



ΔΙΑΠΑΝΕΠΙΣΤΗΜΙΑΚΟ - ΔΙΑΤΜΗΜΑΤΙΚΟ ΠΡΟΓΡΑΜΜΑ
ΜΕΤΑΠΤΥΧΙΑΚΩΝ ΣΠΟΥΔΩΝ ΣΤΗΝ ΙΑΤΡΙΚΗ ΦΥΣΙΚΗ - ΑΚΤΙΝΟΦΥΣΙΚΗ
ΤΗΣ ΙΑΤΡΙΚΗΣ ΣΧΟΛΗΣ, ΤΟΥ ΒΙΟΛΟΓΙΚΟΥ ΚΑΙ ΦΥΣΙΚΟΥ ΤΜΗΜΑΤΟΣ ΤΟΥ ΕΘΝΙΚΟΥ
ΚΑΙ ΚΑΠΟΔΙΣΤΡΙΑΚΟΥ ΠΑΝΕΠΙΣΤΗΜΙΟΥ ΑΘΗΝΩΝ, ΤΟΥ ΙΑΤΡΙΚΟΥ ΤΜΗΜΑΤΟΣ ΤΟΥ
ΑΡΙΣΤΟΤΕΛΕΙΟΥ ΠΑΝΕΠΙΣΤΗΜΙΟΥ ΘΕΣΣΑΛΟΝΙΚΗΣ,
ΤΟΥ ΙΑΤΡΙΚΟΥ ΤΜΗΜΑΤΟΣ ΤΟΥ ΔΗΜΟΚΡΙΤΕΙΟΥ ΠΑΝΕΠΙΣΤΗΜΙΟΥ ΘΡΑΚΗΣ,
ΤΟΥ ΙΑΤΡΙΚΟΥ ΤΜΗΜΑΤΟΣ ΤΟΥ ΠΑΝΕΠΙΣΤΗΜΙΟΥ ΙΩΑΝΝΙΝΩΝ,
ΤΟΥ ΙΑΤΡΙΚΟΥ ΤΜΗΜΑΤΟΣ ΤΟΥ ΠΑΝΕΠΙΣΤΗΜΙΟΥ ΚΡΗΤΗΣ
(ΥΠΟΥΡΓΙΚΗ ΑΠΟΦΑΣΗ ΑΡΙΘΜ. Β7/371/12.8.98, ΦΕΚ 942/2.9.98 Τ.Β.)

**ΑΝΑΠΤΥΞΗ ΚΑΙ ΒΙΟΙΑΤΡΙΚΕΣ ΕΦΑΡΜΟΓΕΣ
ΤΕΧΝΙΚΗΣ ΑΝΑΛΥΣΗΣ ΜΕ ΝΕΤΡΟΝΙΚΗ ΕΝΕΡΓΟΠΟΙΗΣΗ
ΔΕΙΓΜΑΤΩΝ ΜΕΓΑΛΟΥ ΟΓΚΟΥ**

Φαίδρα Τζίκα

Φυσικός Ιατρικής - Ακτινοφυσικός

ΔΙΔΑΚΤΟΡΙΚΗ ΔΙΑΤΡΙΒΗ

ΙΩΑΝΝΙΝΑ 2005



*Στο σύζυγό μου Δημήτρη
και στο γιο μας Φίλιππο*



ΕΥΧΑΡΙΣΤΙΕΣ

Η εργασία αυτή εκπονήθηκε στο Εργαστήριο του Ερευνητικού Αντιδραστήρα του Ινστιτούτου Πυρηνικής Τεχνολογίας και Ακτινοπροστασίας (ΙΠΤ-Α) του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος» σε συνεργασία με το Εργαστήριο Ιατρικής Φυσικής του Πανεπιστημίου Ιωαννίνων και υπό την οικονομική υποστήριξη του Διεθνούς Οργανισμού Ατομικής Ενέργειας (ΔΟΑΕ) στα πλαίσια του προγράμματος τεχνικής συνεργασίας GRE-030. Ολοκληρώνοντας την εργασία αυτή θα ήθελα να ευχαριστήσω ιδιαίτερος τον Ερευνητή Β του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος» κ. Ι. Ε. Σταματελάτο για την ακούραστη καθοδήγηση και συμπαράστασή του όλα αυτά τα χρόνια καθώς και για την ηθική υποστήριξη και το πραγματικό ενδιαφέρον που μου προσέφερε, και τον Καθηγητή κ. Τ. Καλέφ-Εζρά για την εμπιστοσύνη που μου έδειξε από την αρχή των μεταπτυχιακών μου σπουδών και τη στήριξή του έως σήμερα τόσο σε επιστημονικό όσο και σε ανθρώπινο επίπεδο.

Θερμές ευχαριστίες θα ήθελα να εκφράσω στον διευθυντή του ΙΠΤ-Α Καθηγητή Μ. Αντωνόπουλο-Ντόμη και στον προϊστάμενο του Εργαστηρίου του Ερευνητικού Αντιδραστήρα του ΙΠΤ-Α του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος» κ. Ν. Κατσαρό για τη φιλοξενία και την υποστήριξη που μου προσέφεραν κατά τη διάρκεια εκπόνησης αυτής της διατριβής παρέχοντάς μου τη δυνατότητα να εργάζομαι παράλληλα στο εργαστήριο.

Ιδιαίτερα θα ήθελα να αποδώσω τις ευχαριστίες που οφείλω στον Ερευνητή Α κ. Σ. Μεσολωρά και την Ερευνήτρια Δ. κ. Κ. Μεργιά, του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος», για τη βοήθεια και τη συμπαράστασή τους αλλά και την αυτοπεποίθηση την οποία μου ενέπνευσαν ώστε να αποκτήσω κριτική ματιά απέναντι στην έρευνα.

Θα ήθελα να ευχαριστήσω θερμά το επιστημονικό και τεχνικό προσωπικό του Εργαστηρίου του Ερευνητικού Αντιδραστήρα του ΙΠΤ-Α του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος» για την πρόθυμη συνεργασία και την υποστήριξή του κατά τη διεξαγωγή των ακτινοβολήσεων. Ιδιαίτερα ευχαριστώ τον ηλεκτρονικό κ. Γ. Λευκόπουλο για την πολύτιμη συμβολή του κατά την εγκατάσταση της διάταξης γ φασματοσκοπίας καθώς και τον μηχανουργό κ. Ι. Μαλλιάρο, τον μηχανικό κ. Ι. Σαρηγιάννη και τον χειριστή κ. Γ. Κάτσουλα για τις τεχνικές συμβουλές και την εξαιρετη δουλειά κατά την κατασκευή της ανιχνευτικής διάταξης.

Θα ήθελα ακόμη να ευχαριστήσω τα μέλη του IRI, TU Delft για τη φιλοξενία και τη συνεργασία την οποία μου προσέφεραν κατά τη διάρκεια παραμονής μου στο Delft. Ιδιαίτερες ευχαριστίες θα ήθελα να εκφράσω στους Καθηγητές κ. P. Bode και M. Blaauw του IRI, TU Delft για τις πολύτιμες συμβουλές και το ενδιαφέρον τους για την εργασία αυτή.

Ευχαριστώ τον κ. M. Rossbach του ΔΟΑΕ για την υποστήριξή του στην προσπάθεια προβολής της εργασίας αυτής στο εξωτερικό.

Θα ήθελα επίσης να ευχαριστήσω τα μέλη της τριμελούς συμβουλευτικής επιτροπής καθώς και της επταμελούς εξεταστικής επιτροπής για το χρόνο και τη διάθεση που αφιέρωσαν στην επίβλεψη και την εξέταση της παρούσας εργασίας.

Τέλος θα ήθελα να ευχαριστήσω την οικογένειά μου για τη συνεχή συμπαράστασή τους και ιδιαίτερα το σύζυγό μου, κ. Δημήτριο Σκαρώνη για την υπομονή του, τη στήριξή του και την αγάπη του όλα αυτά τα χρόνια.



ΠΕΡΙΕΧΟΜΕΝΑ

ΚΕΦΑΛΑΙΟΙ ΕΙΣΑΓΩΓΗ

II	ΕΙΣΑΓΩΓΗ	1
II.1	ΑΝΑΛΥΣΗ ΜΕΝΕΙΡΟΝΚΗΣ ΕΝΕΡΓΟΤΗΤΗΣ	3
II.2	ΜΕΤΑΤΑ ΜΕΤΑΛΛΟΥ ΟΥΣΟΥ	5
II.3	ΑΝΤΙΚΕΙΜΕΝΟ ΕΡΓΑΣΙΑΣ	5

ΚΕΦΑΛΑΙΟΙ ΓΕΝΙΚΑ ΜΕΡΗ

II	ΑΡΧΕΣ ΤΗΣ ΤΕΧΝΙΚΗΣ ΑΝΑΛΥΣΗΣ ΜΕΝΕΙΡΟΝΚΗΣ ΕΝΕΡΓΟΤΗΤΗΣ	7
II.1	Αναλυτική	7
II.2	Αντιμετώπιση / αποκατάσταση	9
II.3	Βελτιστοποίηση	10
II.4	ΑΝΑΛΥΣΗ ΜΕΝΕΙΡΟΝΚΗΣ ΕΝΕΡΓΟΤΗΤΗΣ ΜΕΤΑΛΛΩΝ ΑΕΡΜΑΤΩΝ	10
II.5	ΔΙΑΓΡΑΦΗ ΤΟΥ ΠΕΔΟΥ ΓΕΡΜΑΝΩΝ ΝΕΡΟΝΚΗΣ	11
II.5.1	Βασικές αρχές	12
II.5.2	Γενικά στοιχεία	14
II.5.3	Διαδικασία αντιμετώπισης	15
II.6	ΓΕΝΕΑΤΟΚΟΝΙΑ	19
II.6.1	Ανάπτυξη / ανάπτυξη / ανάπτυξη	19
II.6.2	Αντιμετώπιση / ανάπτυξη	20
II.6.3	Η ανάπτυξη / ανάπτυξη / ανάπτυξη	21
II.6.4	Κατάσταση / ανάπτυξη / ανάπτυξη	22
II.6.5	Παράδειγμα / ανάπτυξη / ανάπτυξη	23
II.6.6	Παράδειγμα / ανάπτυξη / ανάπτυξη / ανάπτυξη	23
II.7	ΤΕΡΜΗΝΟΤΕ ΚΑΘΟ - ΚΑΘΟΝ ΜΕΡ	24

ΚΕΦΑΛΑΙΟΙ ΨΗΦΙΑΚΑ ΜΕΡΗ

II	ΨΗΦΙΑΚΑ	27
II.1	Παράδειγμα / ανάπτυξη / ανάπτυξη / ανάπτυξη / ανάπτυξη / ανάπτυξη	27
II.1.1	Παράδειγμα / ανάπτυξη / ανάπτυξη	27
II.1.2	Παράδειγμα / ανάπτυξη / ανάπτυξη	28
II.1.3	Παράδειγμα / ανάπτυξη / ανάπτυξη / ανάπτυξη	30
II.2	Παράδειγμα / ανάπτυξη / ανάπτυξη	31
II.3	Παράδειγμα	32
II.4	Κατάσταση / ΜΕΡ	34
II.5	ΜΕΡ	34



Περιεχόμενα

3.2.1	Διαταραχή του Πεδίου Θερμικών Νετρονίων	34
3.2.1.1	Εισαγωγή	34
3.2.1.2	Ανάπτυξη μοντέλου θερμικής στήλης με τον κώδικα MCNP	35
3.2.1.3	Επαλήθευση του μοντέλου θερμικής στήλης	36
3.2.1.3.1	Υπολογισμοί ροής θερμικών νετρονίων	37
3.2.1.3.2	Μετρήσεις ροής θερμικών νετρονίων	37
3.2.1.3.3	Λύση της εξίσωσης διάχυσης	37
3.2.1.4	Μέθοδος διόρθωσης	38
3.2.1.4.1	Διόρθωση για δείγματα γνωστής σύστασης	38
3.2.1.4.2	Διόρθωση για δείγματα άγνωστης σύστασης	41
3.2.1.4.3	Πειραματικός προσδιορισμός της ροής αναφοράς και της μέσης ροής στην επιφάνεια	41
3.2.2	Φασματοσκοπία γ δειγμάτων μεγάλου όγκου – Διορθώσεις για τη γεωμετρία της πηγής και την εξασθένηση των ακτίνων γ	41
3.2.2.1	Ανάπτυξη μοντέλου ανιχνευτή με τον κώδικα MCNP	41
3.2.2.2	Επαλήθευση του μοντέλου ανιχνευτή	43
3.2.2.3	Μέθοδος διόρθωσης	43
3.2.2.3.1	Πειραματικός προσδιορισμός του γραμμικού συντελεστή εξασθένησης	45
3.2.3	Συνολική διόρθωση για την αυτο-απορρόφηση νετρονίων, τη γεωμετρία μέτρησης και την εξασθένηση των ακτίνων γ	45
3.2.4	Ανομοιογενή Δείγματα	46
3.2.4.1	Ανομοιογένειες σύστασης κατά την ακτινοβόληση	47
3.2.4.2	Ανομοιογένειες ιχνοστοιχείων κατά την ακτινοβόληση	49
3.2.4.3	Ανομοιογένειες σύστασης κατά την ανίχνευση ακτίνων γ	49
3.2.4.4	Ανομοιογένειες ιχνοστοιχείων κατά την ανίχνευση ακτίνων γ	51
3.2.5	Διαδικασία – Πρωτόκολλο	52
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 4 ΑΠΟΤΕΛΕΣΜΑΤΑ		55
4.1	ΑΚΤΙΝΟΒΟΛΗΣΗ ΣΤΗ ΘΕΡΜΙΚΗ ΣΤΗΛΗ	55
4.1.1	Ροή νετρονίων στη θερμική στήλη – Επαλήθευση μοντέλου	55
4.1.1.1	Ροή νετρονίων στη θερμική στήλη χωρίς την παρουσία δείγματος – Σύγκριση με πειραματικά δεδομένα	55
4.1.1.2	Ροή νετρονίων στη θερμική στήλη παρουσία δείγματος – Σύγκριση με πειραματικά δεδομένα	57
4.1.2	Καμπύλες διόρθωσης για την αυτό-απορρόφηση νετρονίων	58
4.1.2.1	Ημι-εμπειρική καμπύλη διόρθωσης για δείγματα γνωστής σύστασης – Πειραματική επαλήθευση	58
4.1.2.2	Διόρθωση για μη υδρογονούχα δείγματα άγνωστης σύστασης	60
4.1.2.2.1	Συντελεστής διαταραχής ροής νετρονίων	60
4.1.2.2.2	Συντελεστής αυτο-απορρόφησης ροής νετρονίων	61
4.1.2.2.3	Συντελεστής διόρθωσης ροής νετρονίων	61
4.1.2.3	Διόρθωση για υδρογονούχα δείγματα άγνωστης σύστασης	64
4.2	ΜΕΤΡΗΣΗ ΣΤΗ ΔΙΑΤΑΞΗ γ ΦΑΣΜΑΤΟΣΚΟΠΙΑΣ	66
4.2.1	Απόδοση του ανιχνευτή για σημειακή πηγή φωτονίων – Επαλήθευση μοντέλου	66
4.2.2	Απόδοση ανιχνευτή στο χώρο – Επαλήθευση μοντέλου	67
4.2.3	Καμπύλες διόρθωσης για τη γεωμετρία της πηγής και την εξασθένηση των ακτίνων γ σε πηγή μεγάλου όγκου	68
4.3	ΣΥΝΟΛΙΚΗ ΔΙΟΡΘΩΣΗ ΓΙΑ ΤΗΝ ΑΥΤΟ-ΑΠΟΡΡΟΦΗΣΗ ΝΕΤΡΟΝΙΩΝ, ΤΗ ΓΕΩΜΕΤΡΙΑ ΤΗΣ ΠΗΓΗΣ ΚΑΙ ΤΗΝ ΕΞΑΣΘΕΝΗΣΗ ΤΩΝ ΑΚΤΙΝΩΝ γ	70
4.4	ΕΠΙΔΡΑΣΗ ΤΩΝ ΑΝΟΜΟΙΟΓΕΝΕΙΩΝ ΣΤΗΝ ΑΚΡΙΒΕΙΑ ΤΗΣ ΜΕΘΟΔΟΥ	71
4.4.1	Ανομοιογένειες σύστασης κατά την ακτινοβόληση	71
4.4.2	Ανομοιογένειες ιχνοστοιχείων κατά την ακτινοβόληση	72
4.4.3	Ανομοιογένειες σύστασης κατά την ανίχνευση ακτίνων γ	75
4.4.4	Ανομοιογένειες ιχνοστοιχείων κατά την ανίχνευση ακτίνων γ	77
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 5 ΣΥΖΗΤΗΣΗ		81
5.1	ΕΙΣΑΓΩΓΗ	81
5.2	ΜΕΘΟΔΟΣ ΔΙΟΡΘΩΣΗΣ ΓΙΑ ΤΗΝ ΑΥΤΟ-ΑΠΟΡΡΟΦΗΣΗ ΝΕΤΡΟΝΙΩΝ	82
5.3	ΥΔΡΟΓΟΝΟΥΧΑ ΔΕΙΓΜΑΤΑ	84



