through urban aerosols in Nantes, France", Atmospheric Environment 74, 338-345 (2013).

Petrova K., Jankovec M., Fojtíkova I., Hůlka J., "New Challenges in Crisis Communication – the Results of Sociological Survey in the Czech Republic. In Proceedings of the RICOMET 2017 Conference: Social and Ethical Aspects of Decision-Making in Radiological Risk Situations", IAEA: Vienna, Austria, 27–29th June, (2017).

Peyres V., García-Toraño E., "Efficiency calibration of an extended-range Ge detect

- or by a detailed Monte Carlo simulation", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 580 (1), pp. 296-298 (2007).
- Pham M.K., Chamizo E., Mas Balbuena J.L., Miquel J.C., Martín J., Osvath I., Povinec P., "Impact of Saharan dust events on radionuclide levels in Monaco air and in the water column of the northwest Mediterranean Sea", Journal of Environmental Radioactivity 166, 2-9, (2017).
- Pio C.A., Legrand M., Alves C.A., Oliveira T., Afonso J., Caseiro A., "Chemical composition of atmospheric aerosols during the 2003 summer intense forest fire period", ATMOS ENVIRON, 42: 7530–7543 (2008).
- Popovicheva, O.B., Kireeva, E.D., Persiantseva, N.M., Timofeev, M.A., Kistler, M., Kopeikin, V.M., Kasper-Giebl, A., "Physicochemical characterization of smoke aerosol during large-scale wildfires: extreme event of August 2010 in Moscow", Atmos. Environ. 96, 405-414 (2014).
- Portin H., Mielonen T., Leskinen A., Arola A., Parjala E., Romakkaniemi S., Laaksonen A., Lehtinen K.E.J., Komppula M., "Biomass burning aerosols observed in Eastern Finland during the Russian wildfires in summer 2010 - Part 1: In-situ aerosol characterization", ATMOS ENVIRON, 47: 269-278 (2012).
- Posfai M., Simonics R., Li J., Hobbs P.V., Buseck P.R., "Individual aerosol particles from biomass burning in southern Africa: 1. Compositions and size distributions of carbonaceous particles", J GEOPHYS RES-ATMOS, 108(D13): 8483, doi:10.1029/2002JD002291 (2003).
- Ram K., Sarin M.M., "Atmospheric 210Pb, 210Po and 210Po/210Pb activity ratio in urban aerosols: temporal variability and impact of biomass burning emission", Tellus B: Chemical and Physical Meteorology 64: 17513 (2012).
- Rangarajan C., Madhavan R., Gopalakrishnan S.S., "Spatial and temporal distribution of lead-210 in the surface layers of the atmosphere", Journal of Environmental Radioactivity 3 (1), 23-33 (1986).
- Regtuit H.E., De Ruiter C.J., Vrins E.L.M., Hofschreuder P., Oeseburg F. and Benschop F.M., "The tunnel impactor. A multiple inertial impactor for coarse aerosol", J. Aerosol Sci., 21, pp. 919-933 (1990).
- Reguigui Nafaa, "Gamma Ray Spectrometry, Practical Information" September (2006).
- Rehfeld S., Heimann M., "Three dimensional Atmospheric Transport Simulation of the Radioactive tracers 210Pb, 7Be, 10Be and 90Sr", Journal of Geophys. Res., 100, pp. 26141-26161, (1995).
- Reid J.S., Hobbs P.V., Ferek R.J., Blake D.R., Martins J.V., Dunlap M.R., Liousse C., "Physical, chemical and optical properties of regional hazes dominated by smoke in Brazil", J. Geophys. Res. Atmos. 103, 32059-32080 (1998).
- Reid J.S., Koppmann R., Eck T.F., Eleuterio D.P., "A review of biomass burning emissions: Part II. Intensive physical properties of biomass burning particles", ATMOS CHEM PHYS, 5: 799–825 (2005a).
- Renoux A., Boulaud D., "Les aerosols », Physique et Metrologie, Paris, Lavoisier Tec&Doc, (1998).
- Reyss J.L., Shcmidt S., Legeleux F., Bonte P., "Large, low background well-type detectors for measurements of environmental radioactivity", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 357, 391-397 (1995).
- Rindi A., Charalambous S., "Airborne radioactivity produced at high-energy accelerators", Nuclear Instruments and Methods, 47, pp. 227-232 (1967).

- Robbins, J.A. "Geochemical and geophysical applications of radioactive lead. In J.O. Nriagu (Ed.)", The biochemistry of radioactive lead in the environment (pp. 285-393). New York: Elsevier, (1978).
- Rodenas J., Martinavarro A., Rius V., "Validation of the MCNP code for the simulation of Ge-detector calibration", Nuclear Instruments and Methods in Physics A 450, 88-97 (2000).
- Rodenas J., Pascual A., Zarza I., Serradell V., Ortiz J., Ballesteros L., "Analysis o the influence of germanium dead layer on detector calibration simulation for environmental radioactive samples using the Monte Carlo method", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 496 (2-3), pp. 390-399 (2003).
- Rodenas J., Gallardo S., Ballester S., Primault V., Orti J., "Application of the Monte Carlo method to the analysis of measurement geometries for the calibration o a HP Ge detector in an environmental radioactivity laboratory", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, 263 (1), pp. 144-148 (2007).
- Rogers V.C., Nielson K.K., "Correlations for predicting air permeabilities and 222Rn diffusion coefficients of soils", Health Physics 61 (2), 225-230 (1991).
- Rubinstein R.Y., "Simulation and the Monte Carlo Methods", John Wiley and Sons Inc., (1981).
- Rydell H., Prospero M., "Uranium and Thorium concentrations in wind-borne Saharan dust over the western equatorial north Atlantic ocean", Earth and planetary science letters 14 (1972) 397-402. North-Holland publishing company, 397-402, (1972).
- Saarikoski S., Sillanpaa M., Sofiev M., Timonen H., Saarnio K., Teinila K., Karppinen A., Kukkonen J., Hillamo R. "Chemical composition of aerosols during a major biomass burning episode over northern Europe in spring 2006: Experimental and modeling assessments". ATMOS ENVIRON, 41: 3577–3589 (2007).
- Saegusa J., Kawasaki K., Mihara A., Mitsuo I., Yoshida M., "Determination of detection efficiency curves of HPGe detectors on radioactivity measurement of volume samples", Appl. Radiat. Isot. 61, 1383-1390 (2004).
- Sakurai H., Shouji Y., Osaki M., Aoki T., Gandou T., Kato W., Takahashi Y., Gunji S., Tokanai F., "Relationship between daily variation of cosmogenic nuclide Be-7 concentration in atmosphere and solar activities", Advances in Space Research 36, 2492-2496, (2005).
- Sanchez-Reyes A.F., Febrian M.I., Baro J., Tejada J., "Absolute Efficiency Calibration Function for the Energy Range 63-3054 keV for a Coaxial Ge(Li) Detector", Nuclear Instruments and methods in Physics Research, B28, pp. 123-127 (1987).
- Sanderson, C.G., and Decker, K.M. "A mixed gamma-ray standard for calibrating germanium well detectors", Radioactivity and Radiochem 4 (2) 36 (1993).
- Sapkota, A., Symons, M.J., Kleissl, J., Wang, L., Parlange, M.B., Ondov, J., Breysse, P.N., Diette, G.B., Eggleston, P.A., Buckley, T.J., "Impact of the 2002 Canadian forest fires on particulate matter air quality in Baltimore city". Environ. Sci. Technol. 39, 24-32 (2005).
- Sato, J., Doi, T., Segawa, T., Sugawara, S.I., "Seasonal variation of atmospheric concentrations of 210Pb and 7Be at Tsukuba, Japan, with a possible observation of 210Pb originating from the 1991 eruption of Pinatubo volcano". Philippines. Geochem. J. 28, 123-129 (1994).
- Savva M.I., Karangelos D.J., Anagnostakis M.J., "Determination or ⁷Be and ²²Na activity in air and rainwater samples by gamma-ray spectrometry", Nuclear Engineering Department, School of Mechanical Engineering, National Technical University of Athens, Iroon Polytechniou 9, 15780 Zografou, Athens, Greece, Applied Radiation and Isotopes 134 (2018) 466- 469

- Schell, W.R., "Concentrations, Physico-chemical States and Mean Residence Times of 210Pb and 210Po in Marine and Estuarine Waters", Geochim. Cosmochim. Acta 41: 1019–1031 (1977).
- Schlager M., "Precise modeling o coaxial germanium detectors in preparation or a mathematical calibration", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 580 (1), pp. 137-140 (2007).
- Schumann T., Gysi H., Kaelin S., "Coating of impaction surfaces of cascade impactors:necessary for sampling ambient aerosols", J. Aerosol Sci., 19, pp. 993-996 (1988).
- Schuster, M., Duringer, P., Ghienne, J.-F., Vignaud, P., Mackaye, H., Likius, A., Brunet, M., "The age of the Sahara desert". Science 311 (5762), 821, (2006).
- Sebastiao R., Rodrigues R., Kastner G., Ferreira A., Leal A., "Retrieval o efficiency curve in HPGe detector: an experimental and Monte Carlo simulation", INAC 2007 International Nuclear Atlantic Conference. 39. International Nuclear Information System (INIS) (2007).
- Seinfels J., Wolfenbarger K. and John H. "Estimating the variance in solutions to the aerosol data inversion problem", Aerosol Science and Technology. 14, pp. 348-357 (1991).
- Semkow T.M., Mehmood G., Parekh P.P. and Virgil M., "Coincidence Summing in Gamma-Ray spectroscopy", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A290, 437-444 (1990).
- Sempau J., Acosta E., Baro J., Fernandez-Varea J., Salvat F., "An algorithm for Monte Carlo simulation of coupled electron-photon transport", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 132 (3), pp. 377-390 (1997).
- Sima O., "Photon Attenuation For Samples in Marinelli Beaker Geometry: an Analytical Computation", Health Physics 62, pp. 445-449 (1992).
- Sima O., "Applications of Monte Carlo Calculations to Gamma-spectrometric Measurements of Environmental Samples", Applied Radiation and Isotopes, Vol. 47 No. 9/10, pp.919-923 (1996).
- Sima O., Arnold D., " Self-attenuation and Coincidence-summing Corrections Calculated by Monte Carlo Simulations for Gamma-spectrometric Measurements with Well-type Germanium Detectors ", Appl. Radiat. Isot. Vol. 47, No 9/10, pp. 889-893, (1996).
- Sima O., "Accurate calculation of total efficiency of Ge well-type detectors suitable for efficiency calibration using common standard sources", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, Volume 450, Issue 1, 98-108 (2000).
- Sima O., Ca an I., inescu L., Arnold,, "Efficiency calibration of high volume samples using the GESPECOR so tware", Applied Radiation and Isotopes, 61 (2-3), pp. 123-127 (2004).
- Sima, O., Arnold, "On the Monte Carlo simulation of HPGe gamma-spectrometry systems", Applied Radiation and Isotopes, 67 (5), pp. 701-705 (2009).
- Sobol, I., "A Primer or the Monte Carlo Method", CRC Press, Inc (1994).
- Space weather prediction center, National Oceanic and Atmospheric Administration, www.swpc.noaa.gov
- Steinhauser G., Merz S., Kübber-Heiss A., Katzlberger C., "Using animal thyroids as ultra-sensitive biomonitors for environmental radioiodine". Environ. Sci. Technol., 46 (23), 12890–12894 (2012).
- Steinmann P., Zeller M., Beuret P., Ferreri G., Estier S., "Cosmogenic 7Be and 22Na in ground level air in Switzerland (1994–2011)", Journal of Environmental Radioactivity, 124, pp. 68-73 (2013).
- Sudár S., "TrueCoinc A program for calculation of true coincidence correction for gamma rays" (User's manual), Institute of Experimental Physics Kossuth University, Debrecen, Hungary (2000).

- Tichý O., Šmídl V., Hofman R., Šindelářová K., Hýža M., Stohl A., "Bayesian inverse modeling and source location of an unintended I-131 release in Europe in the fall of 2011", Atmos. Chem. Phys. Discuss., 1–24 (2017).
- Tisch Environmental, Inc., Series 230 high Volume Cascade Impactors, Multi-Stage Particulate Size Fractionator, Rev1. 8/2004, Operations Manual (2004).
- Todd, J. F., Wong, G. T. F., Olsen, C. R., & Larsen, I. L., "Atmospheric depositional fluxes of beryllium 7 and lead 210 along the southeastern Virginia coast", Journal of Geophysical Research, 94, 11,106-11,116 (1989).
- Tokuyama H., Igarashi S., "Seasonal variation in the environmental background level of cosmic-rayproduced 22Na at Fukui City, Japan", Journal of Environmental Radioactivity 38 (2), 147-161, (1998).
- Tombuyses B., Schmitz F., Wertelaers A., Schrauben M., Van Den Berghe Y., Drymael H., "Incidental release in IRE", <u>https://www.eurosafe-forum.org/sites/default/files/Presentations2009/Seminar5/Slides/5.2-</u> <u>Incidental%20release%20in%20IRE.pdf</u> (2009).
- Triantafyllou E., Diapouli E., Tsilibari E. M., Adamopoulos A. D., Biskos G., "Assessment of factors influencing PM mass concentration measured by gravimetric and beta attenuation techniques at a suburban site ", atmospheric Environment 131, 409-417 (2016).
- Tsoulfanides N., "Measurement and Detection of Radiation", Hemisphere Publishing Corp., ISBN 0-89116-523-1 (1983).
- Turekian K.K., Nozaki Y., Benninger L.K., "Geochemistry of atmospheric radon and radon products", Annu. Rev. Earth. Planet. Sci. 5, 227-255 (1977).
- Turekian, K.K., Benninger, L.K., Dion, E.P., "7Be and 210Pb total deposition fluxes at New Haven, Connecticut and Bermuda", J. Geophys. Res. 88, 5411e5415 (1983).
- Uematsu M.; Merrill J. T.; Patterson T. L.; Duce R. A.; Prospero J. M., "Aerosol residence times and iodine gas/particle conversion over the North Pacific as determined from Chernobyl radioactivity". Geochem. J., 22, 157-63 (1988).
- Vandecasteele C.M., Sonck M., Degueldre D., "Rejet accidental d'iode-131 par l'IRE sur le site de Fleurus: Retour d'expérience de l'autorité de sûreté belge. Radioprotection, 46 (2), 159–173 in French (2011).
- Vargas J.M., Guerra A., "Application of PENELOPE code to the efficiency calibration of coaxial germanium detectors", Applied Radiation and Isotopes 64, 64 (10-11), pp. 1319-1322 (2006).
- Vaughan N.P., "The Andersen Impactor: Calibration, Wall Losses and Numerical Simulation", J. Aerosol Sci., 20, pp. 67-90 (1988).
- Vidmar T., Korun M., Likar A., Martincic R., "A semi-empirical model of the efficiency curve for extended sources in gamma-ray spectrometry", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 470 (3), pp. 533-547 (2001).
- Vidmar T., "EFFTRAN- A Monte Carlo efficiency transfer code for gamma ray spectrometry", Nuclear Instruments and Methods A 550, 603-608 (2005).
- Vidmar T., Korun M., Vodenik Br., "A method for calculation of true coincidence summing correction factors for extended sources", Applied Radiation and Isotopes 65, 243-246 (2007).
- Viezee W., Singh H.B., "The distribution of the 7Be in the troposphere", Geophysics Res. Lett. 7 (10), 805-808, (1980).
- Wainio, K., Knoll, G., "Calculated gamma ray response characteristics o semiconductor detectors", Nuclear Instruments and Methods, 44 (2), pp. 213-223 (1966).

- Wang Z., Kahn B., Valentine J., "Efficiency calculation and coincidence summing correction or germanium detectors by Monte Carlo simulation", IEEE Transactions on Nuclear Science, 49 (4), pp. 1925-1931 (2002).
- Wang Z., Yang W., Chen M., Lin P., Qiu Y., "Intra-Annual Deposition of Atmospheric 210Pb, 210Po and the Residence Times of Aerosol in Xiamen, China", Aerosol and Air Quality Research, 14: 1402–1410, (2014).
- WHO (World Health Organization), Schwela D.H., Goldammer J.G., Morawska L.H., Simpson O., "Eds Health guidelines for vegetation fire events". Institute of Environmental Epidemiology, Ministry of Environment, Singapore (1999).
- Williams, J., de Reus, M., Krejci, R., Fischer, H., and Ström, J.: Application of the variability-size relationship to atmospheric aerosol studies: estimating aerosol lifetimes and ages, Atmos. Chem. Phys., 2, 133– 145, https://doi.org/10.5194/acp-2-133-2002, 2002.
- Winkler R., Dietl F., Frank G., Tschiersch, "Temporal Variation of 7Be and 210Pb size distributions in ambient aerosol", Atmospheric Environment Vol. 32, No6,pp.983-991 (1998).
- Winkler, R., Rosner, G., "Seasonal and long-term variation of 210Pb concentration in air, atmospheric deposition rate and total deposition velocity in south Germany", Sci. Total Environ. 263, 57-68 (2000).
- Wolfenbarger J. K., Seinfeld J.H., "Inversion of aerosol size distribution data", Journal of Aerosol Science, 21(2): 227–247 (1990).
- Wolfenbarger J. K., and Seinfeld J.H. "Estimating the variance in solutions to the aerosol data inversion problem". Aerosol Science and Technology, 14:348-357, (1991).
- Wotawa G., De Geer L.E., Becker A., D'Amours R., Jean M., Servranckx R., Ungar K., "Inter- and intracontinental transport of radioactive cesium released by boreal forest fires". Geophysical Research Letters 33: L12806 (2006).
- X-5 Monte Carlo Team, "MCNP—A general Monte Carlo N-Particle TransportCode, version 5 manual". Los Alamos National Laboratory (2003).
- Yoschenko V.I., Kashparov V.A., Protsak V.P., Lundin S.M., Levchuk S.E., Kadygrib A.M., Zvarich S.I., Khomutinin Yu V., Maloshtan I.M., Lanshin V.P., Kovtun M.V., Tschiersch J., "Resuspension and redistribution of radionuclides during grassland and forest fires in the Chernobyl exclusion zone: part I. Fire experiments", Journal of Environmental Radioactivity 86: 143-163 (2006).
- Young J.A., Silker W.B., "Aerosol deposition velocity on the Pacific and Atlantic oceans calculated from Be-7 measurements", Earth Planetary Science Letters 50, 92-104 (1980).
- Young H.C., Wanno L., Kun H. C., Geun S. C., Chang W. L., "Seasonal variation and activity size distribution of 7Be in ambient air", Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 274, No.3 (2007) 531– 538, Journal of Aerosol Science, Vol 103, pages 38-52 (2007).
- Yu, K., Lee, L., "Measurements o atmospheric 7Be properties using high-efficiency gamma spectroscopy", Applied Radiation and Isotopes, 57 (6), pp. 941-946 (2002).
- Yücel H., Cetiner M.A., Demirel H., "Use of the 1001 keV peak of 234.Pa daughter of 238U in measurement of uranium concentration by HPGe gamma-ray spectrometry", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 413: 74-82 (1998).
- Yücel H., Solmaz A.N., Köse E., Bor D., "A semi-empirical method for calculation of true coincidence corrections for the case of a close-in detection in γ-ray spectrometry", Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, DOI 10.1007/s10967-009-0360-8 (2009).

- Zhang Z., Engling G., Lin C.-Y., Chou C.C.-K., Lung S.-C.C., Chang S.-Y., Fan S., Chan C.-Y., Zhang Y.-H., "Chemical speciation, transport and contribution of biomass burning smoke to ambient aerosol in Guangzhou, a mega city of China", ATMOS ENVIRON, 44: 3187-3195 (2010).
- Zheng-Ming L., Brahme A., "An overview of the transport theory of charged particles", Radiation Physics and Chemistry, Vol. 41, Issues 4-5, pages 673-703, (1993).
- Αγραφιώτης Κ., "Βαθμονόμηση απόδοσης φορητού ανιχνευτή (in-situ) BEGe στην ενεργειακή περιοχή 59 -1596 keV, για γεωμετρία επιφανειακής πηγής ραδιενέργειας, με τη μέθοδο προσομοίωσης Monte-Carlo", Διπλωματική Εργασία, Τμήμα Μηχανολόγων Μηχανικών Ε.Μ.Π., Αθήνα (2010).
- Βασιλοπούλου Θ., "Προσδιορισμός Συντελεστών Διόρθωσης Απόδοσης Ανιχνευτή HPGe Λόγω Του Φαινομένου της Πραγματικής Σύμπτωσης μέσω Προσομοίωσης Monte Carlo", Διπλωματική Εργασία, Τμήμα Μηχανολόγων Μηχανικών Ε.Μ.Π., Αθήνα (2008).
- Βιβλιοθήκη ισοτόπων Radiation Decay v.3.6 έκδοση (2001).
- Καρφόπουλος Κ.Λ., "Μελέτη του φαινομένου της πραγματικής σύμπτωσης (True Coincidence) σε ημιαγωγούς ανιχνευτές Γερμανίου και υπολογισμός συντελεστών διόρθωσης", διπλωματική Εργασία, Τμήμα Μηχανολόγων Μηχανικών Ε.Μ.Π., Αθήνα (2003).
- Καρφόπουλος Κ. Λ., «Ανάπτυξη και εφαρμογή μετρητικών τεχνικών για την ανάλυση της φυσικής και της τεχνολογικά επαγόμενης ραδιενέργειας σε οικοσυστήματα», Διδακτορική Διατριβή, Τμήμα Μηχανολόγων Μηχανικών Ε.Μ.Π., Αθήνα (2012).
- Παπαδιονυσίου Μ.Ν., "Μελέτη της απόκρισης ανιχνευτή γερμανίου πειραματικά και με τεχνικές προσομοίωσης Monte Carlo", Διπλωματική Εργασία, Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο, Σχολή Μηχανολόγων Μηχανικών, Τομέας Πυρηνικής Τεχνολογίας (2015).
- Σάββα Μ.Ι., "Ανάπτυξη και εφαρμογή τεχνικών προσδιορισμού πολύ χαμηλών συγκεντρώσεων ραδιενεργών ιχνοστοιχείων σε δείγματα περιβαλλοντικής σημασίας", Διδακτορική διατριβή, Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο, σχολή Μηχανολόγων Μηχανικών, Τομέας Πυρηνικής Τεχνολογίας (2017).
- Χιώνης Δ., "Υπολογισμός συντελεστών διόρθωσης του φαινομένου πραγματικής σύμπτωσης με χρήση τεχνικών προσομοίωσης Monte-Carlo ", Διπλωματική Εργασία, Τμήμα Μηχανολόγων Μηχανικών Ε.Μ.Π., Αθήνα (2011).

