

Sintesi della Tesi Magistrale

Università di Milano-Bicocca
Dipartimento di Scienze dell'Ambiente e del Territorio
Anno accademico 2016-2017
Relatore: Valter Maggi
Correlatore: Massimiliano Clemenza

Contatti

Elena Di Stefano
email: elenadistefano93@gmail.com
numero di telefono: +39 3387984073

Valutazione della radioattività antropogenica della carota di ghiaccio del ghiacciaio dell'Adamello

Introduzione

Per comprendere i cambiamenti che il clima sta subendo è fondamentale lo studio dei ghiacciai, in quanto questi hanno una grande influenza sul ciclo idrologico e sul bilancio energetico netto di superficie. L'estrazione di carote di ghiaccio fornisce la possibilità di accedere ad informazioni riguardanti la temperatura, le precipitazioni e la composizione atmosferica del momento in cui si è depositata la neve ed il ghiaccio si è formato. I ghiacciai alpini sono caratterizzati da alti tassi di accumulo e presentano dunque un'alta risoluzione temporale. A causa della loro prossimità alle aree urbanizzate, questo tipo di ghiacciai risulta più sensibile ai disturbi di origine antropica. Le carote di ghiaccio possono mostrare una contaminazione radioattiva, sia di origine naturale che antropica, soprattutto a causa di processi di deposizione umida e, in grado minore, di deposizione secca (Pinglot et al., 2001). L'analisi di radionuclidi in campioni alpini dà la possibilità di tracciare la circolazione nell'Emisfero Settentrionale, dando informazioni su potenziali sorgenti e tempi di residenza. Alcuni nuclidi radioattivi possono essere collegati a determinati eventi, fornendo così degli orizzonti temporali di riferimento che possono essere usati per ricostruire i tassi di accumulo del ghiacciaio e datare la carota di ghiaccio. Questo lavoro di tesi si è concentrato sull'individuazione di ^{137}Cs e ^3H . Il ^{137}Cs è un efficace tracciante dell'influenza antropica sull'ambiente in quanto è un isotopo creato dall'uomo, che non si trova in natura. Il rilascio di ^{137}Cs in atmosfera è collegato ai test nucleari che sono stati effettuati prima dell'entrata in vigore del trattato sulla messa al bando parziale degli esperimenti nucleari (PTBT) nel 1963, e ad incidenti nucleari come quello di Chernobyl del 1986 o quello di Fukushima del 2011. Il trizio invece può essere usato per studiare gli effetti di fusione nei ghiacciai, se il tasso di accumulo è sufficientemente alto (Kang et al., 2015). Questo è il caso dei ghiacciai alpini, dove i tassi di accumulo sono sufficientemente alti da avere un buon segnale concernente l'ultimo secolo. È stata provata la presenza di un picco ben definito corrispondente all'anno 1963 legato al trizio che fu immesso in stratosfera durante i test termoneucleari (Pinglot et al., 2003). Successivamente, è stato spesso osservato un andamento stagionale di trizio dovuto alla porzione rimasta in stratosfera, e legato al fatto che in primavera lo scambio tra troposfera e stratosfera risulta aumentato (Van Der Wel et al., 2011). Anche l'incidente di Chernobyl (1986) ha alterato la naturale attività del trizio, ma l'identificazione di questo orizzonte si è rivelata più difficile a causa dei livelli di rilascio di trizio più bassi, di una contaminazione più locale, e dei processi di fusione che avvengono all'interno del ghiacciaio. Le analisi sono state eseguite sui chips della carota estratta dal ghiacciaio dell'Adamello durante l'estate del 2016. Questa carota di ghiaccio rientra nel contesto del progetto POLLiCe, che ha lo scopo di studiare il clima dell'ultimo secolo. È la prima carota di ghiaccio ad essere estratta dal ghiacciaio più grande d'Italia.