Περιεχόμενα

5.4	ΜΕΘΟΔΟΣ ΔΙΟΡΘΩΣΗΣ ΓΙΑ ΤΗ ΓΕΩΜΕΤΡΙΑ ΤΗΣ ΠΗΓΗΣ ΚΑΙ ΤΗΝ ΕΞΑΣΘΕΝΗΣΗ ΑΚΤΙΝΩΝ γ	86
5.5	ΣΥΝΟΛΙΚΗ ΔΙΟΡΘΩΣΗ ΓΙΑ ΤΗΝ ΑΥΤΟ-ΑΠΟΡΡΟΦΗΣΗ ΝΕΤΡΟΝΙΩΝ, ΤΗ ΓΕΩΜΕΤΡΙΑ ΤΗΣ ΠΗΓΗΣ ΚΑΙ ΤΗΝ ΕΞΑΣΘΕΝΗΣΗ ΤΩΝ ΑΚΤΙΝΩΝ γ	90
5.6	ΕΠΙΔΡΑΣΗ ΤΩΝ ΑΝΟΜΟΙΟΓΕΝΕΙΩΝ ΣΤΗΝ ΑΚΡΙΒΕΙΑ ΤΗΣ ΜΕΘΟΔΟΥ	90
5.6.1	<i>Ανομοιογένειες σύστασης</i>	91
5.6.2	<i>Ανομοιογένειες ιχνοστοιχείων</i>	92
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 6 ΕΦΑΡΜΟΓΕΣ		95
6.1	ΕΙΣΑΓΩΓΗ	95
6.2	ΥΛΙΚΑ ΚΑΙ ΜΕΘΟΔΟΣ	96
6.3	ΑΠΟΤΕΛΕΣΜΑΤΑ	98
6.4	ΣΥΖΗΤΗΣΗ	100
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 7 ΓΕΝΙΚΗ ΣΥΖΗΤΗΣΗ ΚΑΙ ΣΥΜΠΕΡΑΣΜΑΤΑ		103
ΒΙΒΛΙΟΓΡΑΦΙΑ		109
ΔΗΜΟΣΙΕΥΣΕΙΣ ΣΧΕΤΙΚΕΣ ΜΕ ΤΗ ΔΙΔΑΚΤΟΡΙΚΗ ΔΙΑΤΡΙΒΗ		121
ΠΕΡΙΛΗΨΗ ΣΤΗΝ ΕΛΛΗΝΙΚΗ		123
SUMMARY		127
ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Α		129



ΚΕΦΑΛΑΙΟ 1

ΕΙΣΑΓΩΓΗ

Δυνατότητες πολυ-στοιχειακής ανάλυσης σε δείγματα μεγάλου όγκου με την τεχνική της νετρονικής ενεργοποίησης

1.1 ΕΙΣΑΓΩΓΗ

Ο προσδιορισμός της στοιχειακής σύστασης υλικών έχει μεγάλη σημασία σε όλα σχεδόν τα πεδία της επιστήμης και της τεχνολογίας, όπως σε βιοϊατρικές, περιβαλλοντικές, γεωλογικές και αρχαιολογικές εφαρμογές, στον ποιοτικό έλεγχο τροφίμων, αγροτικών και βιομηχανικών προϊόντων, και στη διαχείριση καταλοίπων.

Ο προσδιορισμός της στοιχειακής σύστασης πραγματοποιείται συνήθως με ανάλυση μικρών ποσοτήτων του υλικού, που συνήθως κυμαίνονται από μερικά μl έως ml ή από μερικά mg έως g , αντίστοιχα. Αυτό οφείλεται κυρίως στην αδυναμία των αναλυτικών τεχνικών (π.χ. της ατομικής απορρόφησης, φασματομετρίας μάζας) να αναλύσουν μεγαλύτερα δείγματα. Εντούτοις υπάρχουν επιστημονικά και τεχνικά προβλήματα για την επίλυση των οποίων απαιτείται η ανάλυση δειγμάτων μεγαλύτερου όγκου (όγκος $> 0.5 \text{ L}$). Η συμβατική τεχνική ανάλυσης μεγάλων δειγμάτων προϋποθέτει ομογενοποίηση του δείγματος και αντιπροσωπευτική δειγματοληψία (sub-sampling). Αυτή η διαδικασία, πέραν του ότι απαιτεί χρόνο και κατάλληλα εκπαιδευμένο προσωπικό, είναι ευάλωτη ως



προς την εισαγωγή σφάλματος, λόγω ανεπάρκειας της διαδικασίας ομογενοποίησης, πιθανής μόλυνσης ή απώλειας στοιχείων κατά την ομογενοποίηση και ως εκ τούτου μη αντιπροσωπευτικής δειγματοληψίας. Επιπλέον αυτή η διαδικασία είναι καταστροφική για το δείγμα, ενώ σε ορισμένες περιπτώσεις δεν είναι καν δυνατή η εφαρμογή της.

Η απευθείας ανάλυση δειγμάτων μεγάλου όγκου παρέχει σημαντικά πλεονεκτήματα:

- Είναι μη καταστροφική για το δείγμα.
- Δεν απαιτεί ομογενοποίηση του δείγματος.
- Αποφεύγονται οι μολύνσεις ή οι απώλειες στοιχείων από το δείγμα.

Η ανάλυση δειγμάτων μεγάλου όγκου προϋποθέτει ότι το εισερχόμενο και το εξερχόμενο σήμα διαθέτουν υψηλή διεισδυτική ικανότητα, ώστε να ελαχιστοποιείται η απορρόφηση μέσα στο δείγμα. Αυτή τη συνθήκη την πληρούν τα νετρόνια, η ηλεκτρομαγνητική ακτινοβολία και τα μαγνητικά πεδία. Αναλυτικές τεχνικές που βασίζονται σ' αυτούς τους τύπους εισερχόμενου σήματος είναι ο Πυρηνικός Μαγνητικός Συντονισμός (Nuclear Magnetic Resonance) [Nicholson και Wilson 1989], ο Φθορισμός Ακτίνων-Χ ή $-\gamma$ (X-Ray Fluorescence) [Potts και Webb, 1992], η Απορρόφηση Πυρηνικού Συντονισμού (Gamma Nuclear Resonance Absorption) [Vartsky και συν. 1982, Wielopolski και συν. 2000, Vartsky και συν. 2000], η Ανάλυση με Φωτονική Ενεργοποίηση (Photon Activation Analysis) [Segebadε και συν. 1988, Schulze και συν. 1993] και η Ανάλυση με Νετρονική Ενεργοποίηση (Neutron Activation Analysis) [Parry 1991]. Η μέθοδος του πυρηνικού μαγνητικού συντονισμού είναι χρήσιμη για τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης στοιχείων με χαμηλό ατομικό αριθμό ($Z \leq 20$), όταν όμως πρόκειται για στοιχεία υψηλότερου ατομικού αριθμού απαιτούνται ισχυρότατα μαγνητικά πεδία. Η μέθοδος φθορισμού ακτίνων-Χ ή $-\gamma$ δεν ενδείκνυται για ανάλυση δειγμάτων μεγάλου όγκου λόγω της ισχυρής αλληλεπίδρασης της προσπίπτουσας ακτινοβολίας με τα δείγματα και κατά συνέπεια τη μικρού βάθους διείσδυση της πρωτογενούς ακτινοβολίας. Η επίδραση αυτών των φαινομένων είναι ακόμη πιο έντονη στις χαμηλότερης ενέργειας δευτερογενείς ακτίνες-Χ. Η μέθοδος της απορρόφησης πυρηνικού συντονισμού είναι μία τεχνική που διαθέτει υψηλή ευαισθησία. Ωστόσο το μειονέκτημά της είναι το υψηλό της κόστος διότι απαιτεί μονοχρωματική πηγή φωτονίων υψηλής ενέργειας και απόδοσης. Οι τεχνικές ενεργοποίησης (NAA και PAA) χαρακτηρίζονται από επαρκείς διεισδυτικές ικανότητες των εισερχόμενων νετρονίων και φωτονίων αντίστοιχα καθώς και των εξερχόμενων ακτίνων γ (ενέργειες της τάξης των MeV). Με την τεχνική της PAA μπορεί να προσδιοριστεί μεγάλος αριθμός στοιχείων ταυτόχρονα, ωστόσο απαιτείται η χρήση επιταχυντή που να παράγει υψηλής ενέργειας φωτόνια με μεγάλη ροή. Η ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση έχει σημαντικό πλεονέκτημα, έναντι της φωτονικής ενεργοποίησης, όσον αφορά την ευαισθησία της τεχνικής λόγω της υψηλής τιμής της ενεργού διατομής ενεργοποίησης με νετρόνια.



1.2 ΑΝΑΛΥΣΗ ΜΕ ΝΕΤΡΟΝΙΚΗ ΕΝΕΡΓΟΠΟΙΗΣΗ (ΑΝΕ)

Η Ανάλυση με Νετρονική Ενεργοποίηση (ΑΝΕ) προϋποθέτει ενεργοποίηση των νουκλιδίων του δείγματος με ακτινοβόλησή του σε πεδίο νετρονίων. Ο αριθμός των παραγόμενων ραδιονουκλιδίων εξαρτάται από τον αριθμό των αρχικών νουκλιδίων στο υπό ανάλυση δείγμα, τη ροή νετρονίων και την ενεργό διατομή ενεργοποίησης. Τα παραγόμενα ραδιονουκλίδια αποδιεγείρονται εκπέμποντας, κυρίως φθτόνια (ακτίνες γ και/ ή X), με χαρακτηριστικό χρόνο ημιζωής, ο οποίος καθορίζει και την ενεργότητα στο υπό ακτινοβόληση δείγμα. Η ανίχνευση των εκπεμπόμενων ακτίνων γ 0.3 – 3 MeV γίνεται συνήθως με ημιαγωγικό ανιχνευτή γερμανίου. Η ανάλυση του ενεργειακού φάσματος επιτρέπει τον ταυτόχρονο προσδιορισμό μεγάλου αριθμού στοιχείων και των συγκεντρώσεών τους στο δείγμα. Όταν, μετά την ακτινοβόληση του δείγματος, πραγματοποιηθούν χημικοί διαχωρισμοί για την απομάκρυνση των παρεμβολών από την περιοχή των ραδιοϊσοτόπων ενδιαφέροντος, τότε η τεχνική ονομάζεται Ραδιοχημική Ανάλυση με Νετρονική Ενεργοποίηση. Ωστόσο, συνήθως είναι δυνατόν να προσδιοριστούν περισσότερα από τριάντα στοιχεία ταυτόχρονα σε ένα δείγμα, χωρίς την εφαρμογή διαδικασιών χημικού διαχωρισμού.

Η εφαρμογή καθαρά ενόργανων μεθόδων και διαδικασιών ονομάζεται Ενόργανη Ανάλυση με Νετρονική Ενεργοποίηση (ΕΑΝΕ). Η ΕΑΝΕ αποτελεί την κυρίαρχη μορφή εφαρμογής της ΑΝΕ, είναι μη καταστροφική για το δείγμα και κατατάσσεται στις πλέον ευαίσθητες αναλυτικές τεχνικές. Το όριο ανίχνευσης της τεχνικής ΕΑΝΕ είναι για πολλά στοιχεία της τάξης των $\mu\text{g.kg}^{-1}$ ενώ για ορισμένα άλλα μπορεί να φτάσει την τάξη των ng.kg^{-1} [Parry 1991]. Η ευαισθησία της εξαρτάται από (α) τις παραμέτρους ακτινοβόλησης (π.χ. ροή νετρονίων, χρόνοι ακτινοβόλησης και αποδιέγερσης), (β) τις πυρηνικές παραμέτρους των νουκλιδίων του δείγματος (π.χ. ισοτοπική αφθονία, ενεργός διατομή νετρονίων, χρόνος ημιζωής, πιθανότητα εκπομπής ακτίνων γ) και (γ) τις συνθήκες μέτρησης (π.χ. χρόνος μέτρησης, απόδοση ανιχνευτή). Στον Πίνακα 1-1 δίνονται τα όρια ανίχνευσης της ΕΑΝΕ θεωρώντας τις βέλτιστες επιλογές των χρόνων ακτινοβόλησης και μέτρησης και ακτινοβόληση σε ρυθμό ροής νετρονίων $10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$.

Ανασκοπήσεις της χρήσης της ΕΑΝΕ στην ανάλυση μικρών δειγμάτων (της τάξης των εκατοντάδων mg) έχουν παρουσιαστεί στην πρόσφατη βιβλιογραφία [Jervis 1992, Ehmman και συν. 1992, 1994, Parr και Zeisler 1994, Grass και συν. 1994, Orvini και Speziali, 1998]. Εφαρμόζεται εκτεταμένα σε περιβαλλοντικές μελέτες [Kucera και Soukal 1995, Muramatsu και Yoshida 1995, Orvini και Pirico 1995, Orvini και συν. 2000, Steinnes 2000, Smodis και Bleise 2000], σε γεωλογικές έρευνες [Benedik και Byrne 1995, Grimanis και συν. 1997, Lins και Saiki 1997, Fernandes και συν. 2000, Marques και συν. 2000, Cabrera και συν. 2000, Bode και Van Meerten 2000], στον ποιοτικό έλεγχο υλικών υψηλής καθαρότητας και ημιαγωγών [Grasserbauer και συν. 1985], στην αρχαιομετρία [Fillieres και συν. 1983, Rousset και Fedoroff 1985, Holmes και Harbottle 1994, Meredith 1994,



Forsyth 1994, Blum 1994] και στην πιστοποίηση προτύπων υλικών αναφοράς (SRM) [Kucera και συν. 1997, Tian και συν. 2000, Ihnat 2000].

Ειδικότερα στο πεδίο των βιοϊατρικών μελετών έχει αποδειχθεί ότι είναι μια πολύ χρήσιμη τεχνική. Δείγματα βιολογικών υγρών και ιστών ανθρώπινου σώματος έχουν αναλυθεί με σκοπό να καθοριστούν τα φυσιολογικά επίπεδα ιχνοστοιχείων [Evans και Jervis 1987, Collecchi και συν. 1987, Zhuk και συν. 1988, Sabbioni, Minoia και συν. 1994, Sabbioni, Kucera και συν. 1994, Hamilton και συν. 1994, Cornelis και συν. 1994, Schuhmacher και συν. 1994, Roggi και συν. 1995, Kucera και συν. 1995, Navarro και συν. 1996, Majewska και συν. 1999, Bode και De Kok 1999] καθώς και τα επίπεδά τους σε παθολογικές περιπτώσεις [Kew και συν. 1974, Sabbioni, Mosconi και συν. 1994, Markesbery και συν. 1995, Xiao και συν. 1995, Zaichick και συν. 1995, Ehmann και συν. 1996, Kitamura και συν. 1997, Stamatelatos και συν. 1999, Saiki και συν. 1999, Rulon και συν. 2000]. Οι Ng και συν. [1997] χρησιμοποίησαν την EANE για τον χαρακτηρισμό φυσιολογικού και κακοήθη ιστού. Η EANE έχει χρησιμοποιηθεί για διατροφολογικές [Minoia και συν. 1994], βιοχημικές και μεταβολικές [Ohmori 1985, Irigaray 1987, Edel και συν. 1990, Stone και συν. 1994] καθώς και για τοξικολογικές μελέτες [Takeuchi και συν. 1987, Alhashimi και συν. 1992, Rauf και συν. 1992, Zaichick και συν. 1995].