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑΤΑ

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Α

Βαθμονόμηση δειγματολήπτη πρόσκρουσης υψηλού όγκου Andersen high volume series GS2310

Τα συστήματα συλλογής αερολύματος πρέπει να βαθμονομούνται σε τακτά χρονικά διαστήματα για την εξασφάλιση της ακρίβειας των μετρήσεων. Ιδανικά, τα συστήματα αυτά θα πρέπει να βαθμονομούνται σε συνθήκες όσο το δυνατόν πιο κοντά στις επικρατούσες συνθήκες λειτουργίας. Σε περίπτωση που κάτι τέτοιο δεν είναι εφικτό, υπάρχουν μοντέλα τα οποία μπορούν, χρησιμοποιώντας τα αποτελέσματα βαθμονόμησης που προκύπτουν εργαστηριακά, να προσομοιώσουν της πραγματικές συνθήκες λειτουργίας του δειγματολήπτη. Επιπλέον, ο χρήστης ενδέχεται να μην έχει στην διάθεσή του τα μέσα προκειμένου να πραγματοποιήσει τη βαθμονόμηση του δειγματολήπτη. Σε αυτή την περίπτωση η χρήση ενός καθορισμένου πρωτόκολλου δειγματοληψίας, ή η χρήση των δεδομένων βαθμονόμησης από βιβλιογραφικές πηγές για το συγκεκριμένο τύπο δειγματολήπτη μπορεί και να δεδομένα επαρκή, προκειμένου να διασφαλίσουν ότι η λειτουργία του θα είναι εντός των επιτρεπτών ορίων ακρίβειας (Kulkarni, Baron and Willeke, 2011). Σε κάθε περίπτωση πάντως είναι απαραίτητη η διεξαγωγή βαθμονόμησης της ροής λειτουργίας ενός δειγματολήπτη.

Η βαθμονόμηση του δειγματολήπτη που χρησιμοποιήθηκε στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. πραγματοποιήθηκε ακολουθώντας τα βήματα που περιγράφονται στο εγχειρίδιο χρήσης του δειγματολήπτη, χρησιμοποιώντας τον εξοπλισμό του σχήματος 3.6 που είναι διαθέσιμος στο Εργαστήριο Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος. Ο εξοπλισμός αυτός αποτελείται από μία σειρά από μεταλλικούς δίσκους που διαθέτουν κυκλικές οπές σταθερής διαμέτρου αλλά διαφορετικού πλήθους προκειμένου να προσομοιωθεί η κατάσταση του «φορτωμένου» με ΑΣ φίλτρου. Στη διαδικασία βαθμονόμησης χρησιμοποιήθηκε και ένα μανόμετρο τύπου U (σχήμα Π.Α.1).



Σχήμα Π.Α.1 Μανόμετρο τύπου U, Series 1211 Slack Tube (Dwyer Instruments International)

Ο δειγματολήπτης που χρησιμοποιήθηκε στην Δ.Δ. έχει μεγάλο εύρος λειτουργίας (από 1.10 μέχρι 1.70 m³/min δηλαδή από 39 ως 60 cfm) (Andersen instruments inc.1991) και διαθέτει αισθητήρα ροής ο οποίος αντιλαμβάνεται τυχόν ελάττωσή της ροής λόγω φόρτωσης του φίλτρου με ΑΣ, οπότε αυξάνει τάση τροφοδοσίας, προκειμένου να επιτευχθεί δειγματοληψία υπό σταθερή ροή αέρα. Η σταθερή παροχή αέρα είναι απαραίτητη προϋπόθεση, όταν χρησιμοποιείται cascade impactor.

Ακολουθεί περιγραφή των βημάτων που ακολουθήθηκαν για τη βαθμονόμηση του δειγματολήπτη και εν συνεχεία θα παρουσιασθούν τα πειραματικά δεδομένα που ελήφθησαν και τα αποτελέσματα της βαθμονόμησης.

<u>Βήματα βαθμονόμησης του δειγματολήπτη GS2310</u>

<u>Βήμα πρώτο:</u> Αποσύνδεση του κινητήρα του δειγματολήπτη από τον ρυθμιστή της ροής και σύνδεσή του σε σταθερή πηγή εναλλασσόμενου ρεύματος (AC power source).

<u>Βήμα δεύτερο:</u> Τοποθετείται στο δειγματολήπτη (στη θέση που κανονικά τοποθετούνται τα προς δειγματοληψία φίλτρα) η μεγάλη μαύρη βάση του εξοπλισμού βαθμονόμησης (σχήμα 3.6(α)), και ασφαλίζεται για αποφυγή διαρροής αέρα. Πάνω στη βάση προσαρμόζεται το κυλινδρικού σχήματος ακροφύσιο το οποίο φαίνεται στο σχήμα 3.6(β). Συνήθως στην διαδικασία αυτή δεν χρησιμοποιείται φίλτρο δειγματοληψίας. Προσαρμόζεται στην υποδοχή της ο κύλινδρος.

<u>Βήμα τρίτο:</u> Τίθεται σε λειτουργία ο κινητήρας του δειγματολήπτη και αφήνεται για λίγο χρόνο προκειμένου να «ζεσταθεί» και να προσεγγίσει την θερμοκρασία στην οποία συνήθως λειτουργεί. <u>Βήμα τέταρτο:</u> Πραγματοποιείται το λεγόμενο «τεστ διαρροής». Αυτό γίνεται τοποθετώντας καλύπτοντας με το χέρι το ακροφύσιο της βάσης δειγματοληψίας προκειμένου να εμποδίζεται η εισροή αέρα. Στη συνέχεια δίνεται προσοχή προκειμένου να εντοπισθούν ήχοι που να υποδεικνύουν διαφυγή αέρα (σε αυτή τη περίπτωση υπάρχει κάποια διαρροή στο σύστημα, οπότε και θα πρέπει να ασφαλίσει καλύτερα η βάση στον δειγματολήπτη). Σε κάθε περίπτωση, το ακροφύσιο του δειγματολήπτη δεν θα πρέπει να μένει παραπάνω από 30 δευτερόλεπτα μπλοκαρισμένο, ώστε να αποφευχθεί το ενδεχόμενο υπερθέρμανσης του κινητήρα. Το τεστ διαρροής δεν θα πρέπει να πραγματοποιείται με το μανόμετρο συνδεδεμένο στο ακροφύσιο βαθμονόμησης ή στον κινητήρα του δειγματολήπτη, καθώς ενδέχεται υγρό από το μανόμετρο να εισέλθει στον δειγματολήπτη και να προκαλέσει βλάβη στον κινητήρα.

<u>Βήμα πέμπτο:</u> Συνδέεται το μανομέτρο (σχήμα Ι.1) μέσω ελαστικού σωλήνα αντίστοιχης διαμέτρου με την ειδική υποδοχή του ακροφυσίου. Το μανόμετρο θα πρέπει να συνδεθεί από τη μία του πλευρά, ενώ η άλλη είναι ελεύθερη στην ατμόσφαιρα.

<u>Βήμα έκτο:</u> Ξεκινάει η εισαγωγή κάτω από το ακροφύσιο διαδοχικά των δίσκων (σχήμα 3.6(γ)). Καταγράφεται με ακρίβεια η ένδειξη του μανομέτρου που είναι συνδεδεμένο στο ακροφύσιο και παράλληλα οι ενδείξεις του ενσωματωμένου στον δειγματολήπτη μανομέτρου. Η διαδικασία αυτή επαναλαμβάνεται για όλους τους δίσκους του εξοπλισμού βαθμονόμησης του δειγματολήπτη.

<u>Βήμα έβδομο:</u> Καταγραφοντα με προσοχή: η θερμοκρασία περιβάλλοντος και η ατμοσφαιρική βαρομετρική πίεση, οι σειριακοί αριθμοί του δειγματολήπτη, του ακροφυσίου, οι πληροφορίες βαθμονόμησης και πιστοποίησης του μανομέτρου που χρησιμοποιήθηκε, η ημερομηνία που πραγματοποιήθηκε η βαθμονόμηση του δειγματολήπτη και η τοποθεσία.

<u>Βήμα όγδοο:</u> Αποσύνδεση του κινητήρα του δειγματολήπτη από την πηγή ενέργειας, αφαίρεση του ακροφυσίου από τον δειγματολήπτη, και επαναφορά του σε κατάσταση ετοιμότητας για δειγματοληψία.

Για τους υπολογισμούς των μεγεθών που απαιτούνται για την ολοκλήρωση της βαθμονόμησης θα χρησιμοποιηθούν οι παρακάτω σχέσεις:

 Για την ανάγνωση των ενδείξεων του μανομέτρου θα πρέπει να μετατραπεί η ροή σε πρότυπες συνθήκες με χρήση της σχέσης:

$$Q_{std} = \frac{\sqrt{\left(H_2 O \cdot \frac{P_a \cdot 298}{760 \cdot T_a}\right) - b}}{m}$$
(Σχέση Π.Α.1)

όπου:

 Q_{std} : η ροή όπως προκύπτει από το ακροφύσιο βαθμονόμησης σε [m³/min]

 H_2O : η ένδειξη του μανομέτρου κατά την διαδικασία βαθμονόμησης σε [in. H_2O]

T_a : η ατμοσφαιρική θερμοκρασία κατά την βαθμονόμηση σε [K]

298: πρότυπη θερμοκρασία, μία σταθερά η οποία μένει αμετάβλητη [K]

760: πρότυπη βαρομετρική πίεση, μία σταθερά η οποία μένει αμετάβλητη [mm Hg]

- Μ : η κλίση της σχέσης βαθμονόμησης της ροής του ακροφυσίου
- Β : ο συντελεστής ανακοπής της σχέσης βαθμονόμησης της ροής του ακροφυσίου

Η σχέση Ι.1 θα χρησιμοποιηθεί για κάθε μία από τις διαφορετικές ενδείξεις που θα έχουν προκύψει με χρήση των διάτρητων δίσκων του εξοπλισμού βαθμονόμησης.

2. Οι ενδείξεις του μετρητή ροής που προκύπτουν κατά τη διαδικασία βαθμονόμησης πρέπει να διορθωθούν με βάση της επικρατούσες περιβαλλοντικές συνθήκες με χρήση της ακόλουθης σχέσης:

$$IC = I_{\sqrt{\left(\frac{P_a}{760}\frac{298}{T_a}\right)}}$$
 (Σχέση Π.Α.2)

όπου:

IC : οι ενδείξεις του μετρητή της ροής διορθωμένες στις επικρατούσες συνθήκες θερμοκρασίας και πίεσης

- Ι : οι ενδείξεις του μετρητή της ροής κατά την διαδικασία της βαθμονόμησης
- 3. Στην περίπτωση που χρησιμοποιείται μανόμετρο (όπως έγινε στη συγκεκριμένη περίπτωση) τότε θα πρέπει να χρησιμοποιηθεί η σχέση:

FLOW_(corrected) =
$$\sqrt{\left(H_2 O \frac{P_a}{760} \frac{298}{T_a}\right)}$$
 (Σχέση Π.Α.3)

όπου:

FLOW_{(corrected}): οι ενδείξεις του μανομέτρου διορθωμένες στις επικρατούσες συνθήκες θερμοκρασίας και πίεσης

Χρησιμοποιώντας τα αποτελέσματα των παραπάνω σχέσεων προκύπτει σχετικό γράφημα, από το οποίο μπορεί να προσδιορισθεί η κλίση της συσχέτισης, ο συντελεστής ανακοπής, και ο συντελεστής συσχέτισης με χρήση της μεθόδου των ελαχίστων τετραγώνων.

Ο συντελεστής συσχέτισης ΔΕΝ θα πρέπει να είναι μικρότερος από 0.990. Σε αντίθετη περίπτωση η βαθμονόμηση θα πρέπει να πραγματοποιηθεί εκ νέου. Ο βασικότερος λόγος για να συμβαίνει κάτι τέτοιο είναι το να υπάρχει διαρροή αέρα η οποία δεν ανιχνεύθηκε στο τέταρτο βήμα της βαθμονόμησης. Επίσης, είναι απαραίτητο τουλάχιστον 3 από τις 5 τιμές του Q_{std} όπως θα προκύψουν από την σχέση Ι.1 να είναι εντός του εύρους 1.10 - 1.70 m³/min (39 - 60 cfm) που είναι η αποδεκτή ροή στην οποία μπορεί να λειτουργήσει ο εν λόγω δειγματολήπτης.

Η κλίση της σχέσης βαθμονόμησης m δίνεται από την ακόλουθη σχέση:

$$m = \frac{\sum xy - \frac{(\sum x)(\sum y)}{n}}{\sum x^2 - \frac{(\sum x)^2}{n}}$$
 (Σχέση Π.Α.4)

Και ο σταθερός όρος της συνάρτησης βαθμονόμησης από τη σχέση:

$$b = \bar{y} - m\bar{x}$$
 (Σχέση Π.Α.5)

Τέλος, ο συντελεστής γραμμικής συσχέτισης δίνεται από τη σχέση που ακολουθεί:

$$r = \frac{\sum xy - \frac{\sum x' \sum y}{n}}{\sqrt{(\sum x^2 - \frac{(\sum x)^2}{n})(\sum y^2 - \frac{(\sum y)^2}{n})}}$$
(Σχέση Π.Α.6)

Από το γράφημα που προκύπτει, από τις ενδείξεις Q_{std} και FLOW_(corrected) ανάλογα με την επιθυμητή ροή λειτουργίας μπορεί να ρυθμίζεται ο δειγματολήπτης προκειμένου η αντλία του να λειτουργεί στο επιθυμητό σημείο λειτουργίας.

Στο τέλος του παραρτήματος παρατίθεται τυποποιημένο πρωτόκολλο βαθμονόμησης (Andersen instruments inc.)

Στη συνέχεια παρατίθενται τα αποτελέσματα δύο βαθμονομήσεων που έγιναν στα πλαίσια της ΔΔ, μία τυπική βαθμονόμηση και μία βαθμονόμηση μετά από επισκευή της διάταξης δειγματοληψίας.

Πειραματική βαθμονόμησης του δειγματολήπτη πρόσκρουσης υψηλού όγκου Andersen high volume series GS2310

Ακολουθώντας την διαδικασία που περιγράφηκε ανωτέρω, προκύπτει ο ακόλουθος πίνακας μετρήσεων ο οποίος προέκυψε από τη διαδικασία βαθμονόμησης.

Pa [mm Hg]	Ta [K]
743	297

Qstd [m³/min]	FLOW(corrected)	m	b	r
1.652	3.053	1 7/7	0.241	0.003
1.435	2.836	1.747	0.241	0.995
1.175	2.323			
0.868	1.715			

Πίνακας Π.Α.1 Αποτελέσματα βαθμονόμησης δειγματολήπτη



Σχήμα Π.Α.2 Πειραματικά σημεία βαθμονόμησης του δειγματολήπτη

Όπως φαίνεται, ο συντελεστής συσχέτισης δεν είναι χαμηλότερος από 0.990. Επίσης, τουλάχιστον 3 τιμές του Q_{std} είναι εντός του εύρους 1.10 με 1.70 m³/min (39 με 60 cfm). Οπότε η βαθμονόμηση θεωρείται αποδεκτή.

Πειραματική βαθμονόμησης του δειγματολήπτη πρόσκρουσης υψηλού όγκου Andersen high volume series GS2310 μετά από αλλαγή της αντλίας του

Ακολουθώντας την διαδικασία που περιγράφηκε ανωτέρω, προκύπτει ο ακόλουθος πίνακας μετρήσεων ο οποίος προέκυψε από διαδικασία βαθμονόμησης, η οποία ακολούθησε μετά από αλλαγή της αντλίας του δειγματολήπτη.

Pa [mm Hg]	Ta [K]
736.336	288.000

Qstd [m³/min]	FLOW(corrected)	m	b	r
1.319	2.327	1 /20	0.531	0.002
1.698	2.970	1.429	0.001	0.332
1.375	2.553			
0.850	1.763			

Πίνακας Π.Α.2 Αποτελέσματα βαθμονόμησης δειγματολήπτη



Σχήμα Π.Α.3 Πειραματικά σημεία βαθμονόμησης του δειγματολήπτη

Όπως φαίνεται, ο συντελεστής συσχέτισης δεν είναι χαμηλότερος από 0.990. Επίσης, τουλάχιστον 3 τιμές του Q_{std} είναι εντός του εύρους 1.10 - 1.70 m³/min (39 - 60 cfm), οπότε **η βαθμονόμηση θεωρείται αποδεκτή**.

	(Dickso	Sampler Calib n Recorder)	pration	
		SITE		
Location - >			Date - >	
Sampler - >			Tech ->	
	CON	DITIONS		
Sampler Elevation (feet))		0	(
Sea Level Pressure (in H	(g)		Temperature	(deg K)
Seasonal SL Pressure (in	(Hg)		Corrected Seas	onal (mm Hg)
Seasonal Temperature (d	leg F)		Seasonal Temp	erature (deg K)
	CALIBRA	TION ORIFI	CE	
Make ->			Qstd Slope ->	
Model ->		(std Intercept - >	
Serial # - >		I	Date Certifier ->	
	CALI	BRATION		
Plate or H ₂ O	Qstd	1	IC	LINEAR
lest = (in)	(m ⁻ /min)	(chart)	(corrected)	REGRESSION
1				Slope =
2				Intercept =
5				Corr. Coeff.
5				
C · · · ·		51		
Calculations	2 PSTALL STALL 3 11 - 1			
Calculations Qstd = 1/m[Sqrt (H2O (P IC = 1 [Sqrt (Pa Pstd) (Ts	ra Psta) (1sta/1a)) - (std/Ta)]			
Calculations Qstd = 1/m[Sqrt (H2O (P IC = I [Sqrt (Pa Pstd) (Ts	std/Ta)]			
Calculations Qstd = 1/m[Sqrt (H2O (P IC = I [Sqrt (Pa Pstd) (Ts Qstd = standard flow rate	std/Ta)]			
Calculations Qstd = 1/m[Sqrt (H2O (P IC = 1 [Sqrt (Pa Pstd) (Ts Qstd = standard flow rate IC = corrected chart response	a Psto) (Tsto/Ta)) - (std/Ta)] e onse			
Calculations Qstd = 1/m[Sqrt (H2O (P IC = 1 [Sqrt (Pa Pstd) (Ts Qstd = standard flow rate IC = corrected chart response I = actual chart response m = calibrator Qstd slope	e onse			
Calculations Qstd = 1/m[Sqrt (H2O (P IC = 1 [Sqrt (Pa Pstd) (Ts Qstd = standard flow rate IC = corrected chart response m = calibrator Qstd slope b = calibrator Qstd interc	e std Ta)] e onse e rept			
Calculations Qstd = 1/m[Sqrt (H2O (P IC = 1 [Sqrt (Pa Pstd) (Ts Qstd = standard flow rate IC = corrected chart response m = calibrator Qstd slope b = calibrator Qstd intere Ta = actual temperature do	e std Ta)] e onse e ept during calibration (de	eg K)		
Calculations Qstd = 1/m[Sqrt (H2O (P IC = 1 [Sqrt (Pa Pstd) (Ts Qstd = standard flow rate IC = corrected chart response m = calibrator Qstd slope b = calibrator Qstd interc Ia = actual temperature of Pa = actual pressure durin Est = 298 dee K	e std Ta)] e onse e tept during calibration (de ng calibration (mm F	eg K) Ig)		
Calculations Qstd = 1/m[Sqrt (H2O (P IC = 1 [Sqrt (Pa Pstd) (Ts Qstd = standard flow rate IC = corrected chart response m = calibrator Qstd slope b = calibrator Qstd interco Ta = actual temperature of Pa = actual pressure durit Tstd = 298 deg K Pstd = 760 mm Hg	e e onse e e e tept during calibration (de ng calibration (mm F	eg K) Ig)		
Calculations Qstd = 1/m[Sqrt (H2O (P IC = 1 [Sqrt (Pa Pstd) (Ts Qstd = standard flow rate IC = corrected chart response m = calibrator Qstd slope b = calibrator Qstd interc Ta = actual temperature of Pa = actual pressure durin Tstd = 298 deg K Pstd = 760 mm Hg For subsequent calculation	e std Ta)] e onse e tept during calibration (de ng calibration (mm H on of sampler flow:	eg K) Ig)		
Calculations Qstd = 1/m[Sqrt (H2O (P IC = 1 [Sqrt (Pa Pstd) (Ts Qstd = standard flow rate IC = corrected chart response m = calibrator Qstd slope b = calibrator Qstd interc Ta = actual temperature of Pa = actual pressure durin Tstd = 298 deg K Pstd = 760 mm Hg For subsequent calculation L/m ((1) [Sqrt (298 Tav)	e e onse e tept during calibration (de ng calibration (mm F on of sampler flow:) (Pav/760)] - b	eg K) Ig)		
Calculations Qstd = 1/m[Sqrt (H2O (P IC = 1 [Sqrt (Pa Pstd) (Ts Qstd = standard flow rate IC = corrected chart response m = calibrator Qstd slope b = calibrator Qstd interco Ta = actual temperature of Pa = actual pressure durin Tstd = 298 deg K Pstd = 760 mm Hg For subsequent calculation 1/m ((1) [Sqrt (298 Tav) m = sampler slope	e e onse during calibration (de ng calibration (mm F on of sampler flow:) (Pav/760)] - b	eg K) Ig)		
Calculations Qstd = 1/m[Sqrt (H2O (P C = 1 [Sqrt (Pa Pstd) (Ts Qstd = standard flow rate C = corrected chart response m = calibrator Qstd slope b = calibrator Qstd interc Fa = actual temperature of Pa = actual pressure durin fstd = 298 deg K Pstd = 760 mm Hg For subsequent calculation Um ((1) [Sqrt (298 Tav) m = sampler slope b = sampler intercept	e e onse e e during calibration (de ng calibration (mm F on of sampler flow:) (Pav/760)] - b	eg K) Ig)		
Calculations Qstd = 1/m[Sqrt (H2O (P IC = 1 [Sqrt (Pa Pstd) (Ts Qstd = standard flow rate IC = corrected chart response m = calibrator Qstd slope b = calibrator Qstd interc Ta = actual pressure during Tstd = 298 deg K Pstd = 760 mm Hg For subsequent calculation 1/m ((1) [Sqrt (298/Tav)) m = sampler slope b = sampler intercept I = actual response Tave = daily response	e e onse e e e tept during calibration (de ng calibration (mm F on of sampler flow:) (Pav:760)] - b	eg K) Ig)		