Materiali e Metodi

Durante questo lavoro di tesi sono state utilizzate due tecniche: la spettroscopia gamma, per l'identificazione del ^{137}Cs e la scintillazione liquida, per le analisi di attività beta totale e per l'identificazione del trizio. Questo è dipeso soprattutto dal fatto che i due isotopi bersaglio si comportano in maniera diversa durante il decadimento radioattivo; mentre il primo decade emettendo raggi gamma, il secondo decade emettendo una particella beta. La spettroscopia gamma è stata eseguita utilizzando un rivelatore al Germanio Iper Puro (HPGe). Campioni di acqua provenienti dalla carota di ghiaccio sono stati analizzati con il rivelatore HPGe con tempi di conteggio medi di 160 ore. Un picco a 661.6 keV, corrispondente all'emissione di raggi gamma del ^{137}Cs , è stato registrato in alcuni campioni. Le analisi di beta totale sono state eseguite con uno spettrometro Quantulus 1220 (TM), su campioni acquosi estratti dai chips della carota di ghiaccio.

I chips corrispondenti alla parte centrale della carota di ghiaccio sono stati filtrati, dopo la prima tornata di analisi, usando un sistema di filtrazione a vuoto della Millipore. Sono stati utilizzati filtri in policarbonato da 45 μm . L'acqua filtrata è stata utilizzata per delle analisi addizionali con la scintillazione liquida. Sono stati prelevati 40 ml e sono stati fatti passare attraverso una colonnina Eichrom per il trizio, per poter separare il trizio da tutti i radionuclidi potenzialmente presenti nei campioni. L'eluato è poi stato usato per preparare i campioni per la scintillazione liquida. Anche i filtri sono stati analizzati tramite la spettroscopia gamma utilizzando un rivelatore HPGe "a pozzetto". Questo tipo di rivelatore permette al campione di venire inserito direttamente all'interno del germanio, così che si possano misurare campioni di piccole dimensioni con efficienze molto alte. I filtri sono stati analizzati con tempi di conteggio medi di 24 ore. Queste analisi hanno dato la possibilità di valutare il contributo del particolato al totale di radioattività misurato nella carota di ghiaccio, per meglio capire le differenze mostrate dalla spettroscopia beta e gamma. Le efficienze assolute per il rivelatore HPGe contenente i campioni sono state calcolate con un metodo MonteCarlo, utilizzando il codice Geant4, che è uno strumento per la simulazione del passaggio di particelle elementari attraverso la materia (Agostinelli et al., 2003). Per i campioni che hanno mostrato un eccesso di ^{137}Cs , è stata calcolata l'Attività Specifica, mentre nei campioni che non hanno mostrato un eccesso, è stato calcolato un limite di rivelazione.

L'utilizzo di rivelatori sia per la spettroscopia gamma che per la scintillazione liquida richiede un certo numero di analisi preliminari, da completare prima che i campioni ambientali vengano misurati. Sono stati preparati dei campioni standard, di attività nota, sia per la spettroscopia gamma che per la scintillazione liquida. Due diverse sorgenti standard sono state misurate con diversi rivelatori al Germanio: una sorgente standard multigamma e una sorgente standard di $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$. In particolare, la sorgente multigamma è stata usata per validare il metodo Monte Carlo. Due set di campioni standard sono stati preparati per la Scintillazione Liquida, entrambi contenenti ^3H . Il secondo set è stato fatto passare attraverso le colonnine Eichrom prima di essere misurato. Questi standard sono stati usati per costruire una curva di calibrazione per la rivelazione del trizio. In tutti i casi i campioni sono stati preparati in modo da essere il più simili possibile alle condizioni dei campioni ambientali.

Risultati e Conclusioni

I risultati della spettroscopia gamma condotta sulla carota di ghiaccio dell'Adamello hanno mostrato una chiara contaminazione di cesio, che può essere attribuita ai test nucleari. Il picco più alto, trovato ad una profondità di $32,0\text{ m} \pm 0,3\text{ m}$ (vedi Figura 1), corrisponde senza dubbio all'anno 1963. Gli altri 5 picchi trovati, ad una profondità compresa tra $20,72\text{ m} \pm 0,34\text{ m}$ e $30,72\text{ m} \pm 0,31\text{ m}$ sono di attribuzione più difficile. L'ipotesi qui formulata è la loro attribuzione ad eventi di risospensione seguiti dalla successiva deposizione sul ghiacciaio. La principale assunzione è che i picchi siano da attribuire agli stessi eventi che hanno generato il picco del 1963. Gli unici paesi che hanno