Πίνακας 1-1 Κατάλογος στοιχείων που προσδιορίζονται με ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση και αντίστοιχα όρια για ροή νετρονίων $10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ [Orvini και Speziali, 1998]

Στοιχείο	Όριο Ανίχνευσης (pg)
Dy, Eu, In	1
Au, Lu, Mn	1-10
As, Ho, Ir, Re Sm, W, V	$10\text{-}10^2$
Al, Ag, Ar, As, Br, Cl, Co, Cs, Cu, Er, Ga, Hf, I,	$10^2\text{-}10^3$
La, Sb, Sc, Se, Ta, Ti, Tb, Th, Tm, U, Yb, Zn	
Ba, Cd, Ce, Cr, Hg, Kr, Gd, Ge, Mo, Na, Nd, Ni,	$10^3\text{-}10^4$
Os, Pb, Pt, Rb, Rh, Ru, Sr, Te, Ti, Zr Bi, Ca, K, Mg, P, Si, Sn, Tl, Xe, Y	$10^4\text{-}10^5$
F, Fe, Nb, Ne	$10^5\text{-}10^6$
Pb, S	10^7



1.3 ΔΕΙΓΜΑΤΑ ΜΕΓΑΛΟΥ ΟΓΚΟΥ

Καθώς το μέσο μήκος διαδρομής των νετρονίων και των φωτονίων στα στερεά δείγματα είναι συνήθως της τάξης των cm, ένα σημαντικό πλεονέκτημα της ANE είναι η δυνατότητα ανάλυσης δειγμάτων μεγάλου όγκου. Ως εκ τούτου η EANE μεγάλων δειγμάτων έχει βρει σημαντικές εφαρμογές στην ιατρική και στη βιομηχανία. Η ακτινοβολήση γίνεται με τη χρήση γεννητριών ή ισοτοπικών πηγών νετρονίων (π.χ. $^{241}\text{Am-Be}$, ^{252}Cf). Για παράδειγμα στην ιατρική η EANE χρησιμοποιείται στη μελέτη της σύστασης του ανθρωπίνου σώματος *in vivo* καθώς και σε πειραματόζωα. Διατάξεις *in vivo* ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση έχουν αναπτυχθεί με σκοπό τον προσδιορισμό των κύριων στοιχείων της σύστασης του σώματος αλλά και ουσιωδών ή τοξικών στοιχείων σε επιμέρους όργανα του σώματος. Αναφέρονται ο *in vivo* προσδιορισμός του αζώτου, άνθρακα, οξυγόνου, υδρογόνου, νατρίου, καλίου, ασβεστίου, φωσφόρου, χλωρίου, καδμίου, υδραργύρου [Cohn 1981, Chettle και Fremlin 1984, Scott και Chettle 1986, Glaros και συν. 1990, Kalef-Ezra και συν. 1992, Sutcliffe 1996, Ellis 2000, Stamatelatos και συν. 2004]. Στη βιομηχανία, η EANE δειγμάτων μεγάλου όγκου εφαρμόζεται σε τομείς όπως ο ποιοτικός έλεγχος της γραμμής παραγωγής ορυχείων άνθρακα μέσω του προσδιορισμού της περιεκτικότητας του υλικού εξόρυξης σε άνθρακα, οξυγόνο και άζωτο [Oliveira και Salgado 1991, Oliveira και Salgado 1993, Borsaru και συν. 1983, Marshall και συν. 1989]. Ωστόσο, οι εν λόγω εφαρμογές είναι εξειδικευμένες και αφορούν τον προσδιορισμό συγκεκριμένων στοιχείων σε καθορισμένα δείγματα.

Ο De Bruin [1993] διερεύνησε τη δυνατότητα εφαρμογής πολύ-στοιχειακής EANE σε μεγάλα δείγματα χρησιμοποιώντας νετρόνια από αντιδραστήρα. Διαπιστώθηκε η ανάγκη ανάπτυξης μεθόδων διόρθωσης για την εξασθένηση των νετρονίων και των ακτίνων γ στο δείγμα. Σημαντικό πλεονέκτημα της χρήσης του αντιδραστήρα, σε σχέση με τις ισοτοπικές πηγές ή τις γεννήτριες νετρονίων, αποτελεί ο υψηλός ρυθμός ροής θερμικών νετρονίων, που σε συνδυασμό με την υψηλή ενεργό διατομή των αντιδράσεων ενεργοποίησης, συνεπάγονται υψηλή ευαισθησία της τεχνικής. Διάταξη EANE με δυνατότητα πολύ-στοιχειακής ανάλυσης δειγμάτων μέγιστης διαμέτρου 15 cm και ύψους 1 m έχει αναπτυχθεί στον αντιδραστήρα του Interfaculty Reactor Institute στο Technical University Delft [Overwater και συν. 1996].

1.4 ΑΝΤΙΚΕΙΜΕΝΟ ΕΡΓΑΣΙΑΣ

Σκοπός της παρούσας εργασίας ήταν ο σχεδιασμός και η ανάπτυξη διάταξης ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση δειγμάτων μεγάλου όγκου στη θερμική στήλη του ερευνητικού αντιδραστήρα του Ινστιτούτου Πυρηνικής Τεχνολογίας και Ακτινοπροστασίας του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος».



Ο ποσοτικός προσδιορισμός των στοιχειακών συγκεντρώσεων σε δείγματα μεγάλου όγκου προϋποθέτει το σχεδιασμό και την εγκατάσταση ειδικών πειραματικών διατάξεων, καθώς και την ανάπτυξη μεθόδων διόρθωσης για τα φαινόμενα της εξασθένησης των νετρονίων και ακτίνων γ. Στην παρούσα εργασία η αναλυτική περιγραφή των διατάξεων ακτινοβολήσης και ανίχνευσης ακτίνων γ δίνεται στις παραγράφους 3.1.1.2 και 3.1.1.3 αντίστοιχα. Η διόρθωση για τη διαταραχή του πεδίου νετρονίων, την αυτο-απορρόφηση των νετρονίων και τα φαινόμενα επιβράδυνσής τους στο μεγάλο δείγμα περιγράφεται στην παράγραφο 3.2.1. Η διόρθωση για την εξασθένηση των ακτίνων γ από μεγάλο δείγμα και την χωρική κατανομή της ενεργότητας σε σχέση με τη γεωμετρία σημειακής πηγής περιγράφεται στην παράγραφο 3.2.2. Η συνολική διόρθωση για την αυτο-απορρόφηση νετρονίων, τη γεωμετρία μέτρησης και την εξασθένηση των ακτίνων γ περιγράφεται στην παράγραφο 3.2.3. Τέλος, η μελέτη της επίδρασης των ανομοιογενειών του δείγματος στην ακρίβεια της τεχνικής περιγράφεται στην παράγραφο 3.2.4.

Για την παραγωγή αξιόπιστων αποτελεσμάτων αναπτύχθηκαν αλγόριθμοι, που επιτρέπουν την εισαγωγή διορθωτικών παραγόντων για τα εν λόγω φαινόμενα για δείγματα που διαφέρουν τόσο ως προς το μέγεθος, όσο και ως προς τη σύσταση. Η δυνατότητα εφαρμογής της μεθοδολογίας επιδείχθηκε πιλοτικά με τη στοιχειακή ανάλυση σε δείγματα βρεφικού γάλακτος και πρωτεϊνικού παρασκευάσματος σε μορφή σκόνης όπως περιγράφεται στο ΚΕΦΑΛΑΙΟ 6.

Η τεχνική της EANE μεγάλων δειγμάτων συμπληρώνει και επεκτείνει τις πυρηνικές αναλυτικές δυνατότητες του Ινστιτούτου Πυρηνικής Τεχνολογίας & Ακτινοπροστασίας του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος». Η διάταξη εκτός των άλλων θα επιτρέψει την ανάλυση καταλοίπων (waste), ρυπασμένου εδάφους (contaminated soil), ιζημάτων (sediments) και ανακυκλώσιμων υλικών (recycling material). Επιπλέον, στον τομέα της βιο-ιατρικής θα προσφέρει τη μοναδική δυνατότητα της ανάλυσης ολόκληρων οργάνων, βιολογικών ιστών καθώς και ολόκληρου του σώματος μικρών ζώων με προοπτική εφαρμογής σε τοξικολογικές και διαιτολογικές έρευνες καθώς και σε μελέτες μεταβολισμού.



ΚΕΦΑΛΑΙΟ 2

ΓΕΝΙΚΟ ΜΕΡΟΣ

Τεχνική Ανάλυσης με Νετρονική Ενεργοποίηση – Ιδιαιτερότητες στην Ανάλυση Μεγάλων Δειγμάτων

2.1 ΑΡΧΕΣ ΤΗΣ ΤΕΧΝΙΚΗΣ ΑΝΑΛΥΣΗΣ ΜΕ ΝΕΤΡΟΝΙΚΗ ΕΝΕΡΓΟΠΟΙΗΣΗ

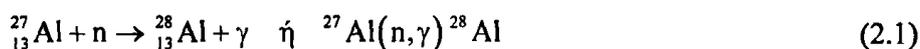
Η διαδικασία της Ανάλυσης με Νετρονική Ενεργοποίηση περιλαμβάνει τα εξής στάδια: (i) ενεργοποίηση του υλικού του δείγματος με ακτινοβόληση σε νετρόνια που παράγονται από τον πυρηνικό αντιδραστήρα (ii) μέτρηση της ακτινοβολίας γ μετά από τη διέλευση κάποιου χρόνου διάσπασης και (iii) ανάλυση του ενεργειακού φάσματος ακτίνων γ και προσδιορισμό των στοιχείων και των συγκεντρώσεών τους στο δείγμα.

2.1.1 Ακτινοβόληση

Η ακτινοβόληση του δείγματος σε πεδίο νετρονίων στοχεύει στη μετατροπή σταθερών ισοτόπων σε ραδιενεργά που εκπέμπουν γ ακτινοβολία. Η ταυτοποίηση των ραδιενεργών πυρήνων και ως εκ τούτου των πυρήνων στόχων και των αρχικών στοιχείων, βασίζεται στη γνώση των αντιδράσεων που συμβαίνουν. Η ποσοτικοποίηση των αποτελεσμάτων καθώς και η αρχική εκτίμηση των δυνατοτήτων και παραμέτρων της ανάλυσης προϋποθέτουν τη γνώση του ρυθμού ενεργοποίησης.



Οι ενέργειες των νετρονίων στη θέση ακτινοβόλησης καθορίζουν το είδος και την πιθανότητα της πυρηνικής αντίδρασης που θα λάβει χώρα και κατά συνέπεια τη φύση του ραδιενεργού προϊόντος. Όταν στο πεδίο ακτινοβόλησης κυριαρχούν τα θερμικά νετρόνια (νετρόνια σε θερμική ισορροπία με τα άτομα του επιβραδυντή με πιθανότερη ταχύτητα 2200 m.s^{-1} σε θερμοκρασία $20 \text{ }^\circ\text{C}$ που αντιστοιχεί σε μέση κινητική ενέργεια 0.025 eV), η πυρηνική αντίδραση που παρουσιάζει τη μεγαλύτερη πιθανότητα είναι η σύλληψη θερμικών νετρονίων με εκπομπή ακτίνων γ , γνωστή και ως (n, γ) αντίδραση. Ο ενεργοποιημένος πυρήνας αποδιεγείρεται προς μια πιο σταθερή κατάσταση (σε χρονικό διάστημα $\sim 10^{-12} \text{ s}$) με την εκπομπή άμεσων ακτίνων γ (prompt gamma rays). Το προϊόν της πυρηνικής αντίδρασης είναι σε πολλές περιπτώσεις ραδιενεργό (π.χ. ^{28}Al) και αποδιεγείρεται με την εκπομπή β και/ή γ ακτινοβολίας (delayed gamma rays). Η πυρηνική αντίδραση γράφεται:



Ο ρυθμός ενεργοποίησης ενός πυρήνα, R , είναι ανάλογος προς τον αριθμό των πυρήνων στόχων, N , τη ροή νετρονίων στη θέση ακτινοβόλησης¹, ϕ , και τη μικροσκοπική ενεργό διατομή ενεργοποίησης του πυρήνα, σ_{act} . Έτσι:

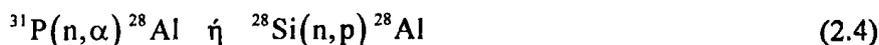
$$R = \sigma_{act} \cdot \phi \cdot N \quad (2.2)$$

Η ενεργότητα του ραδιενεργού προϊόντος, μετά από διάρκεια ακτινοβόλησης t_i , δίνεται από τη σχέση:

$$A(t_i) = \sigma_{act} \cdot \phi \cdot N \cdot (1 - e^{-\lambda t_i}) \quad (2.3)$$

θεωρώντας μηδενική αρχική ενεργότητα (για $t = 0$).

Η ενεργός διατομή και η ροή νετρονίων εξαρτώνται από την ενέργεια των νετρονίων. Όταν η ροή επιθερμικών νετρονίων (νετρόνια που επιβραδύνονται συγκρουόμενα με τους πυρήνες του επιβραδυντή με ενεργειακό εύρος μεταξύ 0.5 και 100 keV) ή ταχέων νετρονίων (σχάση) δεν είναι αμελητέα σε σχέση με αυτή των θερμικών νετρονίων, πρέπει να ληφθεί υπόψη η παρουσία άλλων τύπων πυρηνικών αντιδράσεων (π.χ. (n, p) , (n, α) , (n, n') , $(n, 2n)$) που μπορεί να οδηγήσουν στο σχηματισμό του ίδιου ραδιενεργού προϊόντος, όπως για παράδειγμα:



¹ Θεωρείται ότι δεν υπάρχει διαταραχή του πεδίου νετρονίων λόγω της παρουσίας του δείγματος.



2.1.2 Ανίχνευση γ ακτινοβολίας

Μετά την παρέλευση κάποιου χρονικού διαστήματος t_d από το πέρας της ακτινοβόλησης, το δείγμα μεταφέρεται σε διάταξη γ φασματοσκοπίας για την ανίχνευση των ακτίνων γ . Η ενεργότητα του ραδιενεργού προϊόντος, σταθεράς διάσπασης λ , κατά την έναρξη της μέτρησης, $A(t_i, t_d)$, δίνεται από τη σχέση²:

$$A(t_i, t_d) = A(t_i) \cdot e^{-\lambda t_d} \quad (2.5)$$

ενώ κατά τη μέτρηση για χρόνο t_c η ενεργότητα είναι $A(t_i, t_d, t_c)$:

$$A(t_i, t_d, t_c) = A(t_i, t_d) \cdot (1 - e^{-\lambda t_c}) \quad (2.6)$$

Αντικαθιστώντας τον αριθμό των πυρήνων στόχων N με $N_{AV} \cdot \alpha \cdot m / M$, την ενεργότητα $A(t_i, t_d, t_c)$ με $\lambda \cdot \Delta N = \lambda \cdot Net / (\epsilon_\gamma \cdot f_\gamma)$ (όπου ΔN οι πυρήνες που αποδιεγείρονται κατά τη διάρκεια της μέτρησης) και χρησιμοποιώντας τις σχέσεις 2.4, 2.5 και 2.6, προκύπτει ο ρυθμός των «καθαρών» (διορθωμένων για το υπόβαθρο) κρούσεων Net στη φωτοκορυφή του φάσματος η οποία αντιστοιχεί σε ενέργεια φωτονίων E_γ :

$$Net(E_\gamma) = \phi \cdot \sigma_{act} \cdot \frac{N_{AV} \cdot \alpha \cdot m}{M} \cdot (1 - e^{-\lambda t_d}) \cdot e^{-\lambda t_c} \cdot \frac{(1 - e^{-\lambda t_c})}{\lambda} \cdot \epsilon_\gamma \cdot f_\gamma \quad (2.7)$$

όπου:

N_{AV} = αριθμός Avogadro, mol^{-1}

α = συχνότητα εμφάνισης του ισοτόπου στόχου

m = μάζα του στοιχείου που ακτινοβολήθηκε, g

M = μοριακό βάρος, $\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$

ϵ_γ = απόδοση φωτοκορυφής του ανιχνευτή

f_γ = πιθανότητα εκπομπής μιας ακτίνας γ από τη διάσπαση του πυρήνα, $\text{photons} \cdot \text{disintegration}^{-1}$

* Η τελευταία σχέση ισχύει στην περίπτωση που τα φαινόμενα αυτό-απορρόφησης και σύμπτωσης ακτίνων γ (summation) μπορούν να θεωρηθούν αμελητέα.