Σχήμα Π.Α.3 Πρωτόκολλο βαθμονόμησης δειγματολήπτη Andersen

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Β

Σχήμα Π.Β.1: Τυπικό αρχείο .in του κώδικα PENELOPE 2011

TITLE Response of detector Ge-90dim to 106Cd whitecup geometry. 1 2 3 4 SKPAR 2 [Primary particles: 1=electron, 2=photon, 3=positron] 5 SENERG 880.30e2 [Initial energy (monoenergetic sources only)] 6 SPOSIT 0.0 0.0 7.3 [Coordinates of the source] 7 SBOX 6.5 5.4 0.2 [Source box dimensions] 8 SBODY 7 [Active source body; one line for each body] 9 SBODY 8 [Active source body; one line for each body] 10 SBODY 9 [Active source body; one line for each body] 11 SBODY 10 [Active source body; one line for each body] 12 SBODY 11 [Active source body; one line for each body] 13 SPYRAM 0 180 0 360 [Rectangular beam; angles in deg] 14 >>>>>> Material data and simulation parameters. 15 16 MFNAME Ge.mat [Material file, up to 20 chars] [EABS(1:3),C1,C2,WCC,WCR] 17 MSIMPA 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 18 MFNAME Al.mat [Material file, up to 20 chars] MSIMPA 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 [EABS(1:3),C1,C2,WCC,WCR] 19 20 MFNAME Plexiglass.mat [Material file, up to 20 chars] MSIMPA 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 [EABS(1:3),C1,C2,WCC,WCR] 21 22 MFNAME cel.mat [Material file, up to 20 chars] 23 MSIMPA 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 [EABS(1:3),C1,C2,WCC,WCR] 24 MENAME Air.mat [Material file, up to 20 chars] 25 MSIMPA 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 [EABS(1:3),C1,C2,WCC,WCR] 26 MFNAME Cu.mat [Material file, up to 20 chars] 27 MSIMPA 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 [EABS(1:3),C1,C2,WCC,WCR] 28 MFNAME Sn.mat [Material file, up to 20 chars] 29 MSIMPA 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 [EABS(1:3),C1,C2,WCC,WCR] 30 MFNAME Pb.mat [Material file, up to 20 chars] 31 MSIMPA 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 [EABS(1:3),C1,C2,WCC,WCR] 32 33 34 GEOMFN detector.geo [Geometry file, up to 20 chars] 35 36 >>>>>> Emerging particles. Energy and angular distributions. 37 NBE 1.0e3 900.66e2 100 [Energy window and no. of bins] 38 NBANGL 45 18 [No. of bins for the angles THETA and PHI] 39 40 >>>>>> Energy deposition detectors (up to 25). 41 ENDETC 1.0e3 900.66e2 1000 [Energy window and number of bins] 42 EDBODY 1 [Active body; one line for each body] 43 EDBODY 2 [Active body; one line for each body] 44 45 46 RESUME dump.dmp [Resume from this dump file, 20 chars] 47 DUMPTO dump.dmp [Generate this dump file, 20 chars] 48 DUMPP 600 [Dumping period, in sec] 49 50 NSIMSH 2e9 [Desired number of simulated showers] 51 TIME 2e9 [Allotted simulation time, in sec] 52 53 END [Ends the reading of input data]

Σχήμα Π.Β.2: Τυπικό αρχείο .geo του κώδικα PENELOPE 2011

```
1
    Ge-30% skrats demokritos.
3
  SURFACE ( 1) Plane Z=+16.8
  INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
4
5 Z-SCALE=( 16.8000000000000E+00,
                       0)
  6
7
  SURFACE ( 2) Plane Z=+16.18
8
  INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
9
  Z-SCALE=( 16.18000000000000E+00,
                       0)
SURFACE ( 3) Cylinder R=2.85
11
  INDICES=( 1, 1, 0, 0,-1)
12
13
  X-SCALE=( 2.850000000000000E+00.
                        01
14
  Y-SCALE=( 2.850000000000000E+00,
                       0)
  15
16
  SURFACE ( 4) Plane Z=+11.18
  INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
17
18 Z-SCALE=( 11.1800000000000E+00,
                       0)
19
  SURFACE ( 5) Cylinder R=0.95
INDICES=(1, 1, 0, 0, -1)
20
21
22 X-SCALE=( 0.95000000000000E+00,
                        0)
23
  Y-SCALE=( 0.950000000000000E+00,
                       0)
24
  25
  SURFACE ( 6) Plane Z=+16.705
26 INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
27
  Z-SCALE=( 16.7050000000000E+00,
                       0)
28
  29
  SURFACE ( 7) Cylinder R=2.755
30 INDICES=( 1, 1, 0, 0, -1)
31 X-SCALE=( 2.75500000000000E+00,
                        0)
  Y-SCALE=( 2.755000000000000E+00,
32
                       0)
  33
34 SURFACE ( 8) Plane Z=+17.1
35 INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
  Z-SCALE=( 17.1000000000000E+00,
36
                       0)
37
  38
  SURFACE ( 9) Plane Z=+17.2
39 INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
  Z-SCALE=( 17.2000000000000E+00,
40
                       0)
41
  42
  SURFACE ( 10) Cylinder R=4.00
43
  INDICES=( 1, 1, 0, 0,-1)
  44
                        0)
45
  0)
  46
  SURFACE ( 11) Plane Z=+3.5
47
  INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
48
49
  Z-SCALE=( 3.50000000000000E+00,
                       0)
  50
  SURFACE ( 12) Cylinder R=3.15
51
  INDICES=( 1, 1, 0, 0,-1)
52
53
  X-SCALE=( 3.15000000000000E+00,
                        0)
54 Y-SCALE=( 3.15000000000000E+00,
                        01
```

```
56 SURFACE ( 13) Cylinder R=3.9
57 INDICES=( 1, 1, 0, 0,-1)
58 X-SCALE=( 3.90000000000000E+00,
                       0)
59 Y-SCALE=( 3.90000000000000E+00,
                       0)
61 SURFACE ( 14) Plane Z=-5.5
62 INDICES=( 0, 0, 0, 1, 1)
63 Z-SCALE=( 5.5000000000000E+00,
                       0)
65 SURFACE ( 15) Cylinder R=4.25
66 INDICES=( 1, 1, 0, 0,-1)
67 X-SCALE=( 4.25000000000000E+00,
                       0)
68 Y-SCALE=( 4.25000000000000E+00,
                       0)
70 SURFACE (16) Cylinder R=4.15
71 INDICES=( 1, 1, 0, 0,-1)
72 X-SCALE=( 4.1500000000000E+00,
                       0)
73 Y-SCALE=( 4.15000000000000E+00,
                       0)
74
  75
  SURFACE ( 17) Plane Z=+16.8
76 INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
77 Z-SCALE=( 16.8000000000000E+00,
                       01
  78
  SURFACE ( 18) Plane Z=+17.31
79
80 INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
81 Z-SCALE=( 17.3100000000000E+00,
                       0)
SURFACE ( 19) Cylinder R=3.5
83
84 INDICES=( 1, 1, 0, 0,-1)
85 X-SCALE=( 3.50000000000000E+00,
                       0)
86 Y-SCALE=( 3.50000000000000E+00,
                       0)
  87
88
  SURFACE ( 20) Plane Z=+19.2
89 INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
  Z-SCALE=( 19.20000000000000E+00,
90
                       0)
  91
  SURFACE ( 21) Plane Z=0.0
92
  INDICES=( 0, 0, 0, 1, 1)
93
94
  Z-SCALE=( 0.00000000000001E+00,
                       01
95
  96
  SURFACE ( 22) Cylinder R=10.00
97
  INDICES=( 1, 1, 0, 0,-1)
98
  0)
99
  Y-SCALE=( 10.00000000000000E+00,
                       0)
00
  .01
  SURFACE ( 23) Plane Z=+49.0
02
  INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
03
  Z-SCALE=( 49.00000000000000E+00,
                       0)
  04
05
  SURFACE ( 24) Cylinder R=10.50
06
  INDICES=( 1, 1, 0, 0,-1)
07
  X-SCALE=( 10.5000000000000E+00,
                       01
.08 Y-SCALE=( 10.5000000000000E+00, 0)
```

```
110 SURFACE ( 25) Cylinder R=10.60
111 INDICES=( 1, 1, 0, 0, -1)
112 X-SCALE=( 10.6000000000000E+00,
                       0)
113 Y-SCALE=( 10.6000000000000E+00,
                       0)
115 SURFACE ( 26) Cylinder R=10.80
116 INDICES=( 1, 1, 0, 0, -1)
117 X-SCALE=( 10.8000000000000E+00,
                       0)
118 Y-SCALE=( 10.8000000000000E+00,
                       0)
120 SURFACE ( 27)
            Plane Z=-0.2
121 INDICES=( 0, 0, 0, 1, 1)
122 Z-SCALE=( 0.20000000000000E+00,
                       0)
124 SURFACE ( 28) Cylinder R=10.25
125 INDICES=( 1, 1, 0, 0,-1)
126 X-SCALE=( 10.2500000000000E+00,
                       0)
127 Y-SCALE=( 10.2500000000000E+00,
                       0)
129 SURFACE ( 29) Plane Z=-0.3
130 INDICES=( 0, 0, 0, 1, 1)
131 Z-SCALE=( 0.30000000000000E+00,
                       0)
133 SURFACE ( 30) Plane Z=+49.1
134 INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
135 Z-SCALE=( 49.1000000000000E+00,
                       0)
137 SURFACE ( 31) Cylinder R=20.75
138 INDICES=( 1, 1, 0, 0, -1)
139 X-SCALE=( 20.7500000000000E+00,
                       0)
140 Y-SCALE=( 20.7500000000000E+00,
                       0)
142 SURFACE ( 32)
            Plane Z=+49.3
143 INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
144 Z-SCALE=( 49.3000000000000E+00,
                       0)
146 SURFACE ( 33)
            Plane Z=+59.0
147 INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
148 Z-SCALE=( 59.0000000000000E+00,
                       01
150 SURFACE ( 34)
            Plane Z=-4.6
151 INDICES=( 0, 0, 0, 1, 1)
152 Z-SCALE=( 4.60000000000000E+00,
                       01
154 SURFACE ( 35) Cylinder R=3.405
155 INDICES=( 1, 1, 0, 0,-1)
156 X-SCALE=( 3.40500000000000E+00,
                       01
157 Y-SCALE=( 3.40500000000000E+00,
                       0)
158
   159
   SURFACE ( 36) Plane Z=+19.05
160 INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
161
   Z-SCALE=( 19.05000000000000E+00,
                       0)
```

```
163 SURFACE ( 37) Plane Z=+19.34
164 INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
165 Z-SCALE=( 19.3400000000000E+00,
                          0)
SURFACE ( 38) Plane Z=+17.4
167
168 INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
169 Z-SCALE=( 17.4000000000000E+00,
                         0)
171 SURFACE ( 39) Cylinder R=4.3
172 INDICES=( 1, 1, 0, 0,-1)
173 X-SCALE=( 4.30000000000000E+00,
                         0)
174 Y-SCALE=( 4.30000000000000E+00,
                         0)
176 SURFACE ( 40) Plane Z=+18.7
177 INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
178 Z-SCALE=( 18.7000000000000E+00,
                         0)
180 SURFACE ( 41) Cylinder R=4.2
181 INDICES=( 1, 1, 0, 0,-1)
182 X-SCALE=( 4.20000000000000E+00,
                         0)
183 Y-SCALE=( 4.20000000000000E+00,
                         0)
185 SURFACE ( 42) Plane Z=+17.7
186 INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
187
   Z-SCALE=( 17.7000000000000E+00,
                         0)
189 SURFACE ( 43) Plane Z=+18.9
190 INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
191 Z-SCALE=( 18.9000000000000E+00,
                         0)
193
   SURFACE ( 44) Cylinder R=4.6
194 INDICES=( 1, 1, 0, 0,-1)
195 X-SCALE=( 4.60000000000000E+00,
                          0)
196 Y-SCALE=( 4.60000000000000E+00,
                          0)
197
   198
   SURFACE ( 45) Cylinder R=4.55
199 INDICES=( 1, 1, 0, 0,-1)
200
   X-SCALE=( 4.55000000000000000000,
                          0)
201
   Y-SCALE=( 4.550000000000000E+00,
                          0)
202
   203
   SURFACE ( 46) Plane Z=+18.1
204
   INDICES=( 0, 0, 0, 1,-1)
                         0)
205
   Z-SCALE=( 18.1000000000000E+00,
206
   207
   BODY ( 1) Detector 1
208
   MATERIAL (
           1)
   SURFACE ( 2), SIDE POINTER=(+1)
209
210
   SURFACE (
          6), SIDE POINTER=(-1)
211
   SURFACE (
           SIDE POINTER=(-1)
212
   213
   BODY ( 2) Detector 2
214
   MATERIAL (
           1)

        215
        SURFACE (
        4), SIDE POINTER=(+1)

        216
        SURFACE (
        2), SIDE POINTER=(-1)
```

```
217 SURFACE ( 7), SIDE POINTER=(-1)
218 SURFACE (
          SIDE POINTER=(+1)
220 BODY
        (3)
               Dead layer 1
221 MATERIAL (
           1)
          1), SIDE POINTER=(-1)
222
   SURFACE (
   SURFACE (
           6), SIDE POINTER=(+1)
223
   SURFACE (

 SIDE POINTER=(-1)

224
225
   226 BODY
       (4)
               Dead layer 2
227
   MATERIAL (
           1)
           6), SIDE POINTER=(-1)
228
   SURFACE (
229
   SURFACE (
           4), SIDE POINTER=(+1)
   SURFACE (
230
           3), SIDE POINTER=(-1)
231
   SURFACE (
           7), SIDE POINTER=(+1)
232
   233
   BODY
        (5)
               Window
234
   MATERIAL ( 2)
235
   SURFACE ( 8), SIDE POINTER=(+1)
236
   SURFACE (
          9), SIDE POINTER=(-1)
237
   SURFACE ( 10), SIDE POINTER=(-1)
BODY
239
              Cryostat wall 1
        (6)
240 MATERIAL ( 2)
241 SURFACE ( 9), SIDE POINTER=(-1)
242 SURFACE ( 11), SIDE POINTER=(+1)
243 SURFACE ( 13), SIDE POINTER=(+1)
244 SURFACE ( 10), SIDE POINTER=(-1)
246 BODY
        (7)
              Cryostat wall 2
247 MATERIAL (
          2)
248 SURFACE ( 11), SIDE POINTER=(-1)
249 SURFACE ( 14), SIDE POINTER=(+1)
250 SURFACE ( 16), SIDE POINTER=(+1)
251 SURFACE ( 15), SIDE POINTER=(-1)
253 BODY
        (8)
               Source
254 MATERIAL (
          4)
255 SURFACE ( 38), SIDE POINTER=(+1)
256 SURFACE ( 42), SIDE POINTER=(-1)
257 SURFACE ( 19), SIDE POINTER=(-1)
259 BODY
        (9)
               White Cup 1
260 MATERIAL (
           3)
261 SURFACE (
          9), SIDE POINTER=(+1)
262 SURFACE ( 38), SIDE POINTER=(-1)
263 SURFACE ( 39), SIDE POINTER=(-1)
265 BODY
        ( 10)
              White Cup 2
266 MATERIAL (
           3)
   SURFACE ( 38), SIDE POINTER=(+1)
267
268
   SURFACE (
          40), SIDE POINTER=(-1)
   SURFACE ( 39), SIDE POINTER=(-1)
269
270 SURFACE ( 41), SIDE POINTER=(+1)
```

```
272 BODY
       ( 11)
               White Cup lid 1
273 MATERIAL (
           3)
   SURFACE ( 43), SIDE POINTER=(-1)
274
275
   SURFACE ( 40), SIDE POINTER=(+1)
276 SURFACE ( 44), SIDE POINTER=(-1)
278 BODY
        ( 12)
              White Cup lid 2
279 MATERIAL (
           3)
   SURFACE ( 46), SIDE POINTER=(+1)
280
281
   SURFACE ( 43), SIDE POINTER=(-1)
282 SURFACE ( 44), SIDE POINTER=(-1)
283 SURFACE ( 45), SIDE POINTER=(+1)
285 BODY
        ( 13)
              White Cup lid 3
286
   MATERIAL (
           3)
   SURFACE ( 40), SIDE POINTER=(+1)
287
288 SURFACE ( 43), SIDE POINTER=(-1)
289 SURFACE ( 45), SIDE POINTER=(-1)
291 BODY ( 14) Internal of shielding 1
   MATERIAL ( 5)
292
293
   SURFACE ( 11), SIDE POINTER=(+1)
294 SURFACE ( 9), SIDE POINTER=(-1)
295 SURFACE ( 10), SIDE POINTER=(+1)
296 SURFACE ( 22), SIDE POINTER=(-1)
297
   298
   MODULE ( 15)
              Internal of shielding 2
299 MATERIAL ( 5)
300 SURFACE ( 9), SIDE POINTER=(+1)
301
   SURFACE ( 23), SIDE POINTER=(-1)
302 SURFACE ( 22), SIDE POINTER=(-1)
303 BODY
           8)
         (
304
           9)
   BODY
         (
305
   BODY
        ( 10)
306 BODY
        ( 11)
307 BODY
        ( 12)
308 BODY
         ( 13)
310 BODY ( 16) Internal of shielding 3
311
   MATERIAL (
           5)
312 SURFACE ( 21), SIDE POINTER=(+1)
313 SURFACE ( 11), SIDE POINTER=(-1)
314 SURFACE ( 15), SIDE POINTER=(+1)
315 SURFACE ( 22), SIDE POINTER=(-1)
316
   317
   BODY ( 17) Plexyglass leaf
318 MATERIAL ( 3)
319 SURFACE ( 21), SIDE POINTER=(+1)
320 SURFACE ( 23), SIDE POINTER=(-1)
321
   SURFACE ( 22), SIDE POINTER=(+1)
   SURFACE ( 24), SIDE POINTER=(-1)
322
   323
324 BODY ( 18) Tin leaf 1
```

```
325 MATERIAL( 7)
326 SURFACE ( 21), SIDE POINTER=(+1)
327 SURFACE ( 23), SIDE POINTER=(-1)
328 SURFACE ( 24), SIDE POINTER=(+1)
329 SURFACE ( 25), SIDE POINTER=(-1)
331 BODY
       ( 19)
               Tin leaf 2
332 MATERIAL (
           7)
333 SURFACE ( 27), SIDE POINTER=(-1)
334 SURFACE ( 29), SIDE POINTER=(+1)
335 SURFACE ( 15), SIDE POINTER=(+1)
336 SURFACE ( 25), SIDE POINTER=(-1)
338 BODY
        ( 20)
               Tin leaf 3
339 MATERIAL (
           7)
340 SURFACE ( 23), SIDE POINTER=(+1)
341 SURFACE ( 30), SIDE POINTER=(-1)
342 SURFACE ( 25), SIDE POINTER=(-1)
344 BODY
        ( 21)
               Copper leaf 1
345 MATERIAL ( 6)
346 SURFACE ( 21), SIDE POINTER=(+1)
347 SURFACE ( 23), SIDE POINTER=(-1)
348 SURFACE ( 25), SIDE POINTER=(+1)
349 SURFACE ( 26), SIDE POINTER=(-1)
351 BODY ( 22) Copper leaf 2
352 MATERIAL (
           6)
353 SURFACE ( 21), SIDE POINTER=(-1)
354 SURFACE ( 27), SIDE POINTER=(+1)
355 SURFACE ( 15), SIDE POINTER=(+1)
356 SURFACE ( 26), SIDE POINTER=(-1)
358 BODY
        ( 23)
               Copper leaf 3
359 MATERIAL ( 6)
360 SURFACE ( 30), SIDE POINTER=(+1)
361 SURFACE ( 32), SIDE POINTER=(-1)
362 SURFACE ( 31), SIDE POINTER=(-1)
364 BODY (24)
              Lead cage 1
365 MATERIAL ( 8)
366 SURFACE ( 21), SIDE POINTER=(+1)
367
   SURFACE ( 23), SIDE POINTER=(-1)
368 SURFACE ( 26), SIDE POINTER=(+1)
369 SURFACE ( 31), SIDE POINTER=(-1)
371 BODY
        ( 25) Lead cage 2
372 MATERIAL (
           8)
373 SURFACE ( 29), SIDE POINTER=(-1)
374
   SURFACE ( 34), SIDE POINTER=(+1)
375 SURFACE ( 15), SIDE POINTER=(+1)
376 SURFACE ( 31), SIDE POINTER=(-1)
377
   378 BODY ( 26) Lead cage 3
```

```
356 SURFACE ( 26), SIDE POINTER=(-1)
357
   358 BODY
       ( 23)
              Copper leaf 3
359 MATERIAL (
           6)
   SURFACE ( 30), SIDE POINTER=(+1)
360
361
   SURFACE ( 32), SIDE POINTER=(-1)
   SURFACE ( 31), SIDE POINTER=(-1)
362
363
   364 BODY (24)
              Lead cage 1
365
   MATERIAL (
           8)
   SURFACE ( 21), SIDE POINTER=(+1)
366
   SURFACE ( 23), SIDE POINTER=(-1)
367
   SURFACE ( 26), SIDE POINTER=(+1)
SURFACE ( 31), SIDE POINTER=(-1)
368
369
370
   371
   BODY
        ( 25)
              Lead cage 2
372
   MATERIAL (
           8)
   SURFACE ( 29), SIDE POINTER=(-1)
373
374
   SURFACE ( 34), SIDE POINTER=(+1)
375
   SURFACE ( 15), SIDE POINTER=(+1)
376 SURFACE ( 31), SIDE POINTER=(-1)
377
   378 BODY
              Lead cage 3
        ( 26)
379 MATERIAL ( 8)
380 SURFACE ( 33), SIDE POINTER=(-1)
   SURFACE ( 32), SIDE POINTER=(+1)
381
382 SURFACE ( 31), SIDE POINTER=(-1)
384 MODULE ( 99)
385 MATERIAL( 0)
       ( 1)
386 BODY
387 BODY
        (
           2)
388 BODY
        (
           3)
389 BODY
           4)
        (
390 BODY
           5)
        (
391 BODY
           6)
        (
392 BODY
           7)
        (
393 BODY
        ( 14)
394 MODULE ( 15)
395 BODY
        ( 16)
        ( 17)
396 BODY
397 BODY
        ( 18)
        ( 19)
398 BODY
        ( 20)
399 BODY
        ( 21)
400 BODY
401 BODY
        ( 22)
        ( 23)
402 BODY
        ( 24)
403 BODY
404
   BODY
         ( 25)
405
       ( 26)
   BODY
407
   END
```