continuato ad eseguire test nucleari dopo il PTBT, sono La Francia e la Cina. La Francia ha eseguito test presso i siti di Mururoa e Fangataufa, nella Polinesia Francese, dal 1966 al 1974, per una potenza totale di 10,1 Mt (Warner and Kirchmann, 2000). La Cina ha testato invece presso Lob Nor, un sito desertico nella parte nord occidentale del paese, dal 1964 al 1980, per una potenza totale di 20,7Mt (Warner and Kirchmann, 2000). Considerando che la potenza totale per l'anno 1962 è stata di 163,8Mt, anche se è possibile che il fallout radioattivo dagli esperimenti francesi e cinesi abbia raggiunto le Alpi, i valori di attività sarebbero di molto inferiori a quelli rivelati. La posizione geografica e la relativa basse elevazione del ghiacciaio dell'Adamello lo rende invece sensibile ad eventi locali di risospensione dalle catene montuose circostanti e dalla pianura padana.

I risultati della filtrazione hanno mostrato che il ^{137}Cs è soprattutto legato al particolato, in quanto non siamo stati in grado di rivelare un'attività nei campioni dopo la filtrazione. Questo pone un problema nella determinazione dell'attività specifica. Le simulazioni MonteCarlo usate per la valutazione dell'efficienza, assumevano che il cesio fosse distribuito in maniera uniforme all'interno del campione. Si è provato che questa assunzione è sbagliata. Per quello che concerne invece le analisi di beta totale, analizzando la forma degli spettri che avevano mostrato un eccesso rispetto al fondo, e confrontandola con lo spettro dei campioni standard contenenti trizio, abbiamo concluso che il principale contributo all'attività beta totale è del trizio. L'analisi dei campioni passati attraverso la colonna Eichrom, ha provato che quest'assunzione è vera. Le analisi di scintillazione liquida mostrano un doppio picco, tra $28,8 \pm 0,3$ m e $30,7 \pm 0,3$ m, ad una profondità leggermente più superficiale rispetto a quella del picco di cesio, come mostrato in Figura 1. Se il doppio picco è da attribuire al 1963, questo ritardo potrebbe essere dovuto ai differenti percorsi atmosferici seguiti dai due elementi. Infatti, come menzionato in precedenza, il cesio viaggia legato al particolato, mentre il trizio è incorporato nelle molecole di acqua.

Per concludere, la spettroscopia gamma si è dimostrata un potente strumento di analisi, specialmente grazie al fatto che permette un'identificazione diretta degli isotopi. La sua principale limitazione, specialmente quando si ha a che fare con un grande numero di campioni, come nel caso delle carote di ghiaccio, sono i lunghi tempi di misura richiesti. Questo lavoro di tesi ha sottolineato la possibilità di limitare le analisi di spettroscopia gamma al particolato contenuto all'interno del ghiaccio. Questo, mentre richiede un passaggio addizionale nella preparazione dei campioni (filtrazione), dà l'opportunità di usare il rivelatore "a pozzetto", che ha un'efficienza più alta e richiede tempi di misura più brevi. Infatti, si è dimostrato che circa un giorno di misura, per questo tipo di campioni, risulta un tempo di misura adeguato, in contrasto con i 4 o 5 giorni necessari per i classici rivelatori al germanio. Questo eliminerebbe anche l'errore nella stima dell'efficienza dovuto alla non uniformità del cesio nell'acqua. Inoltre, la sensibilità di misura più alta è stata raggiunta con il rivelatore "a pozzetto", raggiungendo un valore di 0,0012Bq, mentre con il rivelatore HPGe utilizzato per l'analisi dei campioni acquosi è stato raggiunto un limite di 0,020Bq/Kg.

Anche la scintillazione liquida ha dato buoni risultati. Il suo principale vantaggio, rispetto alla spettroscopia gamma in generale, è il minor tempo di misura richiesto, che permette di ottenere in tempi relativamente brevi un profilo completo della carota di ghiaccio. Le analisi di attività beta totale hanno però dimostrato di non essere essenziali. L'impossibilità di determinare il contributo esatto di diversi isotopi allo spettro e la conseguente difficoltà nel costruire una curva di calibrazione, sono i principali problemi di questo tipo di analisi. Sapendo che il principale contributo al segnale beta è dato dal trizio, sembra più appropriato da adesso in poi eseguire direttamente un'analisi di trizio. Ancora una volta questo richiederebbe una preparazione addizionale dei campioni, che devono essere filtrati per eliminare le impurità solide e passati attraverso la colonna Eichrom prima di essere misurati.