² Εδώ περιγράφεται η απλούστερη περίπτωση. Οι υπολογισμοί γίνονται πιο σύνθετοι όταν το ραδιενεργό προϊόν διασπάται σε κάποιον άλλο ασταθή πυρήνα με συγκεκριμένη ενεργότητα, π.χ. $^{46}\text{Ca}(n, \gamma)^{47}\text{Ca}(\beta^-)^{47}\text{Sc}$, όπου το προϊόν ενεργοποίησης είναι το ^{47}Ca αλλά στη μέτρηση χρησιμοποιείται το ^{47}Sc .

2.1.3 Βαθμονόμηση

Βαθμονόμηση ή προτυποποίηση (standardization) ονομάζεται η μέθοδος προσδιορισμού των συντελεστών αναλογίας, F , μεταξύ του μετρούμενου εμβαδού των φωτοκορυφών του φάσματος και της συγκέντρωσης των στοιχείων στο δείγμα για τις συγκεκριμένες πειραματικές συνθήκες. Οι μέθοδοι βαθμονόμησης διακρίνονται σε απόλυτες και σχετικές.

Κατά την απόλυτη βαθμονόμηση οι παράγοντες N_{AV} , α , M , f_γ , σ_{act} και λ λαμβάνονται από τη βιβλιογραφία. Οι υπόλοιπες παράμετροι cps_{NET} , m , ϕ , ϵ_γ , t_i , t_d , t_d προσδιορίζονται για τις συγκεκριμένες πειραματικές συνθήκες.

Κατά τη σχετική βαθμονόμηση το δείγμα ακτινοβολείται ταυτόχρονα με ένα δείγμα βαθμονόμησης που περιέχει γνωστές ποσότητες των στοιχείων ενδιαφέροντος το οποίο μετράται κάτω από τις ίδιες συνθήκες με το υπό ανάλυση δείγμα. Σε αυτή τη διαδικασία πολλές παράμετροι της βαθμονόμησης απλοποιούνται ενώ οι υπόλοιπες είναι γνωστές με ικανοποιητική ακρίβεια. Αυτή η μέθοδος βαθμονόμησης χρησιμοποιείται σε περιπτώσεις όπου απαιτείται η υψηλότερη δυνατή ακρίβεια όπως στην πιστοποίηση υλικών αναφοράς.

Σχετική βαθμονόμηση της πολύ-στοιχειακής ΕΑΝΕ επιτυγχάνεται και με τη μέθοδο του ενιαίου προτύπου (single-comparator method). Κατά τη μέθοδο αυτή, πρότυπα δείγματα όλων των στοιχείων ακτινοβολούνται ταυτόχρονα με το στοιχείο το οποίο θεωρείται ως το ενιαίο πρότυπο. Η ευαισθησία της μέτρησης για κάθε στοιχείο προσδιορίζεται σε σχέση με το ενιαίο πρότυπο. Επομένως, σε επίπεδο καθημερινής πρακτικής, και με την προϋπόθεση ότι οι πειραματικές συνθήκες διατηρούνται χρονικά σταθερές, αρκεί η χρήση του ενιαίου προτύπου. Ο λόγος της ευαισθησίας των στοιχείων ενδιαφέροντος προς του στοιχείου του ενιαίου προτύπου ορίζεται ως παράγοντας k [Simonits και συν. 1975].

Βελτίωση της μεθόδου του ενιαίου προτύπου αποτελεί η k_0 μέθοδος προτυποποίησης [Girardi και συν. 1965, Simonits και συν. 1982, De Corte 1992, De Corte και συν. 1993, Pomme και συν. 1996, Pomme και συν. 1997, De Corte 2000, De Corte και συν. 2001]. Η k_0 μέθοδος επιτρέπει την εξάλειψη της εξάρτησης του παράγοντα k από τις παραμέτρους της νετρονικής ροής και των χαρακτηριστικών της γ φασματοσκοπίας.

2.2 ΑΝΑΛΥΣΗ ΜΕ ΝΕΤΡΟΝΙΚΗ ΕΝΕΡΓΟΠΟΙΗΣΗ ΜΕΓΑΛΩΝ ΔΕΙΓΜΑΤΩΝ

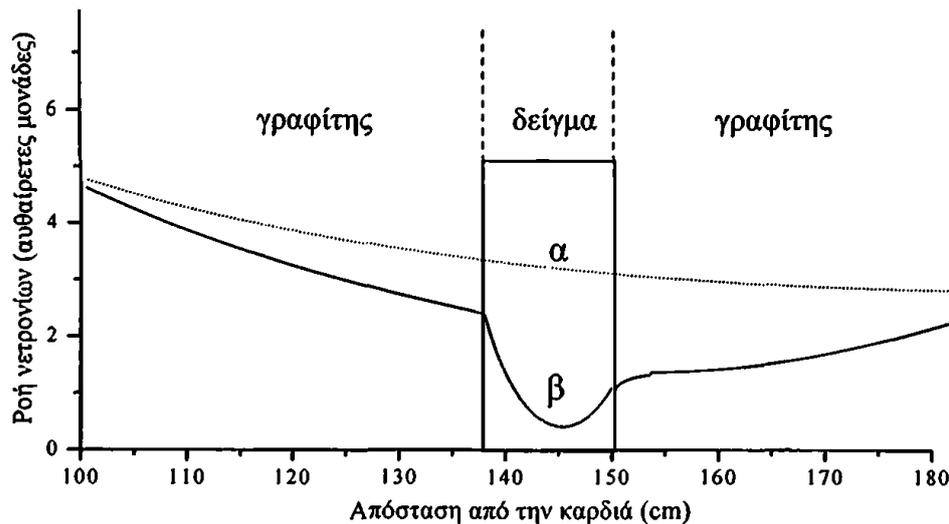
Η εισαγωγή ενός μεγάλου δείγματος στη θέση ακτινοβολήσης έχει σαν συνέπεια την πρόκληση σημαντικής διαταραχής του πεδίου νετρονίων τόσο μέσα στο δείγμα όσο και στο μέσο που το



περιβάλλει λόγω σκέδασης και αυτο-απορρόφησης νετρονίων από το υλικό του δείγματος. Όταν το ενεργοποιημένο δείγμα μεταφέρεται προς μέτρηση, η γεωμετρία ανίχνευσης απέχει σημαντικά από αυτή της ανίχνευσης σημειακής πηγής με συνέπεια να απαιτείται ο προσδιορισμός της απόδοσης του ανιχνευτή για πηγή όγκου. Επιπλέον, οι ακτίνες γ που φθάνουν στον ανιχνευτή έχουν υποστεί εξασθένηση από το υλικό του δείγματος. Αναλυτική περιγραφή των φαινομένων που υπεισέρχονται στην ακτινοβόληση σε πεδίο νετρονίων και στην ανίχνευση των ακτίνων γ από ενεργοποίηση ενός δείγματος μεγάλου όγκου δίνεται στις παραγράφους 0 και 2.4 αντίστοιχα.

2.3 ΔΙΑΤΑΡΑΧΗ ΤΟΥ ΠΕΔΙΟΥ ΘΕΡΜΙΚΩΝ ΝΕΤΡΟΝΙΩΝ

Κατά την ακτινοβόληση ενός μεγάλου δείγματος στη θερμική στήλη το πεδίο νετρονίων διαταράσσεται εξαιτίας της απορρόφησης των νετρονίων και της σκέδασής τους από το υλικό του δείγματος. Η ροή των νετρονίων διαταράσσεται μέσα στο ίδιο το δείγμα, είναι όμως δυνατόν να διαταραχθεί σημαντικά και στο μέσο που περιβάλλει το δείγμα, όπως για παράδειγμα στο γραφίτη της θερμικής στήλης. Σχηματική απεικόνιση του φαινομένου φαίνεται στο Σχήμα 2-1.



Σχήμα 2-1: Η διαταραχή της ροής νετρονίων μέσα και έξω από κυλινδρικά δείγματα σε μέσο από γραφίτη. Η καμπύλη α αναφέρεται σε δείγμα από γραφίτη ενώ η καμπύλη β αντιστοιχεί σε διαφορετικό υλικό δείγματος.

2.3.1 Βασικές αρχές

Τα νετρόνια ταξινομούνται με βάση την ενέργειά τους σε τρεις βασικές κατηγορίες (Πίνακας 2-1). Τα νετρόνια που προκύπτουν από τη σχάση του ^{235}U είναι ταχέα, με μέση ενέργεια 2 MeV. Λόγω ελαστικών σκεδάσεων χάνουν μέρος της ενέργειάς τους και επιβραδύνονται. Κατόπιν πολλαπλών σκεδάσεων γίνονται αρχικά επιθερμικά και στη συνέχεια θερμικά. Έτσι, εάν σε ένα σύστημα με ταχύτητες νετρονίων μεταξύ v και $v + dv$ [$\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$], dn είναι ο αριθμός των νετρονίων ανά μονάδα όγκου [cm^{-3}], και n είναι ο συνολικός αριθμός των νετρονίων προς τον όγκο του συστήματος, τότε ισχύει:

$$\frac{dn}{n} = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v^2}{v_0^3} e^{-v^2/v_0^2} dv \quad (2.8)$$

όπου v_0 η πιθανότερη τιμή της ταχύτητας η οποία συνδέεται με την απόλυτη θερμοκρασία T [K] του περιβάλλοντος υλικού ως εξής:

$$\frac{1}{2} m v_0^2 = E_0 = kT \quad (2.9)$$

όπου E_0 η ενέργεια των νετρονίων με ταχύτητα v_0 και k η σταθερά του Boltzmann που ισούται με $1.38662 \cdot 10^{-23} \text{ J}\cdot\text{K}^{-1}$.

Πίνακας 2-1 Ταξινόμηση των νετρονίων με βάση την ενέργειά τους

Ενεργειακό εύρος	Όνομα
< 0.005 eV	Ψυχρά (Cold)
0.005 – 0.5 eV	Θερμικά (Thermal)
0.5 eV – 1 keV	Επι-θερμικά (Epi-Thermal)
1 – 100 keV	Συντονισμού (Resonance)
> 100 keV	Ταχέα (Fast)

Αν $n(0)$ ο αριθμός των μονοενεργειακών νετρονίων που προσπίπτουν κάθετα σε επιφάνεια λεπτού φύλλου υλικού άπειρης έκτασης και $n(x)$ ο αριθμός των νετρονίων που διαπερνούν πάχος υλικού x χωρίς αλληλεπίδραση, ισχύει:

$$n(x) = n(0) \cdot e^{-N\sigma x} \quad (2.10)$$

όπου N είναι η ατομική πυκνότητα του υλικού [cm^{-3}] και σ_t είναι η συνολική ενεργός διατομή ανά άτομο υλικού [cm^2]. Το γινόμενο των ποσοτήτων N και σ_t αναφέρεται ως μακροσκοπική ενεργός διατομή του υλικού, Σ_t [cm^{-1}].

Ο αριθμός των νετρονίων που διαπερνούν πάχος υλικού x χωρίς σκέδαση προκύπτει όταν στη σχέση 2.10 αντικατασταθεί η ολική ενεργός διατομή από την ενεργό διατομή σκέδασης σ_s . Κατά αντιστοιχία με τα προηγούμενα, το γινόμενο των N και σ_s αναφέρεται ως μακροσκοπική ενεργός διατομή σκέδασης του υλικού, Σ_s [cm^{-1}].

Η μέση απόσταση που διανύει ένα νετρόνιο μέσα στο υλικό χωρίς να υποστεί κανενός είδους αλληλεπίδραση ονομάζεται συνολική μέση ελεύθερη διαδρομή, λ_t [cm] και δίνεται από τη σχέση:

$$\lambda_t = \frac{1}{N\sigma_t} = \frac{1}{\Sigma_t} \quad (2.11)$$

Αντίστοιχα η μέση ελεύθερη διαδρομή σκέδασης λ_s είναι:

$$\lambda_s = \frac{1}{\Sigma_s} \quad (2.12)$$

και εφόσον η Σ_t είναι το άθροισμα όλων των επιμέρους ενεργών διατομών, θα ισχύει:

$$\frac{1}{\lambda_t} = \frac{1}{\lambda_s} + \frac{1}{\lambda_a} + \dots \quad (2.13)$$

όπου λ_a είναι η μέση ελεύθερη διαδρομή απορρόφησης (σύλληψης και σχάσης).

Η μέση απόσταση $\langle r \rangle$ από το σημείο που ένα νετρόνιο καθίσταται θερμικό έως το σημείο που αυτό απορροφάται είναι ανάλογη προς το μήκος L γνωστό ως μήκος διάχυσης θερμικών νετρονίων (thermal neutron diffusion length): $\langle r \rangle = 2L$. Όταν $\Sigma_a \ll \Sigma_s$ και για μέσα μεγάλης τιμής μαζικού αριθμού, το μήκος διάχυσης L [cm] σχετίζεται με τις μέσες ελεύθερες διαδρομές λ_s και λ_a ως εξής:

$$L^2 = \frac{\lambda_s \lambda_a}{3(1 - \overline{\cos \chi})} = \frac{1}{3\Sigma_s \Sigma_a (1 - \overline{\cos \chi})} = \frac{D}{\Sigma_a} \quad (2.14)$$

όπου $\overline{\cos \chi}$ είναι το μέσο συνημίτονο της γωνίας σκέδασης και D η σταθερά διάχυσης θερμικών νετρονίων [cm].

2.3.2 Θεωρία διάχυσης Νετρονίων

Η βασική προϋπόθεση της θεωρίας διάχυσης νετρονίων είναι ότι το νετρόνιο μπορεί να θεωρηθεί ότι συμπεριφέρεται παρόμοια με τα μόρια αερίου στη θεωρία διάχυσης αερίων. Μια τέτοια προσέγγιση για τα θερμικά νετρόνια είναι ικανοποιητική εφόσον μπορεί να θεωρηθεί ότι:

- Όλα τα νετρόνια έχουν την ίδια ταχύτητα.
- Η απορρόφηση των νετρονίων στο μέσο μπορεί να θεωρηθεί αμελητέα σε σχέση με τη σκέδαση.
- Η νετρονική πυκνότητα (νετρόνια ανά μονάδα όγκου) στο μέσο δε διαφέρει σημαντικά σε διάστημα μερικών ελεύθερων διαδρομών.

Με βάση τα παραπάνω προκύπτει ότι το ρεύμα νετρονίων \mathbf{J} , ο αριθμός των νετρονίων που διαπερνούν τη μονάδα επιφανείας στη μονάδα του χρόνου [$\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$], δίνεται από τη σχέση:

$$\mathbf{J} = -\frac{1}{3\Sigma_s(1-\cos\chi)} \mathbf{v}\nabla n = -D\nabla n \quad (2.15)$$

όπου D η σταθερά διάχυσης.