Σχήμα Π.Β.3: Τυπικό αρχείο penmain.dat του κώδικα PENELOPE 2011

*** ** Program PENMAIN. Input data and run-time messages. ** Date and time: 18th Dec 2017. 16:16:09 Response of detector Ge-90dim to 241Am whitecup geometry. _____ >>>>> Source description. Primary particles: photons Initial energy = 4.773000E+05 eV Coordinates of centre: SX0 = 0.00000E+00 cm

 SYO =
 0.000000E+00 cm

 SZO =
 7.350000E+00 cm

 SSX =
 7.000000E+00 cm

 SSY =
 7.000000E+00 cm

 SSZ =
 3.000000E+01 cm

 Source size: Active body = 7 *** Rectangular beam: Angular window: THETA = (0.000000E+00, 1.800000E+02) deg PHI = (0.000000E+00, 3.600000E+02) deg Maximum particle energy = 4.773000E+05 eV >>>>> Material data and simulation parameters. **** 1st material Material data file: Ge.mat Positron absorption energy = 1.000000E+05 eV Photon absorption energy = 1.000000E+03 eV Positron absorption energy = 1.000000E+03 eV Electron-positron simulation parameters: C1 = 1.000000E-01, C2 = 1.000000E-01 Wcc = 1.000000E+04 eV, Wcr = 1.000000E+03 eV **** 2nd material Material data file: Al.mat Positron absorption energy = 1.000000E+05 eV Photon absorption energy = 1.000000E+03 eV Positron absorption energy = 1.000000E+03 eV Electron-positron simulation parameters: C1 = 1.000000E-01, C2 = 1.000000E-01 WCC = 1.000000E+04 eV, WCr = 1.000000E+03 eV

**** 3rd material Material data file: Plexiglass.mat Electron absorption energy = 1.000000E+05 eV Photon absorption energy = 1.000000E+03 eV Positron absorption energy = 1.000000E+05 eV Electron-positron simulation parameters: C1 = 1.000000E-01, C2 = 1.000000E-01 Wcc = 1.000000E+04 ev, Wcr = 1.000000E+03 eV **** 4th material Material data file: cel.mat Electron absorption energy = 1.000000E+05 eV Photon absorption energy = 1.000000E+03 eV Positron absorption energy = 1.000000E+05 eV Electron-positron simulation parameters: C1 = 1.000000E-01, C2 = 1.000000E-01 Wcc = 1.000000E+04 ev, Wcr = 1.000000E+03 eV **** 5th material Material data file: Air.mat Electron absorption energy = 1.000000E+05 eV Photon absorption energy = 1.000000E+03 eV Positron absorption energy = 1.000000E+05 eV Electron-positron simulation parameters: C1 = 1.000000E-01, C2 = 1.000000E+01 Wcc = 1.000000E+04 ev, Wcr = 1.000000E+03 eV **** 6th material Material data file: Cu.mat Electron absorption energy = 1.000000E+05 eV Photon absorption energy = 1.000000E+03 eV Positron absorption energy = 1.000000E+05 eV Electron-positron simulation parameters: C1 = 1.000000E-01, C2 = 1.000000E+01 Wcc = 1.000000E+04 eV, Wcr = 1.000000E+03 eV **** 7th material Material data file: Sn.mat Electron absorption energy = 1.000000E+05 eV Photon absorption energy = 1.000000E+03 eV Positron absorption energy = 1.000000E+05 eV Electron-positron simulation parameters: C1 = 1.000000E-01, C2 = 1.000000E-01 WCC = 1.000000E+04 eV, WCr = 1.000000E+03 eV **** 8th material Material data file: Pb.mat Electron absorption energy = 1.000000E+05 eV Photon absorption energy = 1.000000E+03 eV Positron absorption energy = 1.000000E+05 eV Electron-positron simulation parameters: C1 = 1.000000E-01, C2 = 1.000000E-01 Wcc = 1.000000E+04 eV, Wcr = 1.000000E+03 eV ----->>>>> Geometry definition. PENGEOM's geometry file: detector.geo Maximum allowed step lengths of electrons and positrons and local absorption energies (non-void bodies).
 and local absorption energies (non-void bodies).

 Body
 DSMAX(IB)
 EABSB(1,IB)
 EABSB(2,IB)
 EABSB(3,IB)

 IB
 (cm)
 (eV)
 (eV)
 (eV)
 (eV)

 1
 1.00000E+20
 1.00000E+05
 1.00000E+03
 1.00000E+05

 2
 1.00000E+20
 1.00000E+05
 1.00000E+03
 1.00000E+05

 3
 1.00000E+20
 1.00000E+05
 1.00000E+03
 1.00000E+05

 4
 1.00000E+20
 1.00000E+05
 1.00000E+03
 1.00000E+05

 5
 1.00000E+20
 1.00000E+05
 1.00000E+03
 1.00000E+05

 6
 1.00000E+20
 1.00000E+05
 1.00000E+03
 1.00000E+05

 6
 1.00000E+20
 1.00000E+05
 1.00000E+03
 1.00000E+05

 7
 1.00000E+20
 1.00000E+05
 1.00000E+03
 1.00000E+05

 9
 1.00000E+20
 1.00000E+05
 1.00000E+05
 1.00000E+05

 10
 1.00000E+20
 1.00000E+05
 1.00000E+05
 1.00000E+05

 11
 1.00000E+20
 1.00000E+05
 1.00000E+05</td >>>>> Energy and angular distributions of emerging particles. E: NBE = 100, EMIN = 1.000000E+03 eV, EMAX = 4.906600E+05 eV Theta: NBTH = 45 Phi: NBPH = 18 _____ >>>>> Energy-deposition detector # 1 Energy window = (1.00000E+03, 4.90660E+05) eV Number of energy bins = 1000 (uniform mesh) Output spectrum: spc-enddet-01.dat Active body = 1 Active body = 2

>>>>> Job characteristics. Resume simulation from previous dump file: dump.dmp Write final counter values on the dump file: dump.dmp Dumping period: DUMPP = 6.00000E+02 Random-number generator seeds = 1, 1 Number of showers to be simulated = 2.000000E+09 Computation time available = 2.000000E+09 sec WARNING: Could not resume from dump file... *** WARNING, STEP: Inconsistencies caused by round-off errors. IBODY0 = 24, IBODY = 14, IERR = -1, NERR = 2 *** WARNING, STEP: Inconsistencies caused by round-off errors. IBODY0 = 24, IBODY = 14, IERR = -1, NERR = 2 *** WARNING, STEP: Inconsistencies caused by round-off errors. IBODY0 = 24, IBODY = 14, IERR = -1, NERR = 2 *** WARNING, STEP: Inconsistencies caused by round-off errors. IBODY0 = 24, IBODY = 14, IERR = -1, NERR = 2
Σχήμα Π.Β.4: Τμήμα αρχείου spc-enddet-01.dat του κώδικα PENELOPE 2011

Results from PENMAIN. Output from energy-deposition detector # 1
Deposited energy spectrum.
WARNING: May be strongly biased if interaction forcing is used!
1st column: deposited energy (eV).
2nd column: probability density (1/(ev*particle)).
3rd column: statistical uncertainty (3 sigma).

1.244830E+03	2.356008E-07	1.796336E-08
1.734490E+03	2.715193E-07	1.928394E-08
2.224150E+03	2.731935E-07	1.934329E-08
2.713810E+03	2.690842E-07	1.919728E-08
3.203470E+03	2.698451E-07	1.922440E-08
3.693130E+03	2.608655E-07	1.890187E-08
4.182790E+03	2.753242E-07	1.941856E-08
4.672450E+03	2.696929E-07	1.921898E-08
5 162110E+03	2 634529E-07	1 899536E-08
5 651770E+03	2 706061E-07	1 925148E-08
6 141430E+03	2 686276E-07	1 9180995-08
6 631090E+03	2 7151935-07	1 9283945-08
7 120750E+03	2 7060615-07	1 0251485-08
7 610/100+03	2.6162655-07	1 8020425-08
8 100070E+02	2 7014055-07	1 0225245-08
8.1000/0E+03	2.70149JE-07	1 0227125 00
0.0702005.02	2.727309E-07	1 0504965 09
9.0/9590E+05	2.00340/E-0/	1.939400E-00
9.009000E+05	2.808055E-07	1.901081E-08
1.0038/1E+04	3.09/20/E-0/	2.009009E-08
1.00483/E+04	2.052/92E-0/	1.900108E-08
1.103803E+04	2.82029/E-0/	1.90/44/E-08
1.152/69E+04	2./0301/E-0/	1.924066E-08
1.201/35E+04	2.8384/3E-0/	1.9/1680E-08
1.250/01E+04	2.93435/E-0/	2.004/00E-08
1.29966/E+04	2.8521/0E-0/	1.976431E-08
1.348633E+04	2.8521/0E-0/	1.976431E-08
1.39/599E+04	2.908483E-0/	1.995844E-08
1.446565E+04	2.955664E-07	2.011964E-08
1.495531E+04	2.993713E-07	2.024872E-08
1.544497E+04	2.899351E-07	1.992709E-08
1.593463E+04	2.932835E-07	2.004180E-08
1.642429E+04	2.815643E-07	1.963736E-08
1.691395E+04	2.871956E-07	1.983273E-08
1.740361E+04	2.867390E-07	1.981696E-08
1.789327E+04	2.881088E-07	1.986423E-08
1.838293E+04	2.935879E-07	2.005220E-08
1.887259E+04	2.800423E-07	1.958422E-08
1.936225E+04	2.946532E-07	2.008854E-08
1.985191E+04	2.835429E-07	1.970622E-08
2.034157E+04	2.922181E-07	2.000537E-08
2.083123E+04	2.955664E-07	2.011964E-08
2.132089E+04	2.824775E-07	1.966917E-08
2.181055E+04	2.846082E-07	1.974321E-08
2.230021E+04	2.823253E-07	1.966387E-08

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Γ

				4	E C	
				C	ANB	ERRA
DETEC	TOR SPEC	IFICATI	ON AND PERFOR	MAN	ICE DAT	A
4		AFTE	R REPAIR			
Specifications	1					
Detector Model	GC9021		Serial number b	04151		
Cryostat Model	7500SL					
Preamplifier Model	2002CSL					
		10	10001			
Cryostat description	or Drawing Numb	er if special <u>7</u>	0051.			
Physical Characte	ristics					
		I alored and f	cina window			
Geometry <u>Co</u>	axial one open end	num	Active volume		cc	
Langth	72	mm	Crystal well depth		mm	
Distance from windo	w (outside) 5	mm	Crystal well diameter		mm	
Tratanee from onitio						
Electrical Charac	teristics					
Destation voltage	(+)4000	Vdc				
Depiction voltage	(+)4000	(+)4500 3				
12 APROVED IN COMPANY AND A STAR A	VINITALITY VILL	1714,300 1	/ dc			
Recommended bias v	commended bias	0.01 n	A			
Leakage current at re	commended bias	0.01 n	/dc /A /e -0.2 Vdc			
Leakage current at re Preamplifier test poin	ecommended bias at voltage at recom	0.01 n mended voltag	de A ge <u>-0.2</u> Vde			
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef	commended bias at voltage at recom	0.01 n mended voltag	A A ge <u>-0.2</u> Vdc			
Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef	ecommended bias nt voltage at recom	0.01 n mended voltag	A A ge <u>-0.2</u> Vdc			
Leakage current at re Preamplifier test poir Resolution and Ef	ecommended bias at voltage at recom ficiency after re ant of	<u>0.01</u> n mended voltag	ac A ge <u>-0.2</u> Vdc			
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const	Ticiency after re ant of	0.01 m mended voltag	/dc /A ge <u>-0.2</u> Vdc			
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope	Ticiency after re ant of	0.01 m mended voltag	A A ge <u>-0.2</u> Vdc			-
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope Energy (keV)	Ticiency after re ant of ³⁷ Co 122 938	0.01 m mended voltag	A A ge <u>-0.2</u> Vdc			
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope Energy (keV) FWHM (keV)	Ticiency after re ant of ³⁷ Co 122 .938	0.01 m mmended voltag pair 6	/dc /A ge <u>-0.2</u> Vdc			
Recommended bias V Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope Energy (keV) FWHM (keV) FWTM (keV) Reak/Compton	Ticiency after real of 122	0.01 m mended voltag pair 6	/dc /A ge <u>-0.2</u> Vdc			
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope Energy (keV) FWHM (keV) FWTM (keV) Peak/Compton Red Efficiency	Triciency after real of 122	0.01 m mended voltag pair 6	/dc /A ge <u>-0.2</u> Vdc			
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope Energy (keV) FWHM (keV) FWHM (keV) Peak/Compton Rel. Efficiency	ficiency after re ant of ¹⁷ Co 122 .938	0.01 m mended voltag pair 6	NSI/IEEE std325-1996			
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope Energy (keV) FWHM (keV) FWHM (keV) FWTM (keV) Peak/Compton Rel. Efficiency - Tests are performed - Standard Canberra	ficiency after realized and of the second se	0.01 m mended voltag pair 6 µs 6 µs 1332 1.99 3.78 75.0:1 91.5% standard test A See Germaniu	NSI/IEEE std325-1996 n detector manual Section 7	,		
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope Energy (keV) FWHM (keV) FWHM (keV) FWTM (keV) Peak/Compton Rel. Efficiency - Tests are performed - Standard Canberra	Gringe vite Secont age vite Secont age vite Treiency after re ant of TCo 122 .938 J following IEEE s electronics used -	0.01 m mended voltag pair 6	NSI/IEEE std325-1996 n detector manual Section 7			
Recommended bias V Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope Energy (keV) FWHM (keV) FWHM (keV) FWTM (keV) Peak/Compton Rel. Efficiency - Tests are performed - Standard Canberra	ficiency after real of ant of 122	0.01 m imended voltag pair 6	NSI/IEEE std325-1996 n detector manual Section 7 Date : August 1, 2013			
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope Energy (keV) FWHM (keV) FWHM (keV) FWTM (keV) Peak/Compton Rel. Efficiency - Tests are performed - Standard Canberra Tested by :	Triciency after real of the second s	0.01 m mended voltag pair 6 µs ⁶⁰ Co 1332 1.99 3.78 75.0:1 91.5% standard test A See Germanium	NSI/IEEE std325-1996 n detector manual Section 7 Date : August 1, 2013			
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope Energy (keV) FWHM (keV) FWHM (keV) FWTM (keV) Peak/Compton Rel. Efficiency - Tests are performed - Standard Canberra Tested by :	Ticiency after real of the second sec	0.01 m mended voltag pair 6 µs ⁶⁰ Co 1332 1.99 3.78 75.0:1 91.5% standard test A See Germanium	Ac A ge <u>-0.2</u> Vdc NSI/IEEE std325-1996 n detector manual Section 7 Date : August 1, 2013 Date : August 1, 2013			
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope Energy (keV) FWHM (keV) FWHM (keV) FWTM (keV) Peak/Compton Rel. Efficiency - Tests are performed - Standard Canberra Tested by : Approved by :	Triciency after real of the second se	0.01 m mended voltag pair 6 µs 6 µs 75.0:1 91.5% standard test A See Germanium	Action of the second se			
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope Energy (keV) FWHM (keV) FWHM (keV) FWTM (keV) Peak/Compton Rel. Efficiency - Tests are performed - Standard Canberra Tested by : Approved by :	Triciency after real of the second se	0.01 m mended voltag pair 6 µs %Co 1332 1.99 3.78 75.0:1 91.5% standard test A See Germanium	A ge <u>-0.2</u> Vde NSI/IEEE std325-1996 n detector manual Section 7 Date : August 1, 2013 Date : August 1, 2013		· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope Energy (keV) FWHM (keV) FWHM (keV) FWTM (keV) Peak/Compton Rel. Efficiency - Tests are performed - Standard Canberra Tested by : Approved by :	Triciency after real of the second se	0.01 m mended voltag pair 6	A A ge <u>-0.2</u> Vde NSI/IEEE std325-1996 n detector manual Section 7 Date : August 1, 2013 Date : August 1, 2013			
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope Energy (keV) FWHM (keV) FWHM (keV) FWTM (keV) Peak/Compton Rel. Efficiency - Tests are performed - Standard Canberra Tested by : Approved by :	Ticiency after real of the second sec	0.01 m mended voltag pair 6	A A ge <u>-0.2</u> Vdc NSI/IEEE std325-1996 n detector manual Section 7 Date : August 1, 2013 Date : August 1, 2013			
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope Energy (keV) FWHM (keV) FWHM (keV) Peak/Compton Rel. Efficiency - Tests are performed - Standard Canberra Tested by : Approved by :	Ticiency after real of the second sec	0.01 m mended voltag pair 6 µs 0Co 1332 1.99 3.78 75.0:1 91.5% standard test A See Germanium	A A ge <u>-0.2</u> Vdc NSI/IEEE std325-1996 n detector manual Section 7 Date : August 1, 2013 Date : August 1, 2013			
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope Energy (keV) FWHM (keV) FWTM (keV) FWTM (keV) Peak/Compton Rel. Efficiency - Tests are performed - Standard Canberra Tested by : Approved by :	Arrow of the second decommended bias in voltage at recommended bias in voltage at recomm	0.01 m mended voltag pair 6 µs 0Co 1332 1.99 3.78 75.0:1 91.5% standard test A See Germanium	A A ge <u>-0.2</u> Vdc NSI/IEEE std325-1996 n detector manual Section 7 Date : August 1, 2013 Date : August 1, 2013			
Recommended bias of Leakage current at re Preamplifier test poin Resolution and Ef With amp time const Isotope Energy (keV) FWIHM (keV) FWIM (keV) FWTM (keV) Peak/Compton Rel. Efficiency - Tests are performed - Standard Canberra Tested by : Approved by :	Triciency after real of the second se	0.01 m mended voltag pair 6 µs 0Co 1332 1.99 3.78 75.0:1 91.5% standard test A See Germanium	A Se <u>-0.2</u> Vdc NSI/IEEE std325-1996 n detector manual Section 7 Date : August 1, 2013 Date : August 1, 2013			



Σχήμα Π.Γ.1: Πιστοποιητικό κατασκευαστή για τον HPGe-α



Czech Metrology Institute

Okružní 31, 638 00 Brno

Phone: +420 545 555 111, Fax: +420 545 222 728, www.emi.cz

Workplace:

Regional Branch Prague, Radiová 1136/3, 102 00 Praha 10 Ionizing Radiation Building, Radiová 1288/1a Phone: +420 266 020 497, Fax: +420 266 020 466

CERTIFICATE

Certificate No.: 103	35 - SE - 40126-15	<u>Type:</u> CBSS 2	Serial No.: 220115-1503017
	Half life	Activity	Combined standard
Radionuclide	days	kBq	uncertainty, %
Am-241	157800	3,550	1,1
Cd-109	462,6	16,48	1,5
Ce-139	137,5	1,133	1,2
Co-57	271,26	0,8821	1,1
Co-60	1925,4	2,205	- 1,1
Cs-137	11019	1,969	1,3
Sn-113	115,1	3,749	2,3
Sr-85	64,78	6,255	1,5
Y-88	106,6	4,847	1,2
<u>Mass:</u> 56,84 g <u>Radionuclide impu</u> Reference date: 2.3	<u>Density:</u> 0,9 <u>irities:</u> gamma <	8 ± 0,01 g/ cm ³ 0,1 % Homo	<u>Volume</u> : 58,00 \pm 0,6 cm ³
Description: Radioactive material is H - 0,0816 O - 0,216 Si	i homogeneously dis i - 0.379 (mass ratio).	persed in silicone resin.	Composition of the matrix: C - 0.324
Measuring method Preparation issues from method. Final control i	<u>l:</u> n standard ER soluti s based on gamma s	ons whose activities we pectrometry on HPGe d	e determined by suitable absolute etector.