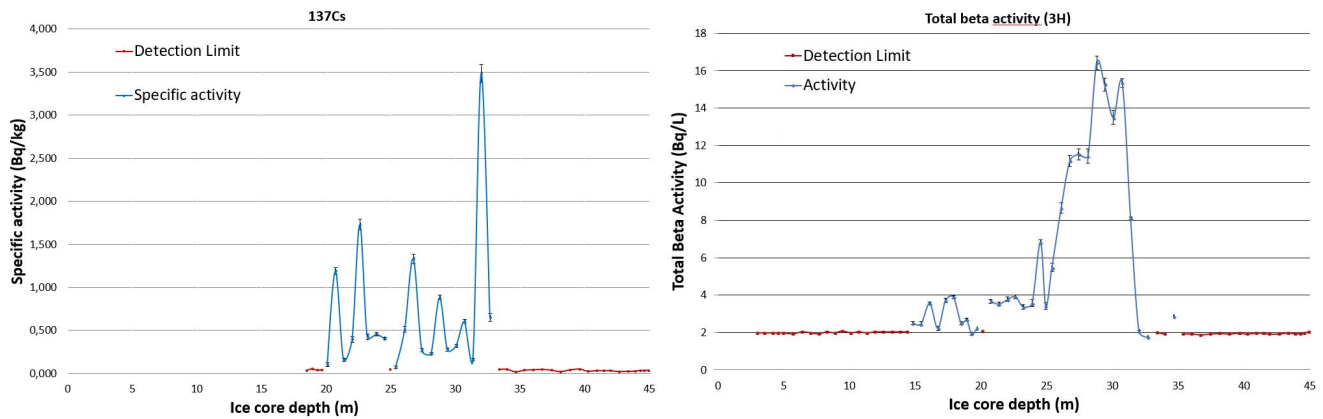


Figure 1: Profilo del cesio (a destra) e dell'attività beta totale (a sinistra) della carota di ghiaccio dell'Adamello.

Bibliography

- Agostinelli, S., J. Allison, K. a. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P. Arce, M. Asai, D. Axen, S. Banerjee, G. Barrand, et al.
 2003. Geant4—a simulation toolkit. *Nuclear instruments and methods in physics research section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 506(3):250–303.
- Kang, S., F. Wang, U. Morgenstern, Y. Zhang, B. Grigholm, S. Kaspari, M. Schwikowski, J. Ren, T. Yao, D. Qin, et al.
 2015. Dramatic loss of glacier accumulation area on the tibetan plateau revealed by ice core tritium and mercury records. *The Cryosphere*, 9(3):1213–1222.
- Pinglot, J. F., J. O. Hagen, K. Melvold, T. Eiken, and C. Vincent
 2001. A mean net accumulation pattern derived from radioactive layers and radar soundings on austfonna, nordaustlandet, svalbard. *Journal of Glaciology*, 47(159):555–566.
- Pinglot, J. F., R. A. Vaikmae, K. Kamiyama, M. Igarashi, D. Fritzsche, F. Wilhelms, R. Koerner, L. Henderson, E. Isaksson, J.-G. Winther, et al.
 2003. Ice cores from arctic sub-polar glaciers: chronology and post-depositional processes deduced from radioactivity measurements. *Journal of Glaciology*, 49(164):149–158.
- Van Der Wel, L., H. Streurman, E. Isaksson, M. Helsen, R. Van De Wal, T. Martma, V. A. Pohjola, J. C. Moore, and H. Meijer
 2011. Using high-resolution tritium profiles to quantify the effects of melt on two spitsbergen ice cores. *Journal of glaciology*, 57(206):1087–1097.
- Warner, F. and R. Kirchmann
 2000. *Nuclear Test Explosions, Scope 59: Environmental and Human Impacts*, volume 59. John Wiley & Sons Incorporated.