Η εξίσωση διάχυσης για τα θερμικά νετρόνια μπορεί να διατυπωθεί κατά ανάλογο τρόπο προς αυτή των αερίων: ο ρυθμός μεταβολής την νετρονικής πυκνότητας, $\partial n/\partial t$, ισούται με το ρυθμό παραγωγής νετρονίων στη μονάδα του όγκου, S , όταν αφαιρεθούν ο ρυθμός διαρροής νετρονίων από τη μονάδα του όγκου, $\nabla\mathbf{J}$, καθώς και ο ρυθμός απορρόφησης νετρονίων ανά μονάδα όγκου, $\Sigma_a n$. Η αντίστοιχη σχέση είναι η εξής:

$$S - \nabla\mathbf{J} - \Sigma_a n = -\frac{\partial n}{\partial t} \quad (2.16)$$

Για κατάσταση ισορροπίας ισχύει: $\partial n/\partial t = 0$ και έτσι η σχέση 2.16 γίνεται:

$$S - \nabla(D\nabla\phi) - \Sigma_a\phi = 0 \quad (2.17)$$

όπου έχει χρησιμοποιηθεί η σχέση 2.15 για το ρεύμα νετρονίων καθώς και το γεγονός ότι όλα τα νετρόνια έχουν την ίδια ταχύτητα οπότε η ροή νετρονίων εκφράζεται ως $\phi = nv$ [$\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$].

Οι λύσεις της εξίσωσης διάχυσης πρέπει να ικανοποιούν τις συνοριακές συνθήκες:

- Η νετρονική ροή είναι πεπερασμένη και μη αρνητική στην περιοχή για την οποία λύνεται η εξίσωση διάχυσης.



Πειραματικές διατάξεις και μέθοδοι για την ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση δειγμάτων μεγάλου όγκου

- Στη διεπιφάνεια μεταξύ δύο διαφορετικών μέσων η ροή και το ρεύμα νετρονίων είναι συνεχής.
- Στα όρια της περιοχής για την οποία λύνεται η εξίσωση διάχυσης, η ροή των νετρονίων ή/ και το ρεύμα νετρονίων πρέπει να είναι γνωστά.

Στη βιβλιογραφία δίνονται λύσεις της εξίσωσης διάχυσης για απλές γεωμετρίες. Για παράδειγμα η λύση της εξίσωσης στην περίπτωση επιφανειακής πηγής νετρονίων σε ένα παραλληλεπίπεδο μέσο πλάτους b , ύψους c , με μήκος διάχυσης L , σταθερά διάχυσης D , και ροή των νετρονίων ϕ [Glastone και Edlund 1952]:

$$\phi = \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{n=1}^{\infty} A_{mn} \cdot \cos \frac{n \cdot \pi \cdot z}{c} \cdot \cos \frac{n \cdot \pi \cdot y}{b} \cdot e^{-w_{mn} \cdot x} \quad (2.18)$$

Όπου

$$w_{mn}^2 = \kappa^2 + \left(\frac{m \cdot \pi}{b} \right)^2 + \left(\frac{n \cdot \pi}{c} \right)^2$$

με

$$\kappa^2 = 1/L^2$$

και

$$A_{mn} = \frac{2 \cdot S}{b \cdot c \cdot D \cdot w_{mn}}$$

όπου το S αντιπροσωπεύει τον όρο της πηγής με αποτέλεσμα κατά μήκος του άξονα x και λαμβάνοντας $y=z=0$:

$$\phi(x, 0, 0) = A_{11} \cdot \frac{e^{-w_{11} \cdot x}}{w_{11}} \quad (2.19)$$

Η αναλυτική λύση της εξίσωσης διάχυσης, σε δύο διαστάσεις, για τη γεωμετρία της διάταξης ακτινοβολήσης στη θερμική στήλη, που περιλαμβάνει το μέσο (γραφίτη), τον δειγματοφορέα και κυλινδρικό δείγμα, έχει συζητηθεί από τους Overwater και Hoogenboom [1994].

2.3.3 Διορθωτικός συντελεστής αυτο-απορρόφησης νετρονίων

Όταν ένα υλικό ακτινοβοληθεί σε πεδίο νετρονίων η συνολική ενεργοποίηση θα είναι ανάλογη προς τη μέση ροή των νετρονίων σ' όλο τον όγκο του δείγματος. Εφόσον υπάρχει αυτο-απορρόφηση



νετρονίων μέσα στο δείγμα και διαταραχή της ροής στη γειτονιά του δείγματος (επιβραδυντής), η μέση ροή θα είναι μικρότερη από την προσπίπτουσα ροή στην επιφάνεια του δείγματος.

Για την περιγραφή της αυτο-απορρόφησης νετρονίων και της διαταραχής της ροής των νετρονίων έχουν οριστεί ο παράγοντας αυτο-απορρόφησης νετρονίων, ο παράγοντας μείωσης ροής νετρονίων (flux depression) και ο συνολικός παράγοντας εξασθένησης νετρονίων [IAEA 1970]. Ο παράγοντας αυτο-απορρόφησης νετρονίων, f_n , ορίζεται ως ο λόγος της μέσης ροής μέσα στον όγκο του δείγματος, $\overline{\phi}_V$, προς τη μέση προσπίπτουσα ροή στην επιφάνεια του δείγματος, $\overline{\phi}_S$:

$$f_n \equiv \frac{\overline{\phi}_V}{\overline{\phi}_S} \quad (2.20)$$

Ο παράγοντας μείωσης ροής νετρονίων, h_n , ορίζεται ως ο λόγος της μέσης προσπίπτουσας ροής στην επιφάνεια του δείγματος, $\overline{\phi}_S$, προς τη μέση ροή στην περιοχή του δείγματος πριν την εισαγωγή του δείγματος, ροή αναφοράς $\overline{\phi}_r$:

$$h_n \equiv \frac{\overline{\phi}_S}{\overline{\phi}_r} \quad (2.21)$$

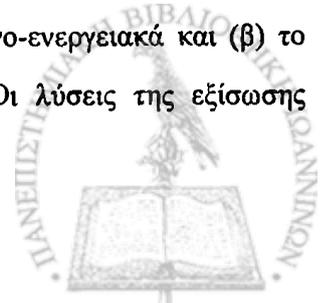
Ο συνολικός παράγοντας εξασθένησης νετρονίων ορίζεται ως $g_n = f_n \cdot h_n$ και αντιπροσωπεύει το λόγο της μέσης ροής μέσα στον όγκο του δείγματος, $\overline{\phi}_V$, προς τη μέση ροή στην περιοχή του δείγματος πριν την εισαγωγή του δείγματος, ροή αναφοράς $\overline{\phi}_r$:

$$g_n \equiv \frac{\overline{\phi}_V}{\overline{\phi}_r} \quad (2.22)$$

Οι τιμές των παραγόντων f_n , h_n και g_n εξαρτώνται από την ενέργεια των νετρονίων, το μέγεθος και το σχήμα του δείγματος καθώς και από τη σύσταση του δείγματος και του περιβάλλοντος μέσου (επιβραδυντή).

I. Προσέγγιση με τη χρήση της εξίσωσης μεταφοράς

Η μελέτη του παράγοντα αυτό-απορρόφησης, f_n , στη γενική περίπτωση απαιτεί τη λύση της χωρικά και ενεργειακά εξαρτώμενης εξίσωσης μεταφοράς στο δείγμα καθώς και στο περιβάλλον μέσο. Ο προσδιορισμός του f_n απλουστεύεται αν (α) τα νετρόνια θεωρηθούν μονο-ενεργειακά και (β) το πεδίο των νετρονίων θεωρηθεί ισοτροπικό ή σαν παράλληλη δέσμη. Οι λύσεις της εξίσωσης



Πειραματικές διατάξεις και μέθοδοι για την ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση δειγμάτων μεγάλου όγκου

μεταφοράς για τις ειδικές περιπτώσεις γεωμετρίας παραλληλεπίπεδου και κυλίνδρου σε μονο-ενεργειακό ισοτροπικό πεδίο νετρονίων δίνονται στις σχέσεις 2.23 - 2.26 [Gilat και Gurfinkel 1963, IAEA 1970, Fleming 1982]. Σημειώνεται ότι η τιμή του f_n εξαρτάται από μία μόνο αδιάστατη μεταβλητή, x , η οποία εκφράζει το μέγεθος του απορροφητή σε μονάδες μέσης ελεύθερης διαδρομής απορρόφησης και είναι ως εκ τούτου ανάλογη προς τη μακροσκοπική ενεργό διατομή απορρόφησης Σ_a .

Παραλληλεπίπεδο άπειρης έκτασης πάχους T με $x \equiv T\Sigma_a$:

$$f_{n,slab} = \frac{1}{x} \left[\frac{1}{2} - E_3(x) \right] \quad (2.23)$$

όπου $E_3(x)$: εκθετικό ολοκλήρωμα (Exponential Integral)

και

$$\lim_{x \rightarrow 0} f_{n,slab} = 1 - \frac{x}{2} \ln(1/x) - \frac{x}{2} \left(\frac{3}{2} - \gamma \right) - \frac{x^2}{6} \quad (2.24)$$

με $\gamma = 0.577216$.

Κύλινδρος απείρου μήκους ακτίνας r με $x \equiv R\Sigma_a$:

$$f_{n,cyl} = \frac{2x}{3} \left\{ 2 \left[x \cdot K_1(x) \cdot I_1(x) + K_0(x) \cdot I_0(x) - 1 \right] + \frac{K_1(x) \cdot I_1(x)}{x} - K_0(x) \cdot I_1(x) + K_1(x) \cdot I_0(x) \right\} \quad (2.25)$$

όπου $K_n(x)$, $I_n(x)$: τροποποιημένες συναρτήσεις Bessel (Modified Bessel Functions)

και

$$\lim_{x \rightarrow 0} f_{n,cyl} = 1 - \frac{4x}{3} + \frac{x^2}{2} \ln(2/x) + \frac{x^2}{2} \left(\frac{5}{4} - \gamma \right) \quad (2.26)$$

II. Προσέγγιση με τη χρήση του μοντέλου διάχυσης

Ο προσδιορισμός του παράγοντα αυτό-απορρόφησης, f_n , μέσω της θεωρίας διάχυσης προϋποθέτει ότι ο απορροφητής τοποθετείται σε μονο-ενεργειακό ισοτροπικό πεδίο ροής νετρονίων. Το μοντέλο διάχυσης υποθέτει ότι το νετρόνιο έχει υποστεί πολλές σκεδάσεις μέσα στο υλικό του απορροφητή μέχρι τη στιγμή που θα απορροφηθεί. Με βάση υπολογισμούς αυτού του μοντέλου, κάτω από τις

Ανάπτυξη και βιοϊατρικές εφαρμογές τεχνικής ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση δειγμάτων μεγάλου όγκου

συνοριακές συνθήκες για τη ροή νετρονίων ότι (α) η κατανομή της είναι συμμετρική και (β) ο συνολικός αριθμός των νετρονίων που προσπίπτουν στη μονάδα επιφανείας είναι $\phi_0/4$, ο προσδιορισμός του συντελεστή f_n , για τις ειδικές περιπτώσεις γεωμετρίας παραλληλεπιπέδου και κυλίνδρου, γίνεται χρησιμοποιώντας τις σχέσεις 2.27 και 2.28 [Meghreblian και Holmes 1960]:

Παραλληλεπίπεδο άπειρης έκτασης πάχους $2a$:

$$f_{n,slab} = \frac{1}{ka \coth ka} \quad (2.27)$$

Κύλινδρος απείρου μήκους ακτίνας r :

$$f_{n,cyl} = \frac{2I_1(kr)}{krI_0(kr)} \quad (2.28)$$

III. Προσέγγιση για κύλινδρο πεπερασμένου μήκους

Για την περίπτωση κυλίνδρου με πεπερασμένο ύψος h και ακτίνα r οι Gilat και Gurfinkel [1963] πρότειναν τη χρήση της σχέσης:

$$f_n \cong \frac{r \cdot f_{n,slab} + h \cdot f_{n,cyl}}{r + h} \quad (2.29)$$

όπου τα $f_{n,slab}$ και $f_{n,cyl}$ έχουν προκύψει από τις σχέσεις 2.23, 2.25, 2.27 και 2.28 θέτοντας όπου $x = a$, και r την ποσότητα $\frac{r \cdot h}{r + h} \Sigma_a$. Οι εν λόγω εκφράσεις αγνοούν το φαινόμενο της σκέδασης των νετρονίων στον απορροφητή. Η επίδραση της σκέδασης στο συντελεστή αυτό-απορρόφησης νετρονίων μπορεί να εκτιμηθεί από την έκφραση [Gilat και Gurfinkel 1963]:

$$f_n = \frac{f_{n_0}}{1 - \frac{\Sigma_s}{\Sigma_t} (1 - f_{n_0})} \quad (2.30)$$

όπου f_{n_0} είναι ο συντελεστής αυτο-απορρόφησης που υπολογίζεται θεωρώντας $\Sigma_s = 0$ και Σ_s/Σ_t είναι ο λόγος της μακροσκοπικής διατομής σκέδασης προς τη συνολική διατομή.



2.4 γ ΦΑΣΜΑΤΟΣΚΟΠΙΑ

Η γ φασματοσκοπία γίνεται συνήθως με ανιχνευτές υπερκαθαρού γερμανίου (HPGe). Για να ανιχνευθεί ακτίνα γ πρέπει πρώτα να αλληλεπιδράσει με το υλικό του ανιχνευτή. Η πιθανότητα να συμβεί μια τέτοια αλληλεπίδραση καθορίζει την απόδοση του ανιχνευτή. Στοιχεία της αλληλεπίδρασης των ακτίνων γ με την ύλη δίνονται παρακάτω.

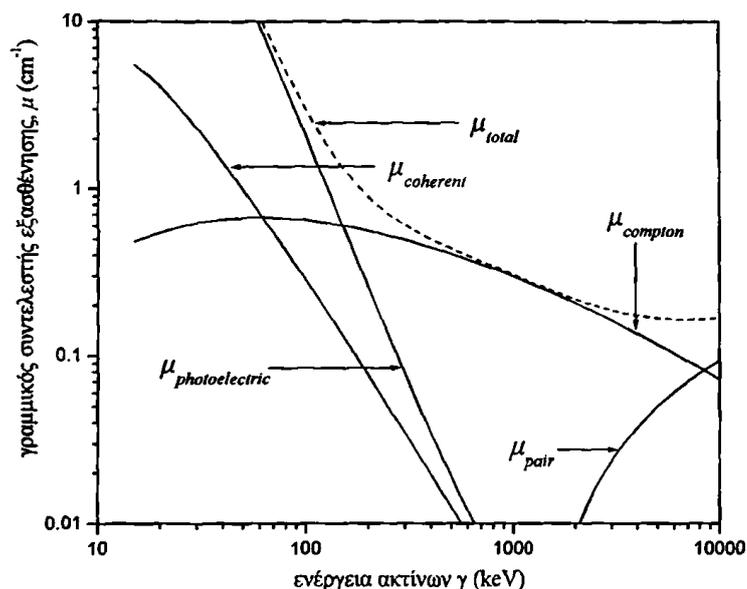
2.4.1 Αλληλεπίδραση ακτίνων γ και ύλης

Η πιθανότητα αλληλεπίδρασης μιας παράλληλης στενής δέσμης φωτονίων ενέργειας E_γ με τα άτομα ενός υλικού ατομικού αριθμού Z περιγράφεται από το γραμμικό συντελεστή εξασθένησης του υλικού $\mu(E_\gamma, Z)$ [cm^{-1}]. Ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης, μ_{tot} , είναι το άθροισμα των επιμέρους γραμμικών συντελεστών εξασθένησης για κάθε ένα από τα πιθανά φαινόμενα αλληλεπίδρασης ακτινοβολίας και ύλης και δίνεται από τη σχέση:

$$\mu_{\text{tot}} = \mu_{\text{photo}} + \mu_{\text{coherent}} + \mu_{\text{compton}} + \mu_{\text{pair}} \quad (2.31)$$

όπου οι δείκτες υποδεικνύουν τους διαφορετικούς μηχανισμούς αλληλεπίδρασης, για παράδειγμα φωτοηλεκτρικό φαινόμενο, σύμφωνη σκέδαση (Rayleigh), σκέδαση Compton και δίδυμη γένεση. Οι μηχανισμοί αλληλεπίδρασης περιγράφονται αναλυτικά στη βιβλιογραφία [Evans 1955].