Radiomedical Ltd. Plomariou 27 GR 15126 Marousi GREECE

Control: Ing. Vlasta Zdychová, RNDr. Pavel Dryák, CSc.



Ing. Jiří Špráň, MBA

Deputy Director of RB Praque

Σχήμα Π.Γ.2: Πιστοποιητικό και φωτογραφία πηγής που χρησιμοποιήθηκε στην βαθμονόμηση του HPGe-α

· · ·						
Contraction of the second stress of the second stre	· •	Para das Ta	nu antas			
	1 1,	Chemin de la	n Roseraie			
GERMANIUM DEP. Téléphone : 03 88 77 Télécopie : 03 88 78	67383 ARTMENT ' 43 50 68 22	LINGOLSH	EIM CEDE	X	67834	<u>For Mai</u> B.P. 3 CANNERIES CEDE
Contraction of Contraction of Contraction						
	SPECIFICAT	ION SH	EET FO	DR P	TYPE	
	COAMAL GE	RIVIANI	UNDE	TEC	IOL	00
	FCI	0 20	105	D	H	r Ge
	EGr	C 30	-100	-K		30%
	Serial	numbe	er : 53	191		STREETISTY.
						有限的 第三
	Operating high volt:	age : + 300	0 V , poli	urity PO	OSITIVE	
Detection chara	starictics .					
	Energy :		122 ke	v	1332 keV	/
	Measured resolution i	n keV :	0,94		1,93	
Characteristics	Relative	Peak / C	omnton 1	WTM/	FWHM	EWEM/EWHM
at 1332 keV :	efficiency	rat	io	rat	tio	ratio
Measured value	29,5 %	63	1	1,8	33	2,40
	nditions . Amplifier 2	026, 4µs gau	ssian shapin	g time.		
Measurement co Geometrical chan External diameter : Sensitive volume : Dead layer :	Count rate : Count rate : Analog to d racteristics of the g 57,0 mm 139 cm ³ 500 μGe	1000 counts igital convert ermanium Len Dis	per second. ter : Multipo n crystal gth : tance from c	ert II 163: : ``, :ap :	24 channel 56,2 m 3 mm	s
Measurement co Geometrical cha External diameter : Sensitive volume : Dead layer : Cryostat :	Count rate : Count rate : Analog to d racteristics of the g 57,0 mm 139 cm ³ 500 μGe Type : SHF 00 30A Holding time : 15 Ι	1000 counts igital convert ermanium Len Dis	per second. ter : Multipo n crystal igth : tance from o N	ent II 163: : * , :ap : !* 1159	24 channel: 56,2 m 3 mm	s m
Measurement co Geometrical cha External diameter : Sensitive volume : Dead layer : Cryostat : End cap :	Count rate : Count rate : Analog to d racteristics of the g 57,0 mm 139 cm ³ 500 μGe Type : SHF 00 30A Holding time : 15 I Diameter : 80 mm Entrance window :	1000 counts igital convert ermanium Len Dis Jays	per second. ter : Multipo n crystal igth : tance from c N L T	rt II 163: ; * * * ; * ; * ; * ; * ; * ; * ; * ; *	24 channel 56,2 m 3 mm 35 mm : ≤ 1 mm	m



Σχήμα Π.Γ.3: Πιστοποιητικό κατασκευαστή για τον HPGe-β

BULGARIAN ACADEMY OF SCIENCES INSTITUTE FOR NUCLEAR RESEARCH AND NUCLEAR ENERGY

RADIOANALYTICAL LABORATORY

72 Tzarigradsko Chaussee Blvd.	Tel.: (++3592) 74 31 444
Sofia 1784, Bulgaria	Fax: (++3592) 975 36 19

Certificate for bulk radioactove source

Symbol of the source:

50 TB 0.35/228

Matrix - paper Density - 0.35 g/cm³ Volume - 50 cm³

Radionuclide	Time of half-life	Activity	Total uncertainty
241-Am	(days)	368.7	(%)
109-Cd	462.6	2040.6	0.83
139-Ce	137.5	102.1	0.37
57-Co	271.26	80.5	0.47
60-Co	1925.4	393.8	0.21
137-Cs	11019	338.3	0.87
203-Hg	46.72	273.4	0.73
113-Sn	115.1	372.6	1.70
85-Sr	64.78	458.9	1.10
88-Y	106.6	773.3	0.63

Reference date: 01. 08. 1997

Time of use: six months

Standart source from Amersham International plc. was used for manufacturing of the source:

Cert. No:M 29235,

Тип: QCY. 48 Solution No: R7/220/58.

The amount of the used standard radioactive solution is controlled by Sartorius 2405 balance (max - 30 g, d = 0.001 mg). Standard radioactive solution is dripped onto sheat of paper under definite scheme.

Issued on 27-02-1998 Responsible executor: T. Guentchev



Σχήμα Π.Γ.4: Πιστοποιητικό και φωτογραφία πηγής που χρησιμοποιήθηκε στην βαθμονόμηση του HPGe-β



DETECTOR SPECIFICATION AND PERFORMANCE DATA

Specifications

Detector Model	GCW202	2 Seria	l number	<u>b 17118</u>
Cryostat Model	7905-30U	U/S Order	number	GOR6136
Preamplifier Mod	lel <u>2002C</u>			
The purchase spec	cifications and th	erefore the warranted performance	of this de	tector are as follows :
Nominal volume	130 cc	Relative efficiency	<u>20</u> %	
Resolution	2.2 keV (FWH	M) at 1.33 MeV		
	keV (FV	WTM) at 1.33 MeV		
	1.4 keV (FWH	M) at <u>122 keV</u>		
	keV (FV	VTM) at		
Peak/Compton	:1	Cryostat well diameter 16	v	Vell depth <u>40</u> mm
Cryostat descripti	on or Drawing N	umber if special 7905-30U/S		

Physical Characteristics

Geometry Coaxial one op	en end,	open end fac	cing window		
Diameter	54.4	mm	Active volume	118	cc
Length	57	mm	Crystal well depth	35.5	mm
Distance from window (outside)	10	mm	Crystal well diameter	22.5	mm

Electrical Characteristics

Depletion voltage	(+) 2000	Vdc			
Recommended bias v	oltage Vdc	(+) 300	00 Vdc		
Leakage current at rec	commended bias	0.02	nA		
Preamplifier test poin	t voltage at recon	mended vo	oltage	- 1.1	Vdc

Resolution and Efficiency

With amp time constant of 4 µs - 7.2 µs Rise Time, 0.8 µs Flat Top

Isotope	⁵⁷ Co	⁶⁰ Co	
Energy (keV)	122	1332	
FWHM (keV)	1.28	1.99	
FWTM (keV)		3.63	
Peak/Compton		44.7:1	
Rel. Efficiency		20.6%	

Cooldown Time 20 h

- Tests are performed following IEEE standard test ANSI/IEEE std325-1996

- Standard Canberra electronics used - See Germanium detector manual Section 7

Tested by :

Date :6/10/2016

Approved by :

Date :6/10/2016



Σχήμα Π.Γ.5: Πιστοποιητικό κατασκευαστή για τον HPGe-γ

Section 6 DETECTOR SPECIFICATIONS AND PERFORMANCE DATA (REAR ENVELOPE)

6.1 SPECIFICATIONS

Serial Number 9831018

The purchase specifications and therefore the warranted performance of this detector are as follows:

Rel. Efficiency - <u>30</u> % Resolution - <u>2.0</u> keV (FWHM) @ 1.33 MeV - ____keV (FWTM) @ -____keV (FWHM) - ____keV (FWHM) @ -_____ Peak/Compton - ____:1

Cryostat Description or Drw. No. if special _____ 7500

6.2 PHYSICAL/PERFORMANCE DATA

Actual performance of this detector when tested is given below. Digital printouts are also enclosed in the rear envelope of the instruction manual.

Geometry Closed End Coaxial

Diameter 55.3 mm

Length 65 mm

Active area facing window 24.15 cm²

Distance from window 5 mm

ELECTRICAL CHARACTERISTICS

Depletion Voltage +) 3000_Vdc.

Recommended Bias Voltage 3000 Vdc.

Leakage Current at Recommended Bias NA Na.

Preamplifier Test Point Voltage at Recommended Bias 1.48 Vdc.

Capacitance at Recommended Bias NA pf.

RESOLUTION AND EFFICIENCY

Isotope	Co ⁵⁷	Co ⁶⁰		
Energy (keV)	122	1332		
FWHM (keV)	0.85	1.78		
FWTM (keV)	1.61	3.26		
Peak/Compton		66.5:1		
Efficiency (%)		33.8%		

Σχήμα Π.Γ.6: Πιστοποιητικό κατασκευαστή για τον HPGe-1 (Δ.Ε. Βασιλοπούλου, 2008)



DETECTOR SPECIFICATION AND PERFORMANCE DATA

Specifications

Detector Model	GC4018	Serial	number <u>b 12099</u>
Cryostat Model	7500SL		
Preamplifier Mod	el <u>2002CSL</u>		
The purchase spec	cifications and there	efore the warranted performance	of this detector are as follows :
Nominal volume	cc .	Relative efficiency	<u>40</u> %
Resolution	1.8 keV (FWHM) at 1.33 MeV	
	keV (FW)	ΓM) at 1.33 MeV	
	.875 keV (FWH	M) at <u>122 keV</u>	
	keV (FW	ГМ) at	
Peak/Compton	<u>63:1</u>	Cryostat well diameter	Well depth mm
Cryostat descripti	ion or Drawing Nur	nber if special 7500SL	

Physical Characteristics

=)

18

Geometry	Coaxial one open end,	closed end f	acing window	
Diameter	(59.5)	mm	Active volume	cc
Length	61)	mm	Crystal well depth	mm
Distance from	window (outside) 6	mm	Crystal well diameter	mm

Electrical Characteristics

Depletion voltage	(+)3000	Vdc				
Recommended bias v	oltage Vdc	(+)3500	Vdc			
Leakage current at rec	commended bias	0.01	nA			
Preamplifier test poin	t voltage at recon	mended vol	tage	<u>-1.1</u>	Vdc	

Resolution and Efficiency

With amp time constant of $4 \mu s$

Isotope	⁵⁷ Co	⁶⁰ Co	the state of the state of the
Energy (keV)	122	1332	a la contra de la co
FWHM (keV)	.821	1.77	
FWTM (keV)	D doughed the f	3.28	
Peak/Compton		69.3:1	
Rel Efficiency	Callenge State	40.9%	

- Tests are performed following IEEE standard test ANSI/IEEE std325-1996

- Standard Canberra electronics used - See Germanium detector manual Section 7

-//	
Approved by : Date : January 12, 2012	
GDAME001/F 12/03/2007	1/1

Σχήμα Π.Γ.7: Πιστοποιητικό κατασκευαστή για τον HPGe-2 (Δ.Ε. Παπαδιονυσίου, 2015)

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Δ

Φαινόμενο Πραγματικής Σύμπτωσης

Παρατίθενται ορισμένοι ορισμοί, προκειμένου να εξηγηθεί καλύτερα το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης και το γιατί είναι τόσο σημαντική η χρήση μεθόδων διόρθωσης των πειραματικών δεδομένων.

Κατά τη διάσπαση ενός πυρήνα συνήθως προκύπτει πυρήνας σε διεγερμένη κατάσταση, για την αποδιέγερση του οποίου συχνά απαιτείται η εκπομπή είτε ενός, είτε πολλών διαδοχικών φωτονίων. Στην δεύτερη περίπτωση, ο διεγερμένος πυρήνας περνά από διάφορες ενεργειακές στάθμες μέχρι την εκπομπή του τελικού φωτονίου, οπότε και θα περιέλθει στην τελική σταθερή του κατάσταση. Συνήθως, ο χρόνος ημιζωής της κάθε ενεργειακής στάθμης είναι της τάξης των psec ή nsec. Όμως ο χρόνος απόκρισης της ανιχνευτικής διάταξης (response time) είναι της τάξης των μsec. Επομένως όταν δύο διαδοχικά φωτόνια από την ίδια διάσπαση αλληλεπιδράσουν με τον ανιχνευτή, αυτός αδυνατεί να τα ανιχνεύσει σαν δύο διαφορετικά, αλλά τα ανιχνεύει ως ένα φωτόνιο με ενέργεια ίση με το άθροισμα των ενεργειών των δύο πραγματικών φωτονίων. Οπότε, ως πραγματική σύμπτωση ορίζεται το φαινόμενο κατά το οποίο δύο ή περισσότερα φωτόνια που εκπέμπονται διαδοχικά από τον ίδιο κλάδο διάσπασης του πυρήνα ενός ισοτόπου, ανιχνεύονται ταυτόχρονα από την ανιχνευτική διάταξη και καταγράφονται ως ένα φωτόνιο ενέργειας ίσης με το άθροισμα των ενεργειών των φωτονίων που ανιχνεύονται (De Felice et al., 2000; Δ.Δ. Καρφόπουλου Κ.Λ., 2012). Η ένταση του φαινομένου εξαρτάται από το σχήμα αποδιέγερσης του εκάστοτε πυρήνα και από την γεωμετρία πηγής-ανιχνευτή. Συγκεκριμένα η πιθανότητα ύπαρξης του φαινομένου της πραγματικής σύμπτωσης εντείνεται όσο αυξάνεται η απόδοση του ανιχνευτή (McCallum and Coote, 1975; Debertin and Schotzig, 1979; Debertin and Helmer, 1988).

Ταυτόχρονα βέβαια, δεδομένου ότι τα φωτόνια έχουν καταγραφεί στην αθροιστική φωτοκορυφή, η τελική επιφάνεια (area) των φωτοκορυφών του φάσματος του ραδιοισότοπου που προκύπτει είναι μικρότερη από την πραγματική. Στη βιβλιογραφία η πρόσθεση γεγονότων σε φωτοκορυφές, ή αλλιώς η δημιουργία «αυξημένων» φωτοκορυφών, περιγράφεται ως summing-in effect, ενώ η έλλειψη γεγονότων από φωτοκορυφές και η δημιουργία «μειωμένων» φωτοκορυφών, περιγράφεται ως summingout effect. Εκτός από την περίπτωση και τα δύο σε σειρά εκπεμπόμενα φωτόνια να αποθέσουν πλήρως την ενέργειά τους στον ανιχνευτή, οπότε και να προκύψει η αθροιστική φωτοκορυφή για την οποία μιλήσαμε προηγουμένως, υπάρχει πιθανότητα να αποθέσουν μερικώς ενέργεια. Σε αυτή την περίπτωση όπου πραγματοποιείται συνανίχνευση φωτονίων που δεν αποθέτουν όλη την ενέργεια τους στον ανιχνευτή αλλά ένα κλάσμα αυτής, οπότε και τα καταγραφόμμενα γεγονότα δεν δημιουργούν κάποια φωτοκορυφή αλλά οδηγούν σε αύξηση του συνεχούς υποστρώματος του γ-φάσματος. Όσο πιο έντονο είναι το φαινόμενο, τόσο μεγαλύτερη η πιθανότητα συνανίχνευσης και άρα τόσο μεγαλύτερη η αύξηση του υποστρώματος. Τέλος, αν κάποιο από τα φωτόνια απόθεσε όλη την ενέργεια του στον ανιχνευτή, ενώ το/τα συνανιχνευόμενο/α του όχι, τότε πάλι η κρούση θα καταγραφεί στο συνεχές υπόστρωμα και όχι στην αθροιστική φωτοκορυφή.

Οι παράγοντες που επηρεάζουν την ένταση εμφάνισης του φαινομένου της πραγματικής σύμπτωσης μπορούν να διαχωριστούν σε παράγοντες οι οποίοι εξαρτώνται από τη ραδιενεργό πηγή (προς μέτρηση δείγμα) και παράγοντες οι οποίοι είναι ανεξάρτητοι αυτής. Οι παράγοντες που εξαρτώνται από την ραδιενεργό πηγή (οι οποίοι επηρεάζουν την

πιθανότητα της διαδοχικής εκπομπής δύο ή περισσοτέρων φωτονίων συγκεκριμένου ισοτόπου της εξεταζόμενης πηγής) είναι:

- Διάγραμμα διάσπασης του εξεταζόμενου ισοτόπου. Ισότοπα με πολύπλοκα διαγράμματα διάσπασης προκαλούν την έντονη παρουσία του φαινομένου της πραγματικής σύμπτωσης καθώς παρέχουν περισσότερες δυνατότητες εκπομπής διαδοχικών φωτονίων (Gehrke et al., 1977).
- Ο χρόνος ημιζωής των ενδιάμεσων σταθμών ενέργειας του πυρήνα του εξεταζόμενου ισοτόπου (η πιθανότητα πραγματικής σύμπτωσης εξαρτάται από το κατά πόσο ο χρόνος ημιζωής είναι μικρότερος, ή έστω συγκρίσιμος με τον χρόνο απόκρισης του συστήματος ανίχνευσης).
- Τα ποσοστά εκπομπής των φωτονίων που προκύπτουν κατά τη διάσπαση του πυρήνα.
- Το είδος της διάσπασης του πυρήνα (πχ σε ένα ισότοπο κατά τη διάσπαση του πυρήνα του, είναι δυνατή η εκπομπή ακτινών –Χ οι οποίες μπορούν να ανιχνευτούν «ταυτόχρονα» με τα εν συνεχεία διαδοχικά εκπεμπόμενα φωτόνια από τον πυρήνα του ατόμου συμβάλλοντας στην αύξηση της ένταση του φαινομένου της πραγματικής σύμπτωσης).
- Η περίπτωση ταυτόχρονης ανίχνευσης σωματιδίων-β και φωτονίων, η οποία καταγράφεται στη βιβλιογραφία σαν μια επιπλέον περίπτωση πραγματικής σύμπτωσης (Debertin and Helmer, 1988).

Παράγοντες που είναι ανεξάρτητοι από την ραδιενεργή πηγή (που επηρεάζουν την ταυτόχρονη ανίχνευση των εκπεμπόμενων από την ραδιενεργή πηγή φωτονίων) είναι οι:

- Χαρακτηριστικά της ανιχνευτικής διάταξης (απόδοση ανιχνευτικής διάταξης -Παράθυρο ανιχνευτή).
- Γεωμετρία πηγής (σημειακή πηγή, επιφανειακή πηγή, πηγή όγκου).
- Στερεά γωνία πηγής ανιχνευτή (Semkow et al., 1990)

Είναι εμφανές από τα όσα αναφέρθησαν, ότι το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης είναι ανεξάρτητο τόσο από τη ραδιενέργεια της πηγής όσο και από τα ηλεκτρονικά χαρακτηριστικά της ανιχνευτικής διάταξης.

Στην περίπτωση της παρούσας Δ.Δ. η πηγή η οποία χρησιμοποιήθηκε για την βαθμονόμηση του HPGe (α) είχε δύο τέτοια ισότοπα, το ⁸⁸Υ και το ⁶⁰Co. Στο σχήμα που ακολουθεί φαίνεται το διάγραμμα εκπομπής των δύο αυτών ισοτόπων.



Σχήμα Π.Δ.8 Διάγραμμα εκπομπής ⁶⁰Co και ⁸⁸Y

Με δεδομένα λοιπόν τα όσα αναφέρθηκαν προηγουμένως, γίνεται σαφές ότι το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης αποτελεί πηγή συστηματικού σφάλματος στον ποσοτικό προσδιορισμό του συγκεκριμένου δείγματος. Το σφάλμα το οποίο εισάγεται παραβλέποντας την επίδραση του προς εξέταση φαινομένου είναι συχνά μεγαλύτερο από την απαιτούμενη ακρίβεια της διαδικασίας. Όπως χαρακτηριστικά αναφέρεται από τους De Felice et al. (2000), για ανιχνευτή σχετικής απόδοσης 15% το σφάλμα μπορεί να κυμανθεί μεταξύ 20-50% για γεωμετρίες πηγής τοποθετημένης κοντά στον ανιχνευτή και μεταξύ 5-10% για πηγές όγκου. Μπορεί μάλιστα να αυξηθεί εξαιρετικά (έως και 100-500%) σε περιπτώσεις όπου χρησιμοποιούνται ανιχνευτές τύπου n, well detectors ή ανιχνευτές σχετικής απόδοσης 100% (De Felice et al., 2000). Στη περίπτωση για παράδειγμα του ανιχνευτή ΗPGe (α) δεδομένου ότι είναι ένας ανιχνευτής με σχετική απόδοση στα 91.5 %, το πρόβλημα δεν είναι αμελητέο.

Στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. ακολουθήθηκε η μέθοδος η οποία είχε αναπτυχθεί στο Ε.Π.Τ. - Ε.Μ.Π. στα πλαίσια της Δ.Ε. του Κ.Λ. Καρφόπουλου (2003), στη Δ.Ε. της Βασιλοπούλου (2008) και στη Δ.Ε. της Παπαδιονυσίου (2015) η οποία στηρίζεται στην χρήση κατάλληλων συντελεστών διόρθωσης προκειμένου να εξαλείφει το πρόβλημα. Τα βήματα που ακολουθούμε είναι τα εξής:

 Εντοπίζονται οι φωτοκορυφές των ισοτόπων της πηγής βαθμονόμησης που συμμετέχουν στο φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης. Η τιμή της απόδοσης (full energy peak efficiency) για κάθε μια από τις αντίστοιχες των φωτοκορυφών αυτών ενέργειες υπολογίζεται από τη σχέση:

$$eff = \frac{area}{yield \cdot time \cdot activity}$$
 (Σχέση Π.Δ.1)

 Προσδιορίζεται με υπολογιστικές μεθόδους (στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. με την χρήση του προγράμματος TrueCoinc και ακολούθως με EFFTRAN) ο συντελεστής διόρθωσης της επιφάνειας της φωτοκορυφής C Προσδιορίζεται η διορθωμένη τιμή της επιφάνειας της φωτοκορυφής, area΄ από τη σχέση:

$$area' = \frac{area}{c}$$
 (Σχέση Π.Δ.2)

4. Τέλος, προσδιορίζεται η νέα διορθωμένη τιμή της απόδοσης του ανιχνευτή:

$$eff' = \frac{area'}{yield \cdot time \cdot activity} = \frac{area}{C \cdot yield \cdot time \cdot activity}$$
(Σχέση Π.Δ.3)

και άρα τελικά, για την διορθωμένη απόδοση προκύπτει,

$$eff' = rac{eff}{c}$$
 (Σχέση Π.Δ.4)

Ακολουθώντας τα βήματα αυτά για κάθε ενέργεια φωτονίου των ισοτόπων που συμμετέχουν στο φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης στην πρότυπη πηγή, προκύπτει η διορθωμένη καμπύλη βαθμονόμησης αιχμής της ανιχνευτικής διάταξης eff'(Ε). Η καμπύλη αυτή, απαλλαγμένη από την επίδραση του φαινομένου, μπορεί να χρησιμοποιηθεί για τον υπολογισμό της συγκέντρωση ισοτόπων στο εξεταζόμενο δείγμα.

Για τις υπό ανάλυση φωτοκορυφές διακρίνονται οι εξής περιπτώσεις :

 Το προς εξέταση φωτόνιο δε συμμετέχει σε καμία περίπτωση summing in ή summing out. Στην περίπτωση αυτή η ζητούμενη ραδιενέργεια θα υπολογίζεται από τη σχέση:

$$activity = \frac{area}{yield \cdot time \cdot eff'}$$
(Σχέση Π.Δ.5)

 Το προς εξέταση φωτόνιο συμμετέχει σε κάποια περίπτωση summing in ή/και summing out effect. Στην περίπτωση αυτή, αν ληφθεί υπόψη η διορθωμένη ως προς το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης τιμή της ραδιενέργειας δίνεται από τη σχέση:

activity' =
$$\frac{area'}{yield \cdot time \cdot eff'}$$
 (Σχέση Π.Δ.6)

με

 Στην ειδική περίπτωση που η φωτοκορυφή και το ισότοπο που εξετάζονται ταυτίζονται με την φωτοκορυφή και το αντίστοιχο ισότοπο της πρότυπης πηγής βαθμονόμησης δεν απαιτείται διόρθωση. Μπορούν επομένως να χρησιμοποιηθούν οι άμεσα μετρούμενες (χωρίς διόρθωση) τιμές του Area τόσο για την πρότυπη πηγή βαθμονόμησης όσο και για το δείγμα που εξετάζεται.

Διορθώσεις σημείων λόγω του φαινομένου πραγματικής σύμπτωσης με το πρόγραμμα TrueCoinc

Ο υπολογισμός των συντελεστών διόρθωσης για τις αποδόσεις του ανιχνευτή HPGe (α) για τις περιπτώσεις του ⁸⁸Y και ⁶⁰Co έγινε με χρήση του προγράμματος TrueCoinc (σύντμηση του όρου True Coincidence). Ο κώδικας αυτός έχει αναπτυχθεί στο Ινστιτούτο Πειραματικής Φυσικής του πανεπιστημίου Kossuth της Ουγγαρίας (S.Sudar, 2000) και διατίθεται δωρεάν από το Διεθνή Οργανισμό Ατομικής Ενεργείας (Δ.Ο.Α.Ε) στο πλαίσιο ενός πακέτου προγραμμάτων γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης (IAEA-TECDOC-1275).

Πρόκειται για ένα πρόγραμμα ιδιαιτέρως φιλικό προς το χρήστη το οποίο έχει αξιοποιηθεί σε εργασίες δημοσιευμένες σε επιστημονικά περιοδικά (El-Gharbawy H. A.et al., 2005; Yücel H. et al., 2009) και σε εργασίες που έχουν εκπονηθεί από το Ε.Π.Τ.-Ε.Μ.Π. όπως στη Δ.Δ. του κ. Καρφόπουλου (2012), στην Δ.Ε. της κ. Βασιλοπούλου (2008) και του κ. Χιώνη (2011). Θα ακολουθήσει μία συνοπτική περιγραφή του προγράμματος TrueCoinc. Εκτενέστερη ανάλυση μπορεί να αναζητηθεί σε παλιότερη εργασία που εκπονήθηκε στο Ε.Π.Τ.- Ε.Μ.Π. (Δ.Ε. Κ.Λ.Καρφόπουλος, 2003).

Στόχος του συγκεκριμένου προγράμματος, είναι ο υπολογισμός συντελεστών διόρθωσης επιφάνειας σχηματιζόμενων φωτοκορυφών λόγω του φαινομένου της πραγματικής σύμπτωσης. Για το σκοπό αυτό χρησιμοποιούνται βάσεις δεδομένων, όπως η ευρέως διαδεδομένη ENSDF. Σε αυτές τις βάσεις δεδομένων περιέχονται όλες οι απαιτούμενες πληροφορίες σχετικά με τα διαγράμματα διάσπασης των ισοτόπων, γεγονός που διευκολύνει το χρήστη καθώς δεν απαιτείται η βιβλιογραφική αναζήτηση των πολλών δεδομένων που το πρόγραμμα χρησιμοποιεί. Το πρόγραμμα εξετάζει τις περιπτώσεις πραγματικής σύμπτωσης μεταξύ διαδοχικών φωτονίων (περίπτωση γ-γ) και φωτονίων και ακτινών-Χ (περίπτωση γ-Χ), όμως δεν εξετάζει την περίπτωση σύμπτωσης γ-β (λόγω της ακτινοβολίας πέδησης).

Ο χρήστης το μόνο που πρέπει να κάνει κατά την χρήση του προγράμματος TrueCoinc είναι το να εισάγει τις παραμέτρους του εξεταζόμενου προβλήματος, δηλαδή να περιγράψει την περί ης ο λόγος ανιχνευτική διάταξη και τη γεωμετρία δείγματος-ανιχνευτή που εξετάζεται, μέσω των καμπυλών απόδοσης αιχμής και ολικής απόδοσης. Ο ορισμός των καμπυλών αυτών γίνεται συναρτήσει της ενέργειας με διάφορες μορφές, η τελική επιλογή των οποίων εξαρτάται από το χρήστη. Βέβαια όλο αυτό προϋποθέτει την ύπαρξη βαθμονόμησης της απόδοσης του ανιχνευτή (αιχμής και ολικής απόδοσης).

Η εισαγωγή της ολικής απόδοσης (χρησιμοποιείται για τον υπολογισμό summing out) πραγματοποιείται από τον χρήστη με την επιλογής efficiency από το menu επιλογών που το συγκεκριμένο πρόγραμμα παρέχει. Η συνάρτηση της ολικής απόδοσης του προς εξέταση ανιχνευτή δίνεται με τις ακόλουθες επιλογές:

 <u>Relative to peak efficiency</u>. Στην περίπτωση αυτή, η συνάρτηση της απόδοσης αιχμής με την ενέργεια, είναι απαραίτητο να είναι γνωστή. Από τη στιγμή που θα την επιλέξει ο χρήστης, θα ανοίξει ένα παράθυρο διαλόγου και ο χρήστης θα πρέπει να πραγματοποιήσει τον ορισμό με την βοήθεια των παραμέτρων α₀, α₁, α₂ της ακόλουθης σχέσης:

$$\frac{Eff_{tot}}{Eff_{peak}} = e^{\alpha_0 + \alpha_1 \cdot \ln(E) + \alpha_2 \cdot (\ln(E))^2}$$
(Σχέση Π.Δ.8)

Το πλεονέκτημα της χρήσης αυτού του τρόπου, είναι το ότι ο λόγος των αποδόσεων είναι ανεξάρτητος από την γεωμετρία της μέτρησης.

 <u>Power functions</u>. Με επιλογή αυτής της δυνατότητας απαιτείται απλά η εισαγωγή των παραμέτρων α,b,c,d,e1,f,g και h της ακόλουθης σχέσης:

$$Eff_{tot} = \alpha \cdot E^b + c \cdot E^d + el \cdot E^f + g \cdot e^{h \cdot E}$$
(Σχέση Π.Δ.9)

• <u>Negative Power Series</u>. Επιλέγοντας την ακόλουθη μορφή σχέσης (Σχέση Π.Δ.10):

$$Eff_{tot} = \alpha \cdot E^{-1} + b \cdot E^{-2} + c \cdot E^{-3} + d \cdot E^{-4} + e \cdot E^{-5} + g \cdot E^{-6} + h \cdot E^{-7}$$

Για τη χρήση της παραπάνω σχέσης απαιτείται ο ορισμός των παραμέτρων α, b, c, d, e, f και g.

Log(E) Transformed Power Series. Πρόκειται για τη σχέση που χρησιμοποιήθηκε στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. Με επιλογή αυτής της δυνατότητας απαιτείται η εισαγωγή των παραμέτρων α, b, c, d, e, f και g προκειμένου να ορισθεί πλήρως η ακόλουθη σχέση (Σχέση Π.Δ.11):

$$Eff_{tot} = \frac{1}{E} (a + b \cdot \ln(E)^{-1} + c \cdot \ln(E)^{-2} + d \cdot \ln(E)^{-3} + e \cdot \ln(E)^{-4} + g \cdot \ln(E)^{-6} + h \cdot \ln(E)^{-6}$$

Με την επιλογή του παραθύρου peak efficiency της επιλογής efficiency από το menu επιλογών μπορεί να εισαχθεί και η απόδοση αιχμής με μια από τις ακόλουθες μορφές:

 <u>Power functions</u>. Με επιλογή αυτής της δυνατότητας απαιτείται απλά η εισαγωγή των παραμέτρων α, b, c, d, e, f, g και h της ακόλουθης σχέσης:

$$Eff_{peak} = \alpha \cdot E^b + c \cdot E^d + el \cdot E^f + g \cdot e^{h \cdot E}$$
(Σχέση Π.Δ.12)

 Exponential log(E) Power series. Με επιλογή αυτής της δυνατότητας ο χρήστης θα πρέπει να πραγματοποιήσει τον ορισμό με την βοήθεια των παραμέτρων α₀, α₁, α₂, α₃ της ακόλουθης σχέσης:

$$Eff_{peak} = e^{\alpha_0 + \alpha_1 \cdot \ln(E) + \alpha_2 \cdot (\ln(E))^2 + \alpha_3 \cdot (\ln(E))^3}$$
(Σχέση Π.Δ.13)

• <u>Negative Power Series</u>. Επιλέγοντας την ακόλουθη μορφή σχέσης (Σχέση Π.Δ.14):

 $Eff_{peak} = \alpha_0 + \alpha \cdot E^{-1} + b \cdot E^{-2} + c \cdot E^{-3} + d \cdot E^{-4} + e \cdot E^{-5} + g \cdot E^{-6} + h \cdot E^{-7}$

απαιτείται ο ορισμός των παραμέτρων α₀,α,b,c,d,e,f,g και h.

 Log(E) Transformed Power Series. Με επιλογή αυτής της δυνατότητας απαιτείται η εισαγωγή των παραμέτρων α, b, c, d, e, f και g προκειμένου να ορισθεί πλήρως η ακόλουθη σχέση (Σχέση Π.Δ.15):

$$Eff_{peak} = \frac{1}{E} (a + b \cdot \ln(E)^{-1} + c \cdot \ln(E)^{-2} + d \cdot \ln(E)^{-3} + e \cdot \ln(E)^{-4} + g$$
$$\cdot \ln(E)^{-5} + h \cdot \ln(E)^{-6}$$

Σε κάθε περίπτωση, παρέχεται η δυνατότητα ορισμού ελάχιστης ενέργειας και ενδιάμεσης ενέργειας, σε περίπτωση πιθανής διάκρισης δύο ενεργειακών περιοχών.

Ο χρήστης μπορεί να επιλέξει την επιθυμητή βάση δεδομένων που θα χρησιμοποιηθεί για τους υπολογισμούς του μέσω της επιλογής Database του menu επιλογών. Στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. χρησιμοποιήθηκε η βάση δεδομένων ENSDF/2.

Μετά το πέρας των υπολογισμών, προκύπτει αρχείο εξόδου το οποίο περιέχει τις ακόλουθες στήλες:

- Νο : Αριθμός της ενεργειακής στάθμης που εξετάζεται.
- E[keV]: Η ενέργεια της εξεταζόμενης στάθμης.
- Rel.Int.: Η πιθανότητα εκπομπής των ακτίνων γ ή Χ.
- Err[%]: Το σχετικό σφάλμα του ποσοστού εκπομπής των ακτίνων γ ή Χ.
- TrueCC: Ο ζητούμενος συντελεστής διόρθωσης.
- Eff: Η από το πρόγραμμα υπολογιζόμενη απόδοση αιχμής του ανιχνευτή.
- TotEff: Η από το πρόγραμμα υπολογιζόμενη ολική απόδοση του ανιχνευτή.
- TrueCI: Συντελεστής διόρθωσης επιφάνειας σχηματιζόμενης φωτοκορυφής λόγω των απωλειών κρούσεων εξαιτίας της παρουσίας του φαινομένου. Είναι πάντοτε μικρότερος ή ίσος του 1.
- TrueCg: Συντελεστής διόρθωσης επιφάνειας σχηματιζόμενης φωτοκορυφής λόγω των επιπλέον κρούσεων που εμφανίζονται εξαιτίας της παρουσίας του φαινομένου. Είναι πάντοτε μεγαλύτερος ή ίσος του 1.

Διορθώσεις σημείων λόγω του φαινομένου πραγματικής σύμπτωσης με χρήση του κώδικα EFFTRAN

Ο κώδικας EFFTRAN αποτελεί (όπως και ο κώδικας PENELOPE) εργαλείο για τη μελέτη της μεταφοράς αποδόσεων από μία γεωμετρία σε άλλη, από το ένα υλικό πηγής σε άλλο και του φαινομένου της πραγματικής σύμπτωσης στη γ-φασματοσκοπία. Δημιουργήθηκε στο SCK•CEN (Belgian Nuclear Research Centre) και διατίθεται δωρεάν. Ο κώδικας EFFTRAN βασίζεται και αυτός σε τεχνικές Monte Carlo, και χρησιμοποιεί την καμπύλη βαθμονόμησης απόδοσης για μια γεωμετρία πηγής-ανιχνευτή, η οποία περιγράφεται από το χρήστη, προκειμένου να υπολογίσει μια νέα καμπύλη βαθμονόμησης απόδοσης για μια διαφορετική γεωμετρία δείγματος ανιχνευτή που θα του οριστεί από τον χρήστη. Επιπλέον, χρησιμοποιώντας τα ίδια δεδομένα ο κώδικας υπολογίζει και συντελεστές διόρθωσης πραγματικής σύμπτωσης (true coincidence) για τα ισότοπα και τις ενέργειες που επιθυμεί ο χρήστης, για ακτίνες-Υ.

Ο κώδικας EFFTRAN (όπως και ο κώδικας PENELOPE) είναι γραμμένος σε γλώσσα Fortran 77 και λειτουργεί σε περιβάλλον Windows μέσω του προγράμματος των Office, Excel, χρησιμοποιώντας τα χαρακτηριστικά του Visual Basic for Applications (VBA), καθιστώντας τον ιδιαίτερα φιλικό προς τον χρήστη.

Ουσιαστικά, ο χρήστης αλληλεπιδρά με τρία κύρια φύλλα του Excel:

- το Efficiency Transfer για τους υπολογισμούς μεταφοράς απόδοσης από τη μία γεωμετρία δείγματος στην άλλη
- το Coincidence Summing για τον προσδιορισμό των συντελεστών διόρθωσης για ισότοπα τα οποία αντιμετωπίζουν το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης
- το Material, το οποίο επιτρέπει στο χρήστη την ένταξη νέων υλικών στο πρόγραμμα.

Η εφαρμογή του κώδικα περιορίζεται σε κυλινδρικούς ανιχνευτές και δείγματα και σε αξονικά συμμετρικές γεωμετρίες, ή σημειακές πηγές. Επισημαίνεται ότι ο κώδικας δεν μπορεί να λειτουργήσει στην περίπτωση που ανιχνευτών τύπου φρέατος (Well-type detectors).

Στα πλαίσια της Δ.Δ. ο κώδικας EFFTRAN χρησιμοποιήθηκε προκειμένου να προσδιοριστούν οι συντελεστές διόρθωσης λόγω των φαινομένων της πραγματικής σύμπτωσης στην περίπτωση του HPGe (α). Ο κώδικας αυτός χρησιμοποιήθηκε ανεξάρτητα του TrueCoinc, και ο σκοπός ήταν η συγκριτική μελέτη των αποτελεσμάτων, για την πληρότητα της παρούσας Δ.Δ, και τον έλεγχο μέσω στατιστικού τεστ (U-test) του κατά πόσο οι συντελεστές διόρθωσης που προκύπτουν από τις δύο αυτές μεθόδους διαφέρουν ή όχι στατιστικά.

Το πρόγραμμα EFFTRAN χρησιμοποιεί την μέθοδο της μεταφοράς απόδοσης για τους υπολογισμούς, και καταλήγει στον προσδιορισμό των λεγόμενων «εικονικών» αποδόσεων, τόσο για την απόδοση φωτοκορυφής όσο και για την ολική απόδοση. Ως «εικονική» ορίζεται η απόδοση (είτε φωτοκορυφής είτε ολική), που δεν συνυπολογίζει την πιθανότητα να υπάρχει κάποια σκέδαση στις ανενεργές περιοχές του ανιχνευτή, όπως είναι η νεκρή περιοχή (dead layer), το περίβλημα του ανιχνευτή ή το ίδιο το δείγμα, περιοχές οι οποίες λαμβάνονται υπόψη προκειμένου να προσδιοριστεί η πραγματική ολική απόδοση.

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Ε

Hysplit

Πολύ σημαντικές πληροφορίες, στις μελέτες σχετικές με τα επίπεδα ατμοσφαιρικών ρύπων, εξάγονται με την μελέτη της κίνησης των αερίων μαζών, και ειδικότερα της πορείας που ακολούθησαν οι αέριες μάζες προκειμένου να καταλήξουν στο σημείο δειγματοληψίας. Όπως έχουμε ήδη αναφέρει σε προηγούμενα κεφάλαια, οι αέριες μάζες περνώντας απλά ή και μένοντας πάνω από κάποια τοποθεσία μπορούν να λάβουν και διαφορετικές ιδιότητες, όπως το να συμπαρασύρουν τυχόν τοπικούς ρύπους, να αυξηθεί η διάμετρος των ΑΣ λόγω αυξημένης υγρασίας της περιοχής κλπ.

Στα πλαίσια της εν λόγω Δ.Δ. εργαστήκαμε μελετώντας τις οπισθοτροχιές των αερίων μαζών (back trajectory analysis). Μελετήσαμε δηλαδή την πορεία που ακολούθησαν οι αέριες μάζες πηγαίνοντας πίσω στον χρόνο, με αφετηρία την χρονική στιγμή ενδιαφέροντος και συντεταγμένες που αντιστοιχούν στον σταθμό μέτρησης ποιότητας του ατμοσφαιρικού αερολύματος του Εργαστηρίου Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος».

Προκειμένου τον προσδιορισμό των οπισθοτροχιών του ατμοσφαιρικού αερολύματος χρησιμοποιήθηκε το μοντέλο HYSPLIT (Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model) (Draxler and Hess, 1997; Draxler and Hess, 1998; Draxler and Rolph, 2012). Το μοντέλο HYSPLIT δημιουργήθηκε από το ARL (Air Resources Laboratory), του NOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration) των ΗΠΑ και χρησιμοποιείται για μία γρήγορη επισκόπηση της κίνησης των αερίων μαζών προκειμένου την απόκριση σε συνθήκες έκτακτης ανάγκης, σε περιπτώσεις που μας ενδιαφέρει η μελέτη ενός μεμονωμένου περιστατικού αλλά και γενικά σε μελέτες που έχουν να κάνουν με κλιματολογικές μεταβολές (Draxler and Hess, 1998). Επίσης δίνονται πληροφορίες και για την διασπορά και εναπόθεση των ρύπων, τους υπολογισμούς του ύψους του οριακού στρώματος, και γενικά μελετών που έχουν να κάνουν με τα βασικά χαρακτηριστικά του αερολύματος. Επίσης δίνεται και η δυνατότητα να χρησιμοποιηθούν είτε δεδομένα πρόβλεψης είτε αποθηκευμένα δεδομένα του παρελθόντος (Draxler and Hess, 1998). Ένα από τα πιό βασικά χαρακτηριστικά των δεδομένων που προκύπτουν από το HYSPLIT είναι το ότι είναι ευαίσθητα στην κατακόρυφη κίνηση των αερίων μαζών (Draxler and Hess, 1998).

Το μοντέλο HYSPLIT χρησιμοποιεί το σύστημα συντεταγμένων κατά Lagrangian, δηλαδή ακολουθεί τα γεγονότα που συνδέονται με ένα συγκεκριμένο σωματίδιο ή ροή. Αυτό σημαίνει ότι η οριζόντια μετακίνηση του σωματιδίου προσδιορίζεται ανεξάρτητα από τους υπολογισμούς της διάχυσης. Η οριζόντια μετακίνηση ενός σωματιδίου συναρτήσει του χρόνου μπορεί να προσεγγισθεί με μία απλή τροχιά για την οποία απαιτείται πεδίο ταχύτητας σε σύστημα τριών συντεταγμένων (Draxler and Hess, 1998).