Στο Σχήμα 2-2 φαίνεται η εξάρτηση των επιμέρους γραμμικών συντελεστών εξασθένησης από την ενέργεια των ακτίνων γ για το γερμάνιο. Στις χαμηλές ενέργειες ($E_\gamma < 200 \text{ keV}$) υπερισχύει η απορρόφηση με φωτοηλεκτρικό φαινόμενο ενώ στις μεγάλες ενέργειες ($E_\gamma > 8 \text{ MeV}$) κυριαρχεί η δίδυμη γένεση. Στην περιοχή ενεργειών $200 \text{ keV} < E_\gamma < 8 \text{ MeV}$ η σκέδαση Compton είναι η κυρίαρχη αλληλεπίδραση. Ο μηχανισμός της σύμφωνης σκέδασης δε θεωρείται σημαντικός αφού δε συνοδεύεται από ουσιαστική απώλεια ενέργειας και προκαλεί μικρή μόνο εκτροπή των ακτίνων γ η οποία μπορεί να αγνοηθεί στην καθημερινή πράξη. Επιπλέον, ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης του φωτοηλεκτρικού φαινομένου είναι κατά πολύ μεγαλύτερος από αυτόν της σύμφωνης σκέδασης και έτσι η τελευταία αγνοείται από τη μαθηματική θεώρηση του παρόντος κεφαλαίου.



Σχήμα 2-2: Γραμμικοί συντελεστές εξασθένησης, σε συνάρτηση της ενέργειας των ακτίνων γ , για τους κυρίαρχους μηχανισμούς αλληλεπίδρασης που εμφανίζονται στο γερμάνιο.

2.4.2 Ανίχνευση ακτίνων γ

Οι αλληλεπιδράσεις που περιγράφονται στην παράγραφο 2.4.1 μπορούν να συμβούν στο υλικό του κρυστάλλου του ανιχνευτή προκαλώντας την απώλεια μέρους ή όλης της ενέργειας των ακτίνων γ μέσα στον ευαίσθητο όγκο του ανιχνευτή. Το μεγαλύτερο ποσοστό των ακτίνων γ χαμηλής ενέργειας χάνουν την ενέργειά τους μέσω απορρόφησης λόγω του φωτοηλεκτρικού φαινομένου. Για μεγαλύτερες ενέργειες, πολλά φωτόνια εγκαταλείπουν τον κρύσταλλο αφού σκεδαστούν (σκέδαση Compton) με αποτέλεσμα μόνο ένα μέρος της ενέργειας να εναποτίθεται στον ανιχνευτή. Στην περίπτωση φωτονίων ενέργειας μεγαλύτερης των 1.022 MeV είναι δυνατό να συμβεί δίδυμη γένεση, οπότε και προκύπτει ζεύγος ηλεκτρονίου – ποζιτρονίου και στη συνέχεια δύο φωτόνια εξαΰλωσης του ποζιτρονίου ενέργειας 0.511 MeV, που συχνά εναποθέτουν την ενέργειά τους στον ανιχνευτή. Υπάρχει όμως μεγάλη πιθανότητα ένα ή και τα δύο από αυτά τα φωτόνια να διαφύγουν του κρυστάλλου του γερμανίου, οπότε και εμφανίζεται στο ενεργειακό φάσμα φωτοκορυφή μονής (single) ή διπλής διαφυγής (double escape) αντίστοιχα. Αναλυτική περιγραφή της πυρηνικής οργανολογίας και της μεθοδολογίας των μετρήσεων της ακτινοβολίας πραγματοποιείται από τον Knoll [2000].

Η απόδοση φωτοκορυφής ενός ανιχνευτή ϵ εξαρτάται από την ενέργεια. Η απόδοση φωτοκορυφής ενός ανιχνευτή για μια συγκεκριμένη ενέργεια φωτονίων E_γ , $\epsilon_p(E_\gamma)$, ορίζεται ως το



ποσοστό των φωτονίων ενέργειας E_γ που ανιχνεύονται, στην αντίστοιχη φωτοκορυφή του γ φάσματος, σε σχέση με αυτά που εκπέμπονται από σημειακή πηγή:

$$\epsilon_p(E_\gamma) = \frac{N_{\text{φωτ}}}{N_{\text{εκπ}}} \quad (2.32)$$

όπου $N_{\text{φωτ}}$ είναι ο ρυθμός κρούσεων [s^{-1}] για φωτόνια που ανιχνεύονται στη φωτοκορυφή και $N_{\text{εκπ}}$ είναι ο ρυθμός εκπομπής φωτονίων [s^{-1}] από σημειακή πηγή σε στερεά γωνία 4π .

2.4.3 Η απόδοση φωτοκορυφής για δείγμα μεγάλου όγκου

Απόδοση φωτοκορυφής πηγής όγκου, ϵ_v , ορίζεται όπως και στην περίπτωση της σημειακής πηγής ως ο λόγος των φωτονίων ενέργειας E_γ που μετρώνται από τον ανιχνευτή ως προς αυτά που εκπέμπονται από την πηγή. Η απόδοση ϵ_v διαφέρει από την ϵ_p καθώς τα φωτόνια που προσπίπτουν στον ανιχνευτή προέρχονται από διάφορα σημεία του χώρου που καταλαμβάνει η πηγή και επομένως «βλέπουν» τον ανιχνευτή υπό διαφορετικές στερεές γωνίες. Επιπλέον, οι ακτίνες γ που ανιχνεύονται είναι πιθανό να έχουν ήδη υποστεί εξασθένηση μέσα στο υλικό της πηγής. Ωστόσο, όταν η ενεργότητά της είναι ομοιόμορφα κατανεμημένη σε όλο τον όγκο της, η πηγή όγκου μπορεί να θεωρηθεί ότι συνίσταται από σύνολο σημειακών πηγών [Noguchi και συν. 1981, Moens και συν. 1981]. Η απόδοση φωτοκορυφής για πηγή όγκου ϵ_v μπορεί να προκύψει από την ολοκλήρωση της απόδοσης για σημειακή πηγή, ϵ_p , σε όλο τον όγκο της πηγής, αφού για κάθε σημειακή πηγή ληφθεί υπόψη η εξασθένηση των ακτίνων- γ στο υλικό της πηγής. Ως εκ τούτου, η απόδοση φωτοκορυφής για πηγή όγκου ϵ_v προκύπτει από τη γενική έκφραση:

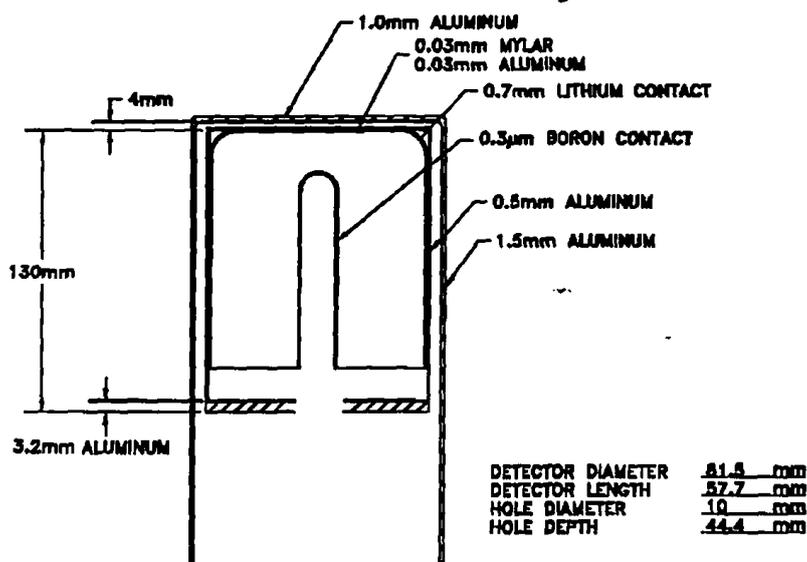
$$\epsilon_v(E_\gamma, V, M(x_0, y_0, z_0)) = \frac{1}{V} \iiint_V \epsilon_p(E_\gamma, x, y, z) e^{-\mu(E_\gamma)\lambda(x, y, z)} dV \quad (2.33)$$

όπου $\epsilon_v(E_\gamma, V, M(x_0, y_0, z_0))$ είναι η απόδοση φωτοκορυφής για φωτόνια ενέργειας E_γ που εκπέμπονται από πηγή όγκου V [cm^3] και κέντρο μάζας $M(x_0, y_0, z_0)$, $\epsilon_p(E_\gamma, x, y, z)$ είναι η χωρική απόδοση φωτοκορυφής για φωτόνια ενέργειας E_γ που εκπέμπονται από ένα σημείο (x, y, z) μέσα στην πηγή, $\mu(E_\gamma)$ είναι ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης [cm^{-1}] του υλικού της πηγής για φωτόνια ενέργειας E_γ και $\lambda(x, y, z)$ είναι η απόσταση [cm] που ταξιδεύει ένα φωτόνιο μέσα στην πηγή μέχρι να διαφύγει από αυτή. Σημειώνεται ότι στη σχέση 2.33 η απορρόφηση του αέρα δεν λαμβάνεται υπόψη.

Ο προσδιορισμός της απόδοσης ϵ_γ , προϋποθέτει ότι οι συναρτήσεις $\epsilon_p(E_\gamma, x, y, z)$, $\lambda(x, y, z)$ και $\mu(E_\gamma)$ είναι γνωστές. Οι αποστάσεις $\lambda(x, y, z)$ μπορούν να υπολογιστούν για συγκεκριμένο σχήμα, προσανατολισμό και θέση πηγής και για ορισμένο ανιχνευτή [Taczanowski 1977]. Ο προσδιορισμός των συναρτήσεων, $\epsilon_p(E_\gamma, x, y, z)$ και $\mu(E_\gamma)$, θα συζητηθεί παρακάτω.

2.4.4 Χωρική εξάρτηση της απόδοσης φωτοκορυφής

Η χωρική απόδοση φωτοκορυφής, $\epsilon_p(E_\gamma, x, y, z)$, ενός ανιχνευτή είναι δυνατόν να προσδιοριστεί είτε με πειραματικές μετρήσεις είτε με υπολογιστικές μεθόδους, με την προϋπόθεση ότι είναι γνωστά τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά και η ακριβής σύσταση του ανιχνευτή καθώς και των υπολοίπων υλικών που περιλαμβάνονται στην κατασκευή της διάταξης και παρεμβάλλονται μεταξύ της πηγής και του ανιχνευτή. Ο πειραματικός προσδιορισμός της συνάρτησης χωρικής απόδοσης φωτοκορυφής, $\epsilon_p(E_\gamma, x, y, z)$, προϋποθέτει πειραματικές μετρήσεις της απόδοσης σε πλήθος σημείων που καλύπτουν τον τρισδιάστατο χώρο γύρω από τον ανιχνευτή.



Σχήμα 2-3: Τομή και γεωμετρικά χαρακτηριστικά του ανιχνευτή γερμανίου, μοντέλο GEM80, όπως διατίθενται από την κατασκευάστρια εταιρία EG&G ORTEC®.

2.4.5 Γραμμικός συντελεστής εξασθένησης

Ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης $\mu(E_\gamma)$ του υλικού της πηγής μπορεί να υπολογιστεί, όταν η σύσταση και η πυκνότητα του υλικού της πηγής είναι γνωστές, μέσω βιβλιογραφικών δεδομένων διατομών συναρτήσει της ενέργειας [Hubbel και Seltzer 1995]. Στην περίπτωση μη γνωστής σύστασης του υλικού της πηγής ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης πρέπει να προσδιοριστεί πειραματικά. Ο πειραματικός προσδιορισμός του $\mu(E_\gamma)$ γίνεται μέσω της μέτρησης της εξασθένησης από το υλικό της πηγής ακτινοβολίας γ καθορισμένης ενέργειας. Η πειραματική διάταξη περιλαμβάνει πολύ-ενεργειακή πηγή φωτονίων (π.χ. ^{152}Eu), χρήση κατευθυντήρα και θωράκιση ανιχνευτή ώστε να προσδιοριστεί ακριβώς το μήκος διαδρομής των φωτονίων στο δείγμα.

Αν I_0 είναι ο ρυθμός κρούσεων [s^{-1}] σε μια φωτοκορυφή του φάσματος της πηγής φωτονίων χωρίς την παρεμβολή του δείγματος, I ο ρυθμός κρούσεων [s^{-1}] στην ίδια φωτοκορυφή του φάσματος μετά την εξασθένηση από το υλικό του δείγματος και d το μήκος διαδρομής των φωτονίων μέσα στο υλικό του δείγματος, ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης του υλικού του δείγματος δίνεται από τη σχέση:

$$\mu(E_\gamma) = \frac{\ln(I_0/I)}{d} \quad (2.34)$$

2.4.6 Συντελεστής διόρθωσης της εξασθένησης της ακτινοβολίας γ

Ο συντελεστής διόρθωσης της εξασθένησης των ακτίνων γ στο υλικό του δείγματος και της απόδοσης του ανιχνευτή για πηγή όγκου, $f_\gamma(E_\gamma, x_0, y_0, z_0, V)$, μπορεί εύκολα να προκύψει από το λόγο της απόδοσης φωτοκορυφής για την πηγή όγκου, $\epsilon_\gamma(E_\gamma, V, M(x_0, y_0, z_0))$, προς την απόδοση φωτοκορυφής για σημειακή πηγή, $\epsilon_p(E_\gamma, M(x_0, y_0, z_0))$ από την:

$$f_\gamma(E_\gamma, x_0, y_0, z_0, V) = \frac{\epsilon_\gamma(E_\gamma, V, M(x_0, y_0, z_0))}{\epsilon_p(E_\gamma, M(x_0, y_0, z_0))} \quad (2.35)$$

ή

$$f_\gamma(E_\gamma, x_0, y_0, z_0, V) = \frac{\frac{1}{V} \iiint_V \epsilon_p(E_\gamma, x, y, z) e^{-\mu(E_\gamma)\lambda(x, y, z)} dV}{\epsilon_p(E_\gamma, M(x_0, y_0, z_0))} \quad (2.36)$$

όπου $\epsilon_r(E_\gamma, V, M(x_0, y_0, z_0))$ είναι η απόδοση φωτοκορυφής για ενέργεια E_γ πηγής όγκου V και κέντρο μάζας $M(x_0, y_0, z_0)$ και $\epsilon_p(E_\gamma, M(x_0, y_0, z_0))$ είναι η απόδοση φωτοκορυφής ενέργειας E_γ σημειακής πηγής τοποθετημένης στο σημείο (x_0, y_0, z_0) .

Έτσι για τον προσδιορισμό των συντελεστών $f_\gamma(E_\gamma, x_0, y_0, z_0, V)$ για δείγματα μεγάλου όγκου και για δεδομένη απόσταση πηγής-ανιχνευτή απαιτούνται: (α) ο προσδιορισμός της απόδοσης φωτοκορυφής $\epsilon_p(E_\gamma, M(x_0, y_0, z_0))$, (β) ο υπολογισμός ή πειραματικός προσδιορισμός του γραμμικού συντελεστή εξασθένησης $\mu(E_\gamma)$ του υλικού του δείγματος και (γ) ο προσδιορισμός της απόδοσης φωτοκορυφής $\epsilon_r(E_\gamma, V, M(x_0, y_0, z_0))$ για όλες τις ενέργειες των κορυφών που παρατηρούνται στο προς ανάλυση δείγμα. Τονίζεται ότι οι αποδόσεις φωτοκορυφής για σημειακή πηγή και πηγή μεγάλου όγκου εξαρτώνται από την απόσταση πηγής-ανιχνευτή αλλά όχι με τον ίδιο ακριβώς τρόπο και επομένως ο συντελεστής διόρθωσης είναι απαραίτητο να προσδιορίζεται για κάθε δείγμα για τη συγκεκριμένη απόσταση πηγής - ανιχνευτή.

2.5 ΤΕΧΝΙΚΗ MONTE CARLO - ΚΩΔΙΚΑΣ MCNP

Όπως συνάγεται από τις προηγούμενες παραγράφους η εξαγωγή συντελεστών διόρθωσης για τη διαταραχή του πεδίου νετρονίων και την αυτο-απορρόφηση των νετρονίων, κατά την ακτινοβολήση ενός μεγάλου δείγματος, καθώς και για την απόδοση φωτοκορυφής για δείγμα μεγάλου όγκου απαιτεί πλήθος πειραματικών μετρήσεων. Το γεγονός αυτό περιορίζει την ευελιξία της τεχνικής και εισάγει παράγοντες που δυσκολεύουν την εφαρμογή της. Κατά συνέπεια η αναζήτηση-ανάπτυξη εναλλακτικών μεθόδων διόρθωσης είναι απαραίτητη.

Η τεχνική Monte Carlo που επιτρέπει την προσομοίωση πολύπλοκων γεωμετριών (π.χ. πηγής – ανιχνευτή) αποδεικνύεται πολύτιμη. Η εν λόγω τεχνική είναι μια στατιστική μέθοδος προσομοίωσης η οποία επιτρέπει τη θεωρητική αναπαραγωγή μιας στατιστικής διαδικασίας, όπως είναι για παράδειγμα η αλληλεπίδραση της ακτινοβολίας – γ και των νετρονίων με την ύλη [Briesmeister 2000]. Είναι ιδιαίτερα χρήσιμη στην περίπτωση σύνθετων προβλημάτων τα οποία δεν μπορούν να προσομοιωθούν με άλλους υπολογιστικούς κώδικες που εφαρμόζουν ντετερμινιστικές μεθόδους. Τα ξεχωριστά πιθανά (probabilistic) γεγονότα μιας διαδικασίας προσομοιώνονται διαδοχικά με τη χρήση ακολουθίας τυχαίων αριθμών. Η στατιστική δειγματοληψία (sampling) των κατανομών πιθανότητας που καθορίζουν τα γεγονότα οδηγεί στην περιγραφή του συνολικού φαινομένου ακολουθώντας την εξέλιξη της πορείας μεγάλου αριθμού σωματιών. Η απόδοση ενός πειράματος με την μέθοδο Monte Carlo επιτυγχάνεται με την παρακολούθηση της διαδόσεως καθενός σωματιδίου της πηγής έως τη



στιγμή του «θανάτου» του, της τελικής του δηλαδή ταξινόμησης (απορρόφηση, διαφυγή κλπ). Για τον προσδιορισμό του αποτελέσματος σε κάθε στάδιο της «ζωής του», οι κατανομές πιθανότητας επλέγονται με τυχαίο τρόπο χρησιμοποιώντας στοιχεία μεταφοράς (transport data). Οι ποσότητες που ενδιαφέρουν καταχωρούνται μαζί με την εκτίμηση του στατιστικού σφάλματος των αποτελεσμάτων. Έτσι καθίσταται δυνατός ο προσδιορισμός των συναρτήσεων των ενεργειακών κατανομών των σωματιών, των αντιδράσεών τους με τα άτομα των υλικών που συναντούν, των προϊόντων των αντιδράσεων, της χωρικής κατανομής της αποτιθέμενης κινητικής ενέργειάς τους και της απόδοσης ενός ανιχνευτή.

Ο κώδικας MCNP είναι ένας Monte Carlo κώδικας ο οποίος μπορεί να χρησιμοποιηθεί για την προσομοίωση της διάδοσης-μεταφοράς νετρονίων, φωτονίων, ηλεκτρονίων ή της συνδυασμένης μεταφοράς νετρονίων/ φωτονίων/ ηλεκτρονίων και παρέχει τη δυνατότητα υπολογισμού ιδιοτιμών (eigenvalues) κρίσιμων συστημάτων. Ο κώδικας διαχειρίζεται αυθαίρετους τρισδιάστατους σχηματισμούς υλικών αποτελούμενους από γεωμετρικά στοιχεία (cells) που ορίζονται από επιφάνειες πρώτου και δευτέρου βαθμού ή ελλειπτικές τετάρτου βαθμού.

Ο κώδικας παρέχει τη δυνατότητα ορισμού εύρους παραμέτρων πηγής όπως είναι η ενέργεια, ο χρόνος, η θέση, η κατεύθυνση και άλλες παράμετροι όπως η επιφάνεια ή το γεωμετρικό στοιχείο εκκίνησης μέσω ανεξάρτητων κατανομών πιθανότητας ή εξαρτημένων μεταβλητών ενώ διατίθενται και έτοιμες αναλυτικές συναρτήσεις όπως είναι για παράδειγμα οι συναρτήσεις Watt, Maxwellian και Gaussian για ενεργειακά φάσματα σχάσης και σύντηξης. Μπορεί ακόμη να καθοριστεί και η γεωμετρική έκταση της πηγής. Τέλος η δυνατότητα της επιφανειακής πηγής επιτρέπει την καταγραφή των σωματιδίων που διαπερνούν την επιφάνεια και την χρησιμοποίησή τους ως πηγή σε επόμενο πρόβλημα.

Χρησιμοποιούνται σημειακές ενεργές διατομές από τη βιβλιοθήκη ενεργών διατομών ENDF/B-VI. Τα θερμικά νετρόνια περιγράφονται με το μοντέλο του ελεύθερου αερίου (free gas model) αλλά και με το μοντέλο σκέδασης $S(\alpha, \beta)$, που λαμβάνει υπόψη τους χημικούς (μοριακούς) δεσμούς και την κρυσταλλική δομή για ενέργειες νετρονίων χαμηλότερες των 4 eV στους 300 °K όπου αυτά τα φαινόμενα γίνονται σημαντικά. Στην περίπτωση των φωτονίων ο κώδικας λαμβάνει υπόψη τη σύμφωνη (coherent) και ασύμφωνη (incoherent) σκέδαση, τη φωτοηλεκτρική απορρόφηση και την απορρόφηση λόγω δίδυμης γένεσης με τοπική εκπομπή ακτινοβολίας (annihilation radiation). Για τη μεταφορά των ηλεκτρονίων, χρησιμοποιείται το μοντέλο συνεχούς επιβράδυνσης (continuous slowing down model), το οποίο περιλαμβάνει παραγωγή ποζιτρονίων, ακτίνων X, χαρακτηριστικής ακτινοβολίας X και ακτινοβολίας πέδησης (bremsstrahlung).



Στοιχεία που συνθέτουν την ευελιξία του κώδικα MCNP και τη δυνατότητα χρήσης του σε πλήθος εφαρμογών είναι οι πλούσιες συλλογές βιβλιοθηκών ενεργών διατομών αλλά και τεχνικών υποβάθμισης της στατιστικής διακύμανσης (variance reduction techniques) και οι πολλαπλές δυνατότητες προσαρμογής των ανιχνευτών στην απαιτούμενη από το χρήστη ποσότητα.

Τα αποτελέσματα του MCNP υποβάλλονται από τον ίδιο τον κώδικα σε δέκα διαφορετικούς στατιστικούς ελέγχους ποιότητας του αποτελέσματος. Οι ποσότητες που εκτιμώνται από αυτά τα τεστ είναι η μέση τιμή, το σχετικό σφάλμα, R , η σχετική διασπορά της διασποράς (Variance of the Variance, VOV), ο παράγοντας ποιότητας (Figure of Merit, FOM) που ορίζεται ως $FOM = 1/R^2T$ για υπολογιστικό χρόνο T , και η στατιστική συμπεριφορά των ιστοριών με μεγάλη βαρύτητα στο αποτέλεσμα (large history score behaviour) της συνάρτησης πυκνότητας πιθανότητας, $f(x)$, για την κάθε περιοχή ανίχνευσης εικονικού ανιχνευτή (tally bin). Η μέση τιμή θεωρείται αποδεκτή αν παρουσιάζει μη μονότονη συμπεριφορά (χωρίς τάση ανόδου ή καθόδου) σε σχέση με τον αριθμό των ιστοριών N για το τελευταίο μισό του προβλήματος ενώ για το ίδιο ισχύει και για τον αριθμό FOM ο οποίος πρέπει επιπλέον να έχει και στατιστικά σταθερή τιμή. Το σχετικό σφάλμα, R , και η σχετική διασπορά της διασποράς, VOV , θεωρούνται αποδεκτά αν μειώνονται με μονότονο τρόπο και ανάλογα προς $1/\sqrt{N}$ σε σχέση με τον αριθμό των ιστοριών N για το τελευταίο μισό του προβλήματος και επιπλέον αν η τιμή του R είναι μικρότερη από 0.05 και 0.10 για σημειακό και μη-σημειακό ανιχνευτή αντίστοιχα και αν η τιμή της VOV είναι μικρότερη από 0.10 για όλους τους τύπους ανιχνευτών. Τέλος, η «κλίση» (SLOPE) n του $1/x^n$ των 25 έως 201 «ισχυρότερων» tally x (των ιστοριών με τη μεγαλύτερη βαρύτητα στο αποτέλεσμα), για να θεωρείται αποδεκτή πρέπει να είναι μεγαλύτερη από 3.0.



ΚΕΦΑΛΑΙΟ 3

ΥΛΙΚΑ ΚΑΙ ΜΕΘΟΔΟΙ

Πειραματικές Διατάξεις για την Ανάλυση με Νετρονική Ενεργοποίηση Δειγμάτων Μεγάλου Όγκου – Μέθοδοι διόρθωσης για την αυτο-απορρόφηση νετρονίων, τη γεωμετρία της πηγής και την εξασθένηση των ακτίνων γ

3.1 ΥΛΙΚΑ

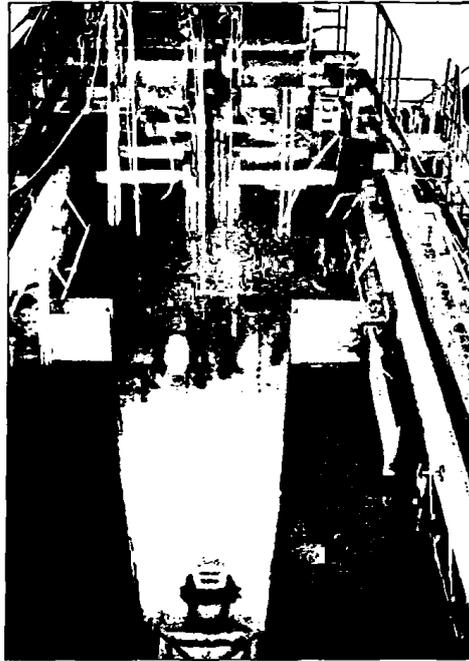
3.1.1 Πειραματικές Διατάξεις για την Ανάλυση με Νετρονική Ενεργοποίηση Μεγάλων Δειγμάτων

3.1.1.1 Πυρηνικός Αντιδραστήρας

Η ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση δειγμάτων μεγάλου όγκου θέτει συγκεκριμένες απαιτήσεις ως προς τον σχεδιασμό και την εγκατάσταση των πειραματικών διατάξεων. Για το σκοπό αυτό στο εργαστήριο του ερευνητικού αντιδραστήρα του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος» αναπτύχθηκαν ειδικές πειραματικές διατάξεις ακτινοβολήσης σε πεδίο νετρονίων και ανίχνευσης ακτίνων γ . Ο ερευνητικός αντιδραστήρας του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος» (βλ. Σχήμα 3-1) είναι ισχύος 5 MW, τύπου ανοικτής δεξαμενής, με καύσιμο εμπλουτισμένο ^{235}U και χρησιμοποιεί ως επιβραδυντή και ψυκτικό μέσο νερό. Ως ανακλαστής νετρονίων χρησιμοποιείται βηρύλλιο στις δυο πλευρές της καρδιάς. Η βάση της καρδιάς αποτελείται από ένα πλέγμα αλουμινίου 9×6 θέσεων στο οποίο τοποθετούνται είτε στοιχεία



Ανάπτυξη και βιοϊατρικές εφαρμογές τεχνικής ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση δειγμάτων μεγάλου όγκου
καυσίμου ή άλλα στοιχεία όπως είναι οι ράβδοι ελέγχου, τα στοιχεία ανακλαστή και τα ειδικά στοιχεία ακτινοβολήσης («παγίδες»).



Σχήμα 3-1: Ο ερευνητικός αντιδραστήρας του Ινστιτούτου Πυρηνικής Τεχνολογίας & Ακτινοπροστασίας του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος».

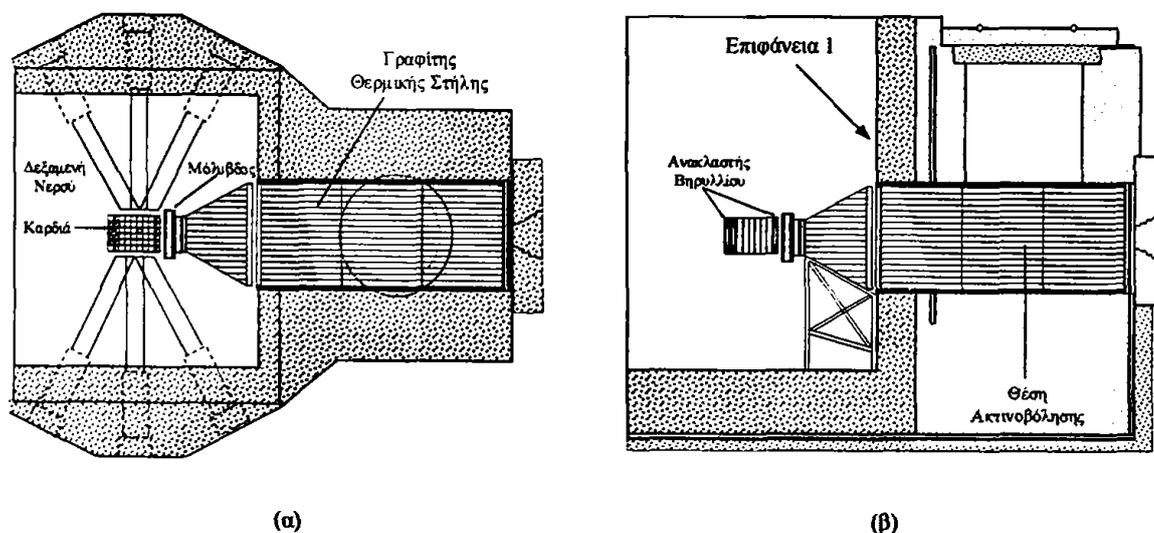
Η διάταξη της καρδιάς του αντιδραστήρα επιτρέπει ακτινοβολήση δειγμάτων σε θερμικά, επιθερμικά και ταχέα νετρόνια.

Η θερμική στήλη του αντιδραστήρα έχει ύψος 130 cm, πλάτος 130 cm και μήκος 282 cm και διαθέτει ράβδους γραφίτη. Για τη θωράκιση του γραφίτη χρησιμοποιείται βοραλουμίνιο (Boral™) πάχους 1 cm και ανοξείδωτο ατσάλι πάχους 1.2 cm. Η υπόλοιπη θωράκιση αποτελείται από βαρυντικό σκυρόδεμα. Μεταξύ της καρδιάς και της θερμικής στήλης παρεμβάλλεται μια κωνική προέκταση της θερμικής στήλης μήκους 60 cm η οποία αποτελείται από ράβδους γραφίτη που βρίσκονται μέσα σε περίβλημα αλουμινίου. Για τη θωράκιση από την ακτινοβολία γ, μεταξύ της καρδιάς και της προέκτασης της θερμικής στήλης έχουν τοποθετηθεί δύο πλάκες μολύβδου συνολικού πάχους 20 cm.

Σχηματική αναπαράσταση της καρδιάς του αντιδραστήρα, της θερμικής στήλης του γραφίτη και των θωρακίσεων δίνεται στο Σχήμα 3-2.