Το μοντέλο HYSPLIT πέρασε από πολλά στάδια εξέλιξης. Η πρώτη εκδοχή του μοντέλου αναπτύχθηκε το 1982 από τους Draxler και Taylor όπου η διάχυση των αερίων μαζών θεωρούταν ότι συνέβαινε με ομοιόμορφη ανάμιξη κατά την διάρκεια της ημέρας, και καθόλου κατά τη διάρκεια της νύχτας. Η διάχυση εξαιτίας των ριπών των ανέμων εισήχθη χωρίζοντας το στρώμα ανάμειξης της ημέρας σε μικρότερα στρώματα κάθε νύχτα. Στην επόμενη έκδοση (Draxler and Stunder, 1988), η ένταση της ανάμιξης των μεταβλητών εισήχθη και βασίστηκε σε προφίλ διάχυσης τα οποία διέφεραν τόσο χρονικά όσο και χωρικά. Σε επόμενη έκδοση (HYSPLIT_3 - Draxler, 1990; 1992), ξεκίνησε η χρήση μετεωρολογικών δεδομένων είτε από αναλύσεις η από βραχυπρόθεσμες προβλέψεις από μοντέλα πρόγνωσης καιρού. Πολλά σημαντικά νέα χαρακτηριστικά προστέθηκαν στην τελευταία έκδοση του μοντέλου, όπως βελτιστοποίηση των αλγορίθμων που περιγράφουν την οριζόντια μετακίνηση.

Στο HYSPLIT οι υπολογιστικές μέθοδοι αποτελούνται από 4 συνιστώσες· μεταφορά των σωματιδίων με βάση την διεύθυνση του μέσου επικρατούντος ανέμου, από έναν συντελεστή τυρβώδους διάχυσης, από την βαρυτική εναπόθεση και την απομείωση και τέλος από τους υπολογισμούς της συγκέντρωσης του αέρα. Ένα μεγάλο πλήθος σωματιδιακών ρύπων (τα οποία συμβατικά τα ονομάζουμε σωματίδια, αλλά στην πραγματικότητα είναι υπολογιστικά σημεία τα οποία μπορεί κάλλιστα να είναι είτε σωματίδια είτε αέρια) εκπέμπονται από την τοποθεσία της πηγής σε κάθε χρονικό βήμα και παθητικά ακολουθούν την πορεία του ανέμου. Η μέση τροχιά που ακολουθεί ένα σωματίδιο είναι ουσιαστικά η ενσωμάτωση του διανύσματος της θέσης ενός σωματιδίου στον χώρο και στον χρόνο. Ο τυρβώδης συντελεστής της κίνησης καθορίζει την διάχυση του νέφους του ρύπου και υπολογίζεται προσθέτοντας μία τυχαία συνιστώσα στη μέση ταχύτητα της οριζόντιας μεταφοράς σε κάθε μία από τις τρι-διάστατες συνιστώσες της διεύθυνσης του ανέμου. Η κατακόρυφη και η οριζόντια τύρβη υπολογίζεται από την τοπική σταθερότητα η οποία υπολογίζεται από τα προφίλ του ανέμου και της θερμοκρασίας. Οι συγκεντρώσεις του αέρα ή οι συντελεστές διάχυσης σε αυτή τη περίπτωση υπολογίζονται αθροίζοντας τη μάζα κάθε σωματιδίου (ή της ενεργότητας στην περίπτωση που έχουμε ραδιενεργές εκπομπές) καθώς περνάει πάνω από ένα κελί του πλέγματος υπολογισμού και διαιρώντας το αποτέλεσμα αυτό με τον όγκο του αντίστοιχου κελιού.

Το μοντέλο HYSPLIT μπορεί να λειτουργήσει είτε online, μέσω του ιστοτόπου του NOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration, U.S. department of Commerse), είτε μέσω κάποιων ρουτινών στον προσωπικό H/Y οι οποίες είναι διαθέσιμες για εγκατάσταση στον ίδιο ιστότοπο. Στην δεύτερη περίπτωση για τους υπολογισμούς απαιτούνται μετεωρολογικά δεδομένα, τα οποία είναι διαθέσιμα από τη βάση δεδομένων GDAS (Global Data Assimilation System) με χρονική ανάλυση 6 ώρες. Ανεξάρτητα από την μορφή του HYSPLIT την οποία θα επιλέξει ο χρήστης προκειμένου την εξαγωγή των δεδομένων (online ή το εργαλείο που μπορεί να εγκατασταθεί στον H/Y) που συνοδεύουν τις οπισθοτροχιές των ΑΣ, τα αποτελέσματα είναι αρχεία εξόδου σε μορφή .txt και μία οπτικοποίηση των οπισθοτροχιών πάνω στον χάρτη με σημείο αναφοράς τις συντεταγμένες του σταθμού μέτρησης ποιότητας του ατμοσφαιρικού αερολύματος του Εργαστηρίου Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος».

Τελικά, αποφασίσθηκε στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. να εργαστούμε με την online εκδοχή, καθώς είναι η πλέον απλουστευμένη, δίνει τις πληροφορίες που χρειαζόμαστε, δεν δεσμεύει τις υπολογιστικές ικανότητες του Η/Υ, και δεν απαιτεί από τον χρήστη το να διαθέτει πακέτα στον υπολογιστή του προκειμένου την οπτικοποίηση των τροχιών. Ακολουθεί η επεξήγηση της λειτουργίας του online προγράμματος με εικόνες και ακριβή περιγραφή των βημάτων που πρέπει να ακολουθηθούν προκειμένου ο χρήστης να δημιουργήσει τα αρχεία οπισθοτροχιών.

<u>Βήμα 1°</u>

Στην αρχική σελίδα του προγράμματος HYSPLIT επιλέγουμε την υπερσύνδεση "Run HYSPLIT Trajectory Model"



Σχήμα Π.Ε.1 Αρχική σελίδα του προγράμματος HYSPLIT

<u>Βήμα 2°</u>

Στην επόμενη οθόνη επιλέγουμε το "Compute archive trajectories" στην περίπτωση που επιθυμούμε να αποκτήσουμε δεδομένα που περιγράφουν τις οπισθοτροχιές των αερίων μαζών (όπως συνέβη και στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ.), αναφερόμενοι σε παρελθοντικά δεδομένα.



Σχήμα Π.Ε.2 Επιλογή της δυνατότητας υπολογισμού αρχείων οπισθοτροχιών

<u>Βήμα 3°</u>

Στην επόμενη οθόνη επιλέγουμε το να έχουμε μία τροχιά η οποία θα ξεκινά από κάθε τοποθεσία

Home > READY > T	ransport & Dispersion Modeling > HYSPLIT > HYSPLIT Trajectory Model	
READY us	ers produced 965 un-registered HYSPLIT simulations since 00 UTC	today!
Type of Traje	ctory(ies)	
Number of Trajectory Starting Locations	 1 Note: By choosing just one source location, more options for selecting the location will be presered page, such as choosing by latitude/longitude, by WMO ID, or by plant location. Multiple source location and provide positions. This option is ignored for trajectory ensemble and frequency and provide positions. This option is ignored for trajectory ensemble and frequency and provide positions. The provide position is ignored for trajectory ensemble and frequency and provide positions. 	nted on the next ocations limit the juency.
Type of Trajectory	Normal O Matrix O Ensemble O Frequency	
	Nexte	
Details		
Trajectory Matri	x	6 De
The trajectory matrix op grid point and trajectory between the lower left g	tion will run a grid of trajectories bounded by the first 2 source locations (trajectory 1 is the lower left 2 is the upper right grid point) and evenly spaced with a grid increment given by the distance rld point (trajectory 2) and trajectory 3. Only one height is allowed.	K

Σχήμα Π.Ε.3 Επιλογή πλήθους τροχιών από ένα σημείο

<u>Βήμα 4°</u>

Ανάλογα με την ημερομηνία αναφοράς της οπισθοτροχιάς δίνεται η δυνατότητα επιλογής από το πτυσσόμενο μενού του Meteorology του αντίστοιχου πακέτου μετεωρολογικών δεδομένων. Στην δική μας την περίπτωση, βάσει του ότι οι οπισθοτροχιές που χρειαζόμαστε αντιστοιχούν σε ημερομηνίες δειγμάτων από τον Μάρτιο του 2011 και έπειτα, χρησιμοποιήθηκε το πακέτο δεδομένων που αναγράφεται στην εικόνα που ακολουθεί. Επίσης, στο βήμα αυτό ο χρήστης οφείλει να ορίσει το σημείο αναφοράς για τις οπισθοτροχιές του. Στην συγκεκριμένη περίπτωση πρόκειται για τον σταθμό μέτρησης της ποιότητας του ατμοσφαιρικού αερολύματος του Εργαστηρίου Ραδιενέργειας Περιβάλλοντος του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος». Ο ορισμός γίνεται είτε πάνω σε κάποιον χάρτη είτε δίνοντας τις συντεταγμένες του σημείου στο δεκαδικό σύστημα. Στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. επιλέχθηκε ο δεύτερος τρόπος και εισήχθησαν οι συντεταγμένες του σταθμού ήτοι 37.9972917 Ν, και 23.8175444 Ε.

	spersion	moteur	y ×mar		Tarta Tajetory	ritalei				
teorology & Starti	ng Loc	ation	(s)	_						
Trajectory Calculation										
<u>Meteorology:</u>	GDAS (1 degree, g	olobal, 2006	-present)	6	•	,	tore info)	•	
Meteorology: Source Location (enter using Open Map Display	GDAS (one of the	1 degree, g following r	global, 2006 methods):	-present)	Lanoitude:	•	IW	tore info	•	
Meteorology: Source Location (enter using Open Map Display Decimal Degrees Latitude: DDD/MM/SS Latitude:	GDAS (one of the	1 degree, (following i	global, 2006 methods):	-present)	Longitude:	•	W	tore info 🕽	W	•
Meteorology: Source Location (enter using Open Map Display Decimal Degrees Latitude: DDD/MM/SS Latitude:	GDAS (one of the Deg.	1 degree, g following i N Min,	global, 2006 methods): • Sec,	-present)	Longitude:	• Deg.	W Min.	v Sec.	•	Ŧ
Meteorology: Source Location (enter using Open Map Display Decimal Degrees Latitude: DDD/MM/SS Latitude: City (Country or State: nam	GDAS (one of the Deg. ne: lat: lon):	1 degree, g following i N Min.	global, 2006 methods): • Sec,	-present)	Longitude:	• Deg.	W Min.	v Sec.		·
Meteorolomy: Source Location (enter using Open Map Display Decimal Degrees Latitude: DDD/MM/SS Latitude: City (Country or State: nam Airport or WMO ID (i.e., dca)	GDAS (one of the Deg.):	1 degree, g following r N Min.	alobal. 2006 methods): • Sec. ID Looks	i-present)	Longitude:	• Deg.	W Min.	tore info	- W	•

Σχήμα Π.Ε.4 Επιλογή πακέτου μετεωρολογικών δεδομένων και συντεταγμένων του σημείου αναφοράς

<u>Βήμα 5°</u>

Στην οθόνη που ακολουθεί, ο χρήστης μπορεί να επιλέξει από το πτυσσόμενο μενού "Archive File" την εβδομάδα που αντιστοιχεί στην ημερομηνία για την οποία επιθυμεί να αποκτήσει τα δεδομένα οπισθοτροχιών.

ne >R <mark>EADY</mark> >Transport & Dis	persion Modeling > HYSPLIT > HYSPLIT Trajectory Model	
Meteorology: Archive	d GDAS1	
Source Location: Lat: 25	1297000 Lon: 121.538000	
Archive File: current7days •		
	Next>>	



<u>Βήμα 6°</u>

Στην οθόνη που ακολουθεί, ο χρήστης ενεργοποιεί την επιλογή "Backward" προκειμένου για δεδομένα οπισθοτροχιών και ορίζει την ημερομηνία και την ώρα αναφοράς. Επιλέγει το πόσες ώρες πίσω επιθυμεί να αφορά η ανάλυσή του (στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. επιλέχθηκε 180hr ήτοι μία εβδομάδα), και τα ύψη από τα οποία διέρχονται οι τροχιές από το σημείο αναφοράς (στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. επιλέχθησαν τα 300-700-1000 mAGL). Επίσης ο χρήστης μπορεί να επιλέξει τον παράγοντα εστίασης (zoom factor, που επιλέχθηκε στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. επιλέχθησαν τα 300-700-1000 mAGL). Επίσης ο χρήστης μπορεί να επιλέξει τον παράγοντα εστίασης (zoom factor, που επιλέχθηκε στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. να ισούται με 85). Τέλος ο χρήστης μπορεί να κάνει διάφορες επιλογές σχετικές με χρώματα στις τροχιές και σύμβολα, αλλά και την επιλογή κάποιον πρόσθετων δεδομένων. Στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. κρατήθηκαν οι προκαθορισμένες επιλογές ως προς τις οπισθοτροχιές, και επί πρόσθετα επιλέχθηκε η επιλογή "mixed layer depth" προκειμένου την απόκτηση δεδομένων για το ύψος του οριακού στρώματος. Τέλος ο χρήστης πρέπει να πατήσει το "request trajectory".

odel Run Details				Request trajec	tory
archived data file (GDAS1) has dat	a beginning at <u>03/15</u>	/16 0000 UTC,			
Model Parameters					
Trajectory direction:	 Forward Backward ((Change the default	start time!)	Hore info 🕨	
Vertical Motion:	 Model verti Isobaric Isentropic 	cal velocity		More info 🕨	
Start time (UTC): Current time: 16:00	year 16 •	month 03	day 15 V	hour 16 •	More info 🕨
Total run time (hours):	24	148°			More info 🕨
Start a new trajectory every:	0 hrs	Maximum number o	f trajectories:	24	More info 🕨
Start 1 latitude (degrees):	25.297000				More info 🕨
Start 1 longitude (degrees):	121.538000				More info 🕨
Start 2 latitude (degrees):					
Start 2 longitude (degrees):					
Start 3 latitude (degrees):					
Start 3 longitude (degrees):					
Level 1 height:	500		meters AGL	meters AMSL	More info 🕨
Level 2 height:	0				
Level 3 height:	0				

GIS output of contours?	None	⊖ Go	ogle Earth (km	nz)	GIS Shapefile	More info 🕨
The following options apply (only to the G	IF, PDF, and	PS results (n	ot Google Ear	th)	
Plot resolution (dpi):	96 🔹				More info 🕨	
Zoom factor:	100				More info 🕨	
Plot projection:	Default	O Polar	O Lambert	O Mercator	More info 🕨	
Vertical plot height units:	O Pressure	Meters AGL	O Theta		More info 🕨	
Label Interval:	O No labels	0 1 hour	6 hours	0 12 Hours	24 hours More info	
Plot color trajectories?	· Yes	O No				
Use same colors for each source location?	🖲 Yes	O No			More info 🕨	
Plot source location symbol?	• Yes	O No				
Distance circle overlay:	None	O Auto			More info 🕨	
U.S. county borders?	O Yes	· No			More info 🕨	
Postscript file?	😔 Yes	No No			More Info	
PDF file?	· Yes	O No				
Plot meteorological field along trajectory?	© Yes	🖲 No	Note: Only ch meteorologica below to plot	ioose one al variable from	More info 🕨	
Dump meteorological data along trajectory:	Certain H Potential Ambient Rainfall (r Mixed Lay Relative F	eight (m) Temperature (H Femperature (K nm per hr) ver Depth (m) Rumidity (%)	0 0		More info 🕨	
	Downward	I Solar Radiation	n Flux (W/m**	2)		

Σχήμα Π.Ε.6 Ορισμός βασικών χαρακτηριστικών των οπισθοτροχιών ενδιαφέροντος

<u>Βήμα 7°</u>

Στο σημείο αυτό ο χρήστης μπορεί να πάρει τα δεδομένα τα οποία έχουν προκύψει από την ανάλυση σε μορφή .txt αρχείου και εικόνας.



Σχήμα Π.Ε.7 Τέλος των υπολογισμών – απόκτηση δεδομένων

Στα σχήματα που ακολουθούν παρουσιάζονται ενδεικτικά αρχεία εξόδου όπως προκύπτουν από την παραπάνω εργασία.

	4	1												
GDAS		17	2	8	0	0								
GDAS		17	2	15	0	0								
GDAS		17	2	22	0	0								
GDAS		17	3	1	0	0								
	3 BA	CKWARON	IEGA											
	17	2	23	12	37.997	23.818	300							
	17	2	23	12	37.997	23.818	700							
	17	2	23	12	37.997	23.818	1000							
	2 PR	ESSURE MIX	(DEPTH											
	1	1	17	2	23	12	0	0	0	37.997	23.818	300	968.1	273.5
	2	1	17	2	23	12	0	0	0	37.997	23.818	700	923.1	274
	3	1	17	2	23	12	0	0	0	37.997	23.818	1000	890.4	274.3
	1	1	17	2	23	11	0	1	-1	37.924	23.683	306.8	966	331.7
	2	1	17	2	23	11	0	1	-1	37.944	23.618	785.9	910.9	351.9
	3	1	17	2	23	11	0	1	-1	37.957	23.579	1124.5	873.1	364.6
	1	1	17	2	23	10	0	2	-2	37.867	23.536	337.1	960.7	362.3
	2	1	17	2	23	10	0	2	-2	37.908	23.401	889.5	896.5	394.7
	3	1	17	2	23	10	0	2	-2	37.927	23.341	1250.5	856.5	411
	1	1	17	2	23	9	0	3	-3	37.828	23.379	410.6	950.7	364.3
	2	1	17	2	23	9	0	3	-3	37.887	23.177	1017.5	878.2	400.6
	3	1	17	2	23	9	0	3	-3	37.916	23.107	1388.9	838.4	416.5
	1	1	17	2	23	8	0	2	-4	37.809	23.204	531.1	931.1	294.9
	2	1	17	2	23	8	0	2	-4	37.886	22.953	1159.1	855.3	316.2
	3	1	17	2	23	8	0	2	-4	37.929	22.873	1528.6	811.3	325.6



Σχήμα Π.Ε.8 Τμήμα αρχείου εξόδου .txt και οπτικοποίηση οπισθοτροχιών με χρήση του online HYSPLIT μοντέλου

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ ΣΤ

Τεχνική αντιστροφής κατανομής μεγεθών για τα στάδια του δειγματολήπτη Andersen GS2310 με χρήση του κώδικα Micron

Οι αδρανειακοί δειγματολήπτες πολλαπλών σταδίων χρησιμοποιούνται ευρέως στις μελέτες ταξινόμησης των ΑΣ βάσει του μεγέθους τους. Ένας κλασσικός δειγματολήπτης πολλαπλών σταδίων αποτελείται από ένα ακροφύσιο μέσα από το οποίο εισέρχεται η ροή, και από κάποιο πλήθος σταδίων τα οποία επιτρέπουν στον χρήστη να ταξινομεί τα ΑΣ βάσει της αεροδυναμικής τους διαμέτρου. Σχεδιάζοντας έναν δειγματολήπτη πολλαπλών σταδίων ισχύει γενικά η αρχή ότι όσο αυξάνεται η ταχύτητα της ροής του αερολύματος, τόσο μειώνεται η διάμετρος των σωματιδίων που συλλέγονται σε κάθε στάδιο. Σωματίδια τα οποία είναι πολύ μικρά για να συλλεγούν σε κάποιο στάδιο του δειγματολήπτη, καταλήγουν στο τελευταίο φίλτρο (το back up filter). Οι πλειονότητα των δειγματοληπτών, όπως και αυτός που χρησιμοποιήθηκε στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. δεν είναι φτιαγμένοι να λειτουργούν με μία και μόνο ταχύτητα δειγματοληψίας, αλλά σε ένα εύρος παροχών, με αποτέλεσμα να έχουμε αλλαγή στο σημείο αποκοπής είτε προς τα πάνω είτε προς τα κάτω (Marple and Willeke, 1976).

Η καμπύλη απόδοσης είναι ένα πολύ σημαντικό χαρακτηριστικό του σταδίου ενός δειγματολήπτη, και δείχνει το ποσοστό των σωματιδίων οποιουδήποτε μεγέθους που συλλέγονται σε κάθε στάδιο συναρτήσει του μεγέθους των ΑΣ. Ιδανικά, ένας δειγματολήπτης ο οποίος είναι κατάλληλος για αναλύσεις κατανομής μεγεθών ΑΣ θα πρέπει σε κάθε του στάδιο να έχει μία απότομη καμπύλη απόδοσης, να κατορθώνει δηλαδή να διαχωρίζει τέλεια τα ΑΣ με βάση το σημείο αποκοπής από το ένα στάδιο στο επόμενο. Βέβαια αυτό δεν είναι εφικτό στην πραγματικότητα, καθώς όπως αναλύθηκε σε προηγούμενο κεφάλαιο τα ΑΣ ενδέχεται να αναπηδήσουν και να ξεφύγουν εντελώς της ροής, ή να συλλεγούν σε επόμενο στάδιο από αυτό που κανονικά θα έπρεπε. Το σχήμα Π.ΣΤ.9 παρουσιάζει την διαφορά της πραγματικής από την ιδανική καμπύλη απόδοσης ενός αδρανειακού ανιχνευτή πολλαπλών σταδίων.



b) Efficiency Curve

Σχήμα Π.ΣΤ.9 Καμπύλη απόδοσης ενός αδρανειακού δειγματολήπτη πρόσκρουσης (Baron & Willeke 2001)

Παρατηρούμε λοιπόν το φαινόμενο μέρος των ΑΣ με μέγεθος μεγαλύτερο του μεγέθους αποκοπής με απόδοση 50% να συλλέγεται σε επόμενο στάδιο, και σωματίδια μικρότερων μεγεθών (που κανονικά θα πρέπει να διέρχονται από το υπόψη στάδιο του δειγματολήπτη χωρίς να αλληλεπιδρούν με αυτό) να παρουσιάζουν ποσοστά συλλογής στο υπόψη στάδιο.

Στις καμπύλες απόδοσης ενός δειγματολήπτη σημαντικό ρόλο διαδραματίζει ο **αριθμός Reynolds** για τον οποίο έγινε λόγος και σε προηγούμενο κεφάλαιο. Η επιρροή του φαίνεται και στο σχήμα που ακολουθεί:



Σχήμα Π.ΣΤ.10 Θεωρητικές καμπύλες απόδοσης για δειγματολήπτες (Marple & Willeke, 1976)

Ο αριθμός Reynolds βασίζεται στην υδραυλική διάμετρο που υπάρχει στον «λαιμό» του ακροφυσίου. Εξετάζοντας τις καμπύλες του προηγούμενου σχήματος βλέπουμε ότι είναι απότομες για τιμές Re=500 και Re=3000. Το γεγονός ότι δεν έχουμε πολύ καλά μεγέθη αποκοπής στους μικρότερους αριθμούς Re οφείλεται στην παρουσία ενός ιξώδους οριακού στρώματος στο ακροφύσιο του δειγματολήπτη (Marple and Willeke, 1976). Στις περιπτώσεις που έχουμε υψηλότερους αριθμούς Reynolds (Re=25000) το «γόνατο» που σχηματίζεται στις καμπύλες απόδοσης του ανιχνευτή στις χαμηλότερες τιμές της απόδοσης οφείλεται στον σχηματισμό ενός πολύ λεπτού οριακού στρώματος πάνω από περιοχές του σταδίου του δειγματολήπτη δίπλα στο σημείο αποκοπής της ροής (Marple and Liu, 1975). Αυτό το λεπτό οριακό στρώμα το οποίο έχει πάχος σχεδόν όση και η διάμετρος του σωματιδίου, επιτρέπει στα μικρότερα σωματίδια να προσκρούουν στο στάδιο του δειγματολήπτη συγκριτικά με τις περιοχές που το στρώμα αυτό είναι πιό πυκνό.

Το μέγεθος των ΑΣ εκφράζεται συναρτήσει του **αριθμού Stokes**, για τον οποίο έγινε λόγος σε προηγούμενο κεφάλαιο της παρούσας Δ.Δ. Ο αριθμός Stokes ορίζεται ως ο λόγος της απόστασης που διανύει ένα σωματίδιο μέχρι να ακινητοποιηθεί προς το μέσο μήκος ή την ακτίνα του «λαιμού» του ακροφυσίου. Τα παραπάνω φαίνονται στη σχέση που ακολουθεί (Fuchs, 1964):

$$Stk = \frac{\rho_p V_0 C D_p^2 / 18\mu}{W/2}$$

(Σχέση Π.ΣΤ.1)

όπου:

ρ_p: η πυκνότητα του σωματιδίου C: είναι ο παράγοντας διόρθωσης Cunningham V₀: είναι η μέση ταχύτητα στον λαιμό D_p: είναι η διάμετρος του σωματιδίου μ: είναι το ιξώδες του ρευστού W: είναι η διατομή του ακροφυσίου

Η μελέτη της επίδρασης του λόγου S/W (S: την απόσταση της εξόδου του ακροφυσίου μέχρι το στάδιο του δειγματολήπτη και W: τη διάμετρο του ακροφυσίου του δειγματολήπτη) στις καμπύλες απόδοσης ενός δειγματολήπτη που έγινε από τους (Marple and Liu, 1974) έδειξε ότι για το μέγεθος $\sqrt{Stk_{50}}$ (δηλαδή για την τετραγωνική ρίζα του αριθμού Stokes όπου η απόδοση συλλογής είναι στο 50%) στην περίπτωση που έχουμε δειγματολήπτες ορθογωνικής διατομής (όπως και στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ.) εξαρτάται πολύ από τον λόγο S/W για τιμές του λόγου μικρότερες της μονάδας. Για τιμές μεγαλύτερες το σχήμα των καμπυλών απόδοσης είναι σχετικά σταθερό.

Όπως είδαμε προηγουμένως, προκειμένου την απεικόνιση της κατανομής μεγεθών των σταδίων του δειγματολήπτη χρησιμοποιήθηκε η βηματική συνάρτηση. Ο πιο ακριβής τρόπος όμως προκειμένου να καταλήξουμε στην πραγματική κατανομή μεγεθών των ΑΣ είναι το να εφαρμόσουμε μία τεχνική που λέγεται **αντιστροφή.**

Για την επίτευξη αυτού του σκοπού, χρησιμοποιήθηκε ο κώδικας **MiCRON** (Multi-Instrument-inversion χρησιμοποιώντας Constrained Regularization) (Wolfenbarger & Sheinfeld, 1990, 1991). Ο κώδικας αυτός στην πραγματικότητα αναπτύχθηκε για την αναγωγή της πειραματικής (μετρούμενης) κατανομής μεγέθους της μάζας των ΑΣ (συγκέντρωση μάζας ΑΣ ανά στάδιο ενός αδρανειακού δειγματολήπτη) σε πραγματική και συνεχή κατανομή μεγέθους, χρησιμοποιώντας σαν δεδομένα εισαγωγής της μετρούμενη συγκέντρωση μάζας σε κάθε στάδιο, το σφάλμα της μέτρησης και την απόδοση συλλογής του κάθε σταδίου. Στην δική μας την περίπτωση όμως, δεδομένου ότι οι αναλύσεις δεν περιλάμβαναν τον προσδιορισμό της μάζας των ΑΣ στο κάθε στάδιο του δειγματολήπτη, αλλά τις μετρήσεις ενεργότητας με χρήση τεχνικών γ-φασματομετρίας, ο κώδικας MICRON εφαρμόστηκε για κάθε ισότοπο ενδιαφέροντος χωριστά, χρησιμοποιώντας την μετρούμενη ενεργότητα του σε κάθε στάδιο αντί της συγκέντρωσης μάζας συνολικά όλων των ΑΣ στο δείγμα. Ο κώδικας MICRON διαθέτει διάφορες επιλογές προκειμένου ο χρήστης να καταλήξει στην επιθυμητή παράμετρο η οποία θα του δώσει την καλύτερη προσαρμογή στα δεδομένα του.

Το πρόβλημα της αντιστροφής έχει απασχολήσει την επιστημονική κοινότητα, και περιγράφεται από τη σχέση που ακολουθεί (Seinfels et al., 1991):

 $\int f(x)k_i(x)dx = y_i + \varepsilon_i, \ i = 1, \dots, p$

(Σχέση Π.ΣΤ.2)

Όπου

f(x): είναι η κατανομή μεγέθους

- γ: το σύνολο των μετρήσεων
- k_i: η ικανότητα του οργάνου στη συλλογή
- ε: το σφάλμα μέτρησης

Κατά την επίλυση της παραπάνω εξίσωσης, παρά το γεγονός ότι οι διαθέσιμες τιμές μπορεί να είναι αρκετές, ενδέχεται είτε να οδηγηθούμε σε περισσότερες της μίας λύσεις, είτε να οδηγηθούμε σε κάποια η οποία δεν θα είναι ευσταθής, είτε και σε καμία. Στο πρόβλημα αυτό έρχεται να απαντήσει ο κώδικας MICRON, ο οποίος παίρνοντας ως δεδομένα στοιχεία όπως την ικανότητα συλλογής σωματιδίων του εκάστοτε σταδίου του υπόψη δειγματολήπτη, το εύρος των μεγεθών των ΑΣ στο οποίο εργάζεται ο κάθε δειγματολήπτης, το πλήθος των μεγεθών που θέλουμε να κατανείμουμε την ενεργότητα του εκάστοτε ισοτόπου, και την ενεργότητα των σωματιδίων που κρατήθηκαν από κάθε στάδιο του δειγματολήπτη όπως προέκυψε από τις αναλύσεις των δειγμάτων με τη μέθοδο της γφασματομετρίας, έχουμε την κατανομή της ενεργότητας των σωματιδίων συναρτήσει του μεγέθους τους.

Ακολουθεί μία περιγραφή των βημάτων που ακολουθήθηκαν στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. προκειμένου την εφαρμογή του κώδικα MICRON στα δείγματα κατανομής μεγεθών.

Εύρεση των αριθμών Stokes και Reynolds όλων των σταδίων του δειγματολήπτη

Πρώτο βήμα για την εφαρμογή του κώδικα MICRON στα αποτελέσματα κατανομής μεγεθών του δειγματολήπτη Andersen ήταν η εύρεση του αριθμού Reynolds όλων των σταδίων του που αντιστοιχούν στη ροή λειτουργίας, 20 cfm. Τα στάδια no 2,3,4,5,6 του δειγματολήπτη έχουν 10 σχισμές, ενώ το στάδιο no 1 έχει 9.

Καταρχάς υπολογίζεται η μέση ταχύτητα της ροής στον «λαιμό» του ακροφυσίου:

$$V_0 = \frac{Q}{LW}$$

(Σχέση Π.ΣΤ.3)

όπου:

Q: η συνολική ροή που διέρχεται μέσα από ένα ακροφύσιο

L: το συνολικό μήκος των ορθογωνικών οπών ενός δειγματολήπτη

W: η διατομή του ακροφυσίου

Και στη συνέχεια για τους αριθμούς Reynolds και Stokes που αντιστοιχούν στον εν λόγω δειγματολήπτη ισχύουν οι σχέσεις:

$$Re = \frac{2\rho V_0 W}{\mu} = \frac{2\rho Q}{\mu L}$$

$$\Pi.\Sigma T.4)$$

$$Stk_{50} = \frac{\rho_0 Q C D_{50}^2}{9\mu L W^2}$$

$$\Pi.\Sigma T.5)$$

Οπότε με εφαρμογή των παραπάνω σχέσεων και για τιμή ρ=1.2 kg/m³ και από στοιχεία που προκύπτουν βιβλιογραφικά (Tisch Environmental Inc., 2004) τελικά προκύπτει ο ακόλουθος πίνακας:

Στάδιο	Πειραματικό d ₅₀ (m)	ρ (kg/m³)	W (m)	L (m)	Stk ₅₀	Q (m²/s)	Cc	μ (kg/ms)	V (m/s)
1 [°]	1.02E-05	1000	3.96E-03	1.110	0.348	9.44E-03	1.02	1.85E-05	2.15E+00
2°	4.20E-06	1000	1.63E-03	1.240	0.320	9.44E-03	1.04	1.85E-05	4.68E+00
3°	2.10E-06	1000	9.14E-04	1.240	0.277	9.44E-03	1.08	1.85E-05	8.33E+00
4 ^o	1.40E-06	1000	4.57E-04	1.240	0.493	9.44E-03	1.12	1.85E-05	1.67E+01
5°	7.30E-07	1000	2.54E-04	1.240	0.464	9.44E-03	1.23	1.85E-05	3.00E+01
6°	4.10E-07	1000	1.52E-04	1.240	0.472	9.44E-03	1.41	1.85E-05	4.99E+01

Πίνακας Π.ΣΤ.1 Παράμετροι του δειγματολήπτη που χρησιμοποιήθηκε

Στον παραπάνω πίνακα απεικονίζονται τα μεγέθη: **W** που είναι το εύρος των σχισμών του κάθε σταδίου, **L** είναι το συνολικό μήκος σχισμών για κάθε στάδιο (διαφέρει το μήκος μεταξύ του πρώτου και των υπολοίπων σταδίων καθώς το πρώτο στάδιο έχει 9 και όχι 10 σχισμές που φέρουν όλα τα άλλα), **πειραματικό d**⁵⁰ που είναι το μέγεθος αποκοπής του κάθε σταδίου το οποίο έχει προσδιορισθεί με πειράματα με μονομεγέθες αερόλυμα. Τα μεγέθη αυτά υπάρχουν στην βιβλιογραφία (Tisch Environmental Inc., 2004). Επίσης με **ρ** συμβολίζεται η πυκνότητα μάζας ενός σωματιδίου, και με **μ** το δυναμικό ιξώδες του αέρα. Τα υπόλοιπα μεγέθη (δηλαδή ο αριθμός Stokes που αντιστοιχεί στο μέγεθος αποκοπής **Stk**₅₀, ο παράγοντας ολίσθησης Cunningham **Cc**, και η ταχύτητα **V**, υπολογίζονται με τις σχέσεις που έχουν προαναφερθεί.

Στάδιο	Re
1 °	1089.370
2 °	971.057
3 °	971.057
4 °	971.057
5°	971.057
6 °	971.057

Πίνακας Π.ΣΤ.2 Αριθμοί Re που αντιστοιχούν στο εκάστοτε στάδιο του δειγματολήπτη

(Σχέση

(Σχέση

• Εύρεση ιδανικής καμπύλης απόδοσης

Μπορούμε να υπολογίσουμε τις καμπύλες απόδοσης ενός δειγματολήπτη με δύο τρόπους:

1. θεωρητικά, με βάση τη βιβλιογραφία και (Marple and Willeke, 1976) και του ακόλουθου σχήματος:



Σχήμα Π.ΣΤ.9 Θεωρητικές καμπύλες απόδοσης δειγματολήπτη ορθογωνικής ή κυκλικής διατομής (Marple and Willeke, 1976)

2. Με βάση το manual του δειγματολήπτη της (Tisch Environmental Inc., 2004) όπως φαίνεται και στο σχήμα που ακολουθεί:



Σχήμα Π.ΣΤ.10 Πειραματικές καμπύλες απόδοσης δειγματολήπτη (Tisch Environmental Inc., 2004)

Όπως βλέπουμε και από το παραπάνω σχήμα, λείπουν οι καμπύλες απόδοσης των σταδίων 1 και 6. Οι καμπύλες αυτές υπολογίσθησαν παίρνοντας τη μέση κλίση των καμπυλών απόδοσης των υπόλοιπων σταδίων.

Οι τιμές των μεγεθών αποκοπής ενός δειγματολήπτη δίνονται επιλύοντας ως προς το d_{50} την εξίσωση που μας δίνει τον αριθμό Stk, δηλαδή από την:

$$d_{50} = \sqrt{\frac{9\eta W}{\rho_p C_c U}} \sqrt{Stk_{50}}$$
(Σχέση Π.ΣΤ.6)

Και οι τιμές βρίσκονται στον πίνακα Π.ΣΤ.1.

Η απόδοση ή αλλιώς η ικανότητα συλλογής ενός δειγματολήπτη είναι συνάρτηση του αριθμού Stokes και δίνεται από τη σχέση που ακολουθεί (Colbeck et al., 2000; Regtuit et al., 1990):

$$Eff = 1 - \frac{1}{1 + aStk^b}$$
(Σχέση Π.ΣΤ.7)

Όπου:

Eff: η ικανότητα συλλογής σωματιδίων ενός σταδίου του δειγματολήπτη Stk: ο αριθμός Stokes a,b: αδιάστατοι συντελεστές

Προκειμένου να προσδιορίσουμε τους συντελεστές a,b εργαζόμαστε ως ακολούθως: Στο σχήμα Π.6.10 που προηγήθηκε, το οποίο παρουσιάζει την επίδραση του αριθμού Reynolds στην απόδοση ενός δειγματολήπτη για αριθμούς Re 500 και 3000 βρίσκουμε τους συντελεστές a, και b με εφαρμογή του εργαλείου εύρεσης συνάρτησης καμπύλης της Matlab. Το εργαλείο αυτό μπορεί να χρησιμοποιηθεί από τον χρήστη προκειμένου την παρακολούθηση των δεδομένων του και τις προσαρμογές που μπορούν να γίνουν σε αυτά με τη μορφή διαγραμμάτων διασποράς. Επίσης μπορεί να επισκοπήσει και να αξιολογήσει την ποιότητα της προσαρμογής χρησιμοποιώντας την εκτίμηση της απόκλισης και τα όρια πρόγνωσης. Μπορεί επίσης να προσαρμόσει κατάλληλα τα δεδομένα που έχει στη διάθεσή του προκειμένου να αναλυθούν.

Οπότε λοιπόν προκύπτει για τιμή:

<u>Re = 500</u>

a=8065, b=16

και για

<u>Re = 3000</u>

a=28259, b=20.19

Από τις τιμές αυτές θα χρησιμοποιηθούν οι συντελεστές που αντιστοιχούν σε τιμές Re = 500 καθώς είναι πιό κοντά στις τιμές που αφορούν στη δική μας περίπτωση.

Οπότε τελικά, έχουμε τις ακόλουθες 2 περιπτώσεις καμπυλών απόδοσης του δειγματολήπτη που χρησιμοποιήθηκε στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ. που φαίνονται στα σχήματα που ακολουθούν:



Σχήμα Π.ΣΤ.11 Καμπύλες απόδοσης δειγματολήπτη με βάση τις θεωρητικές από Marple and Willeke, 1976

Το σχήμα αυτό παρουσιάζει τις θεωρητικές καμπύλες απόδοσης του δειγματολήπτη που χρησιμοποιήθηκε στα πλαίσια της παρούσας Δ.Δ.

Στην περίπτωση που επιθυμούμε τον προσδιορισμό των αντίστοιχων πειραματικών, θα πρέπει να εργαστούμε βασιζόμενοι στο σχήμα Π.ΣΤ.11, έχοντας βέβαια πάντα υπόψη ότι οι θεωρητικές από τις πειραματικές καμπύλες απόδοσης ενδέχεται να διαφέρουν.

Ξανά με το εργαλείο εύρεσης συνάρτησης καμπύλης της Matlab προκύπτει ότι οι πειραματικές καμπύλες απόδοσης του δειγματολήπτη είναι οι ακόλουθες:


Σχήμα Π.ΣΤ.12 Καμπύλες απόδοσης δειγματολήπτη με βάση τις πειραματικές από Tisch Environmental Inc., 2004

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Ζ

Συγκεντρώσεις του ισοτόπου ¹⁰⁶Ru από σταθμούς της Γαλλίας (IRSN information report, 2017).

Ακολουθεί πίνακας συγκεντρώσεων του ισοτόπου ¹⁰⁶Ru από σταθμούς της Γαλλίας (IRSN information report, 2017).

Sampling station	Sampling period		Concentration in the air in Ru-106 (mBq/m ³) The results preceded by the symbol < correspond to values below the detection threshold.
Orsay *	27/09/2017	03/10/2017	< 0,007
La Seyne sur Mer *	26/09/2017	03/10/2017	0,0074 +/- 0,0014
La Seyne sur Mer *	03/10/2017	11/10/2017	0,0197 +/- 0,0034
La Seyne sur Mer *	11/10/2017	13/10/2017	0,00155 +/- 0,0007
Bordeaux *	25/09/2017	02/10/2017	< 0,005
Charleville-Mézières *	26/09/2017	03/10/2017	< 0,009
Ajaccio**	25/09/2017	02/10/2017	< 0,0043
Ajaccio**	02/10/2017	09/10/2017	0,0082 +/- 0,0028
Ajaccio**	09/10/2017	16/10/2017	< 0,009
Bugey**	25/09/2017	02/10/2017	< 0,013
Bugey**	02/10/2017	09/10/2017	< 0,031
Bugey**	09/10/2017	16/10/2017	< 0,025
Cadarache**	25/09/2017	02/10/2017	< 0,030
Cadarache**	02/10/2017	09/10/2017	< 0,012
Cadarache**	09/10/2017	16/10/2017	< 0,015
Cattenom**	25/09/2017	02/10/2017	< 0,025
Cattenom**	02/10/2017	09/10/2017	< 0,021
Cattenom**	09/10/2017	16/10/2017	< 0,060
Cruas**	02/10/2017	09/10/2017	< 0,011
Cruas**	09/10/2017	16/10/2017	< 0,050
Fessenheim**	25/09/2017	02/10/2017	< 0,023
Fessenheim**	02/10/2017	09/10/2017	< 0,021
Fessenheim**	09/10/2017	16/10/2017	< 0,018
Grenoble**	29/09/2017	02/10/2017	< 0,053
Grenoble**	02/10/2017	06/10/2017	< 0,014
Grenoble**	09/10/2017	12/10/2017	< 0,010

Grenoble**	13/10/2017	16/10/2017	< 0,015
Marcoule**	25/09/2017	28/09/2017	< 0,021
Marcoule**	28/09/2017	02/10/2017	< 0,023
Marcoule**	02/09/2017	05/10/2017	< 0,006
Marcoule**	05/10/2017	09/10/2017	< 0,011
Marcoule**	09/10/2017	12/10/2017	< 0,018
Marcoule**	12/10/2017	16/10/2017	< 0,023
Marcoule**	16/10/2017	19/10/2017	< 0,024
Nancy**	25/09/2017	02/10/2017	< 0,011
Nancy**	02/10/2017	09/10/2017	< 0,011
Nancy**	09/10/2017	16/10/2017	< 0,0046
Nice**	25/09/2017	02/10/2017	0,0068 +/- 0,0027
Nice**	02/10/2017	09/10/2017	0,046 +/- 0,0078
Nice**	09/10/2017	16/10/2017	< 0,007
Penly**	25/09/2017	02/10/2017	< 0,023
Penly**	02/10/2017	09/10/2017	< 0,022
Penly**	09/10/2017	16/10/2017	< 0,027
Prevessin (CERN) **	25/09/2017	02/10/2017	< 0,007
Prevessin (CERN) **	02/10/2017	09/10/2017	< 0,033
Tricastin**	25/09/2017	02/10/2017	< 0,026
Tricastin**	02/10/2017	09/10/2017	< 0,010
Tricastin**	09/10/2017	16/10/2017	< 0,016
Saint Alban**	25/09/2017	02/10/2017	<0,033
Saint Alban**	02/10/2017	09/10/2017	<0,024
Saint Alban**	09/10/2017	16/10/2017	< 0,026
Villeneuve d'Ascq**	26/09/2017	29/09/2017	< 0,160
Villeneuve d'Ascq**	29/09/2017	03/10/2017	< 0,059
Villeneuve d'Ascq**	03/10/2017	06/10/2017	< 0,050
Villeneuve d'Ascq**	06/10/2017	13/10/2017	< 0,012
Villeneuve d'Ascq**	13/10/2017	17/10/2017	< 0,100