3.1.1.2 Διάταξη ακτινοβολήσης

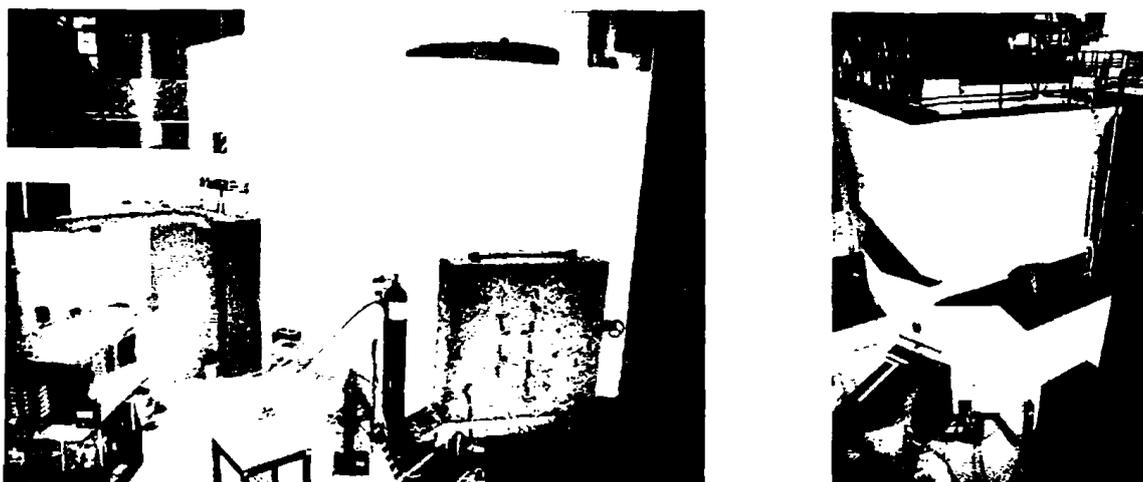
Η ακτινοβολήση των δειγμάτων γίνεται στη θερμική στήλη του αντιδραστήρα (Σχήμα 3-2). Η θέση ακτινοβολήσης βρίσκεται σε απόσταση 240 cm από την επιφάνεια της καρδιάς και στο μέσο του ύψους των στοιχείων καυσίμου. Τα πειράματα που παρουσιάζονται στην παρούσα εργασία πραγματοποιήθηκαν με τη χρήση της οριζόντιας πρόσβασης στη θερμική στήλη μέσω της πλάγιας θύρας από σκυρόδεμα (βλ. Σχήματα 3-2 και 3-3). Ωστόσο, ο τελικός σχεδιασμός της διάταξης προβλέπει κάθετη πρόσβαση στη θέση ακτινοβολήσης ώστε να είναι εφικτή η μεταφορά δειγμάτων για ακτινοβολήση και κατά τη διάρκεια λειτουργίας του αντιδραστήρα.



Σχήμα 3-2: (α) Κάτοψη και (β) κάθετη τομή του ερευνητικού αντιδραστήρα του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος» όπου φαίνονται η καρδιά του αντιδραστήρα, η δεξαμενή νερού, η θερμική στήλη του γραφίτη, οι πειραματικοί σωλήνες και οι θωρακίσεις από μόλυβδο και βαρυντικό σκυρόδεμα.

Η θερμική στήλη του αντιδραστήρα επιλέχθηκε, για την εγκατάσταση της διάταξης ακτινοβολήσης, γιατί συνδυάζει βασικά πλεονεκτήματα ως προς την ακτινοβολήση μεγάλων δειγμάτων:

- Δεν παρεμποδίζει τη λειτουργία του αντιδραστήρα και τη χρήση άλλων πειραματικών διατάξεων και δεν θέτει ζητήματα ασφαλείας.
- Είναι σχετικά εύκολη η δημιουργία ή/και μετατροπή των διαστάσεων του διάκενου στο γραφίτη για την τοποθέτηση του δείγματος και του δειγματοφορέα, μέγιστης διαμέτρου και ύψους 15 και 40 cm, αντίστοιχα στην περίπτωση κυλινδρικών δειγμάτων.



Σχήμα 3-3: Δυνατότητες οριζόντιας και κάθετης πρόσβασης στη θερμική στήλη του αντιδραστήρα.

- Η ροή θερμικών νετρονίων στη θερμική στήλη, σε λειτουργία αντιδραστήρα σε ισχύ 5 MW, είναι της τάξης του $10^9 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ στο σημείο της επιφάνειας εισόδου και $\sim 4 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ στη θέση ακτινοβολήσης. Η τιμή της ροής θερμικών νετρονίων ικανοποιεί τις απαιτήσεις της EANE μεγάλων δειγμάτων, που είναι μικρότερες σε σχέση με αυτές της συμβατικής EANE λόγω της αυξημένης μάζας του δείγματος.
- Ο λόγος της θερμικής προς την επιθερμική ροή νετρονίων στη θέση ακτινοβολήσης είναι υψηλός, περίπου 300, όταν δεν υπάρχει δείγμα (σημαντικό πλεονέκτημα γιατί πρακτικά απαλλάσσει από την ανάγκη διόρθωσης για τη θερμοποίηση νετρονίων μέσα στο υλικό του δείγματος).
- Η στήλη διαθέτει δύο δυνατότητες πρόσβασης: μία οριζόντια από την υπάρχουσα πλάγια θύρα και μία κατακόρυφη από το καπάκι του βαρυτικού σκυροδέματος.

3.1.1.3 Διάταξη φασματοσκοπίας γ

Η σχηματική αναπαράσταση της διάταξης ανίχνευσης ακτινοβολίας γ , που αναπτύχθηκε για τις ανάγκες της ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση δειγμάτων μεγάλου όγκου, δίνεται στο Σχήμα 3-4.

Η μετρητική διάταξη περιλαμβάνει ανιχνευτή υπερκαθαρού γερμανίου (HPGe) και τη θωράκισή του, σύστημα τοποθέτησης του δείγματος και σύστημα πηγής – κατευθυντήρα για τις ανάγκες μετρήσεων διέλευσης ακτίνων γ . Ο ανιχνευτής, ο δειγματοφορέας και ο κατευθυντήρας έχουν τοποθετηθεί σε βάση που διαθέτει οδηγούς αλουμινίου γραμμικής κίνησης οι οποίοι παρέχουν τη δυνατότητα οριζόντιας κίνησης σε καθένα από τα τρία τμήματα. Ο ανιχνευτής θωρακίζεται με μόλυβδο πάχους 5 cm. Η τοποθέτηση του δείγματος μεταξύ του ανιχνευτή και της πηγής γίνεται σε περιστρεφόμενη τράπεζα τύπου 20600RT (κατασκευής Parker Hannifin Co), που ελέγχεται με τη

βοήθεια ηλεκτρονικού υπολογιστή μέσω λογισμικού του εν λόγω κατασκευαστή και επιτρέπει συνεχή ή τμηματική περιστροφή του δείγματος κατά τη μέτρηση. Το σύστημα υποστήριξης του δείγματος έχει τη δυνατότητα καθ' ύψος προσαρμογής. Η πηγή που χρησιμοποιείται για τις μετρήσεις διέλευσης ακτίνων γ είναι τοποθετημένη σε ειδική κατασκευή θωράκισης μολύβδου πάχους 10 cm η οποία διαθέτει παράλληλο κυλινδρικό κατευθυντήρα διαμέτρου 0.5 mm. Η κατασκευή επιτρέπει άνοιγμα και κλείσιμο του κατευθυντήρα κατά τη διάρκεια της μέτρησης της ενεργότητας του ακτινοβολημένου δείγματος η πηγή παραμένει στη θωρακισμένη θέση της.

Η ανίχνευση των ακτίνων γ από τα δείγματα μεγάλου όγκου πραγματοποιείται με ανιχνευτή γερμανίου υψηλής καθαρότητας (HPGe) τύπου GEM80 κατασκευής της εταιρίας EG&G ORTEC® με ονομαστική διάμετρο κρυστάλλου 81.5 mm και μήκος 57.5 mm. Ο ανιχνευτής έχει σχετική απόδοση 85%, διακριτική ικανότητα 1.66 keV, FWHM στα 1333 keV και λόγο φωτοκορυφής προς Compton (peak-to-Compton) 89:1, όπως προέκυψε από τους ελέγχους αποδοχής του σύμφωνα με το ANSI N42.14-1999 (Παράρτημα Α). Η μεγάλη απόδοση του ανιχνευτή γερμανίου είναι απαραίτητη για να εξασφαλίζεται η αντιστάθμιση της απώλειας απόδοσης της μέτρησης όταν αυξάνεται η απόσταση δείγματος - ανιχνευτή. Η συλλογή και ανάλυση του φάσματος των ακτίνων γ επιτελείται από ένα ψηφιακού σήματος σύστημα συλλογής και ανάλυσης δεδομένων (digital signal processing data acquisition system) τύπου DSPEC^{PLUS™} της εταιρίας EG&G ORTEC® που ελέγχεται από ηλεκτρονικό υπολογιστή μέσω του λογισμικού GammaVision της ίδιας εταιρίας.

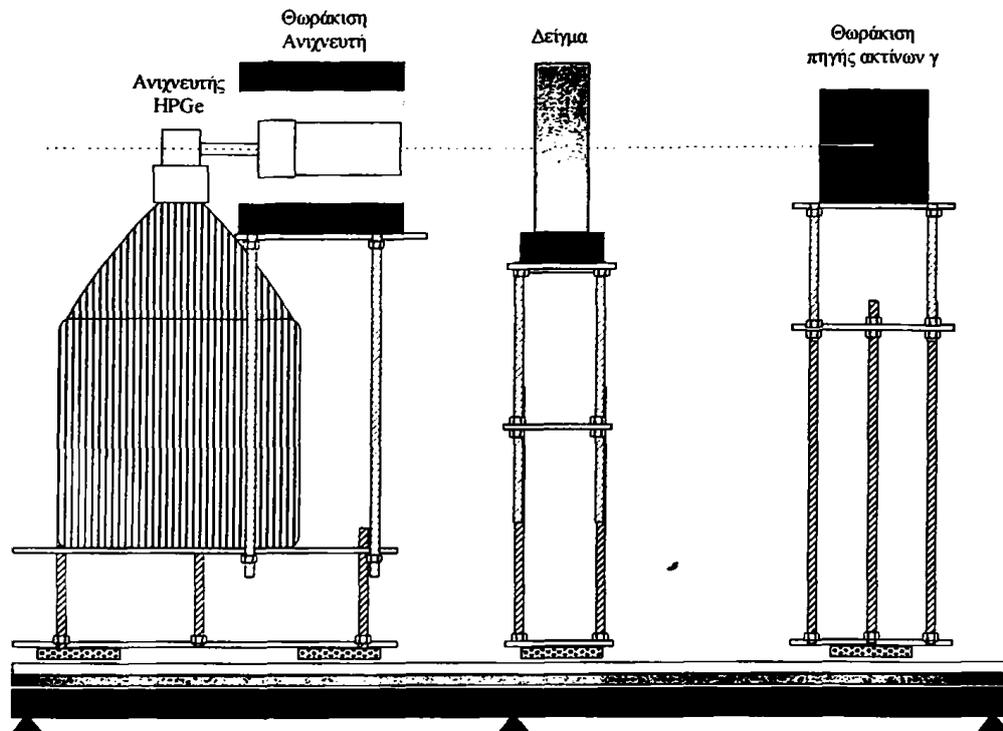
Η μονάδα DSPEC^{PLUS™} αποτελεί ένα πλήρως αυτοματοποιημένο σύστημα ηλεκτρονικών και λογισμικού, που συνδυάζει τις δυνατότητες των αναλογικών συστημάτων χαμηλού και υψηλού ρυθμού (low and high rate), παρέχοντας διακριτική ικανότητα και σταθερότητα. Περιλαμβάνει ένα αναλογικό προ-φίλτρο (prefilter), κυκλώματα ψηφιοποίησης, αυτόματη διόρθωση νεκρού χρόνου και ψηφιακή επεξεργασία του σήματος ώστε να επιτευχθεί βελτιστοποίηση της ενεργειακής διακριτικής ικανότητας και του ρυθμού δεδομένων (data rate). Τα δεδομένα του φάσματος διατηρούνται στη μνήμη του DSPEC έως ότου μεταφερθούν στον υπολογιστή μέσω μίας θύρας μεταφοράς δεδομένων υψηλής ταχύτητας (ή δικτυακής διασύνδεσης).

3.1.2 Πηγές βαθμονόμησης

Για την ενεργειακή βαθμονόμηση και τη μελέτη της απόδοσης του ανιχνευτή γερμανίου χρησιμοποιήθηκαν βαθμονομημένες σημειακές πηγές του Διεθνούς Οργανισμού Ατομικής Ενέργειας. Στον Πίνακα 3-1 δίνεται κατάλογος των πηγών βαθμονόμησης που χρησιμοποιήθηκαν και των πυρηνικών χαρακτηριστικών τους. Το σφάλμα βαθμολόγησης των πηγών είναι της τάξης του 3 %.



Ειδικότερα για τις ανάγκες προσδιορισμού του γραμμικού συντελεστή εξασθένησης των ακτίνων γ από το δείγμα χρησιμοποιήθηκε αποκλειστικά η πηγή ^{152}Eu (Πίνακας 3 2). Ωστόσο, οι απαιτήσεις για ακρίβεια στην ενεργότητα της πηγής δεν είναι υψηλές αφού στην πράξη η διέλευση των ακτίνων γ προσδιορίζεται με σχετικές μετρήσεις μέσω σύγκρισης φωτοκορυφών.



Σχήμα 3-4: Σχηματική αναπαράσταση της διάταξης γ φασματοσκοπίας και μέτρησης της διέλευσης ακτίνων γ (κάθετη τομή).

3.1.3 Δοκίμια

Για την πειραματική επαλήθευση της κατανομής της ροής θερμικών νετρονίων στη θέση ακτινοβολήσης με και χωρίς την παρουσία δείγματος κατασκευάστηκαν τέσσερα ορθογώνια παραλληλεπίπεδα δείγματα από γραφίτη, πλεξιγκλάς, σίδηρο και χαλκό διαστάσεων $10\text{ cm} \times 10\text{ cm} \times 20\text{ cm}$. Τα δείγματα αποτελούνταν από πλάκες διαστάσεων $10\text{ cm} \times 10\text{ cm} \times 1\text{ cm}$, ώστε να είναι εφικτή η τοποθέτηση μεταξύ τους ανιχνευτών ελασμάτων χρυσού για τον προσδιορισμό της ροής θερμικών νετρονίων κατά τη διεύθυνση του μεγάλου άξονα συμμετρίας τους. Φωτογραφία του δείγματος χαλκού δίνεται ενδεικτικά στο Σχήμα 3-5.

Πίνακας 3-1: Σημειακές πηγές βαθμονόμησης που χρησιμοποιήθηκαν για τη βαθμονόμηση και τη μελέτη της απόδοσης του ανιχνευτή γερμανίου

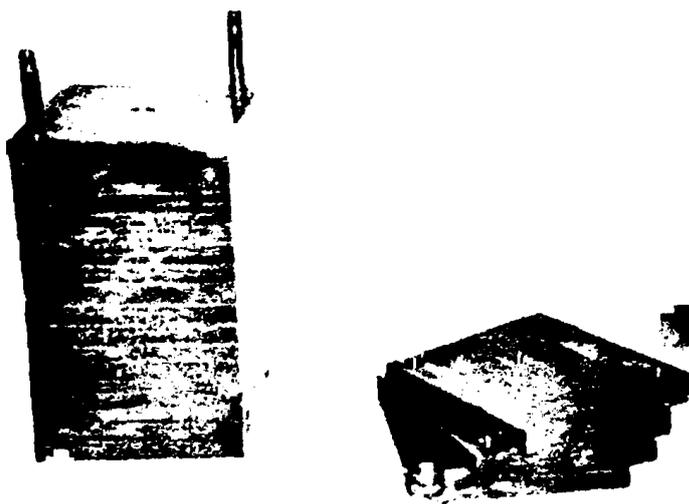
Ισότοπο	Ενεργότητα κατά την 1η Οκτωβρίου 1995 (kBq)	Χρόνος ημιζωής $t_{1/2}$	Ενέργεια ακτίνων γ (keV)	f_{γ} (gammas/decay)
^{57}Co	419.6	272 d	122.046	0.856
			136.5	0.106
^{133}Ba	389.1	10.54 y	276.4	0.0729
			302.9	0.186
			356	0.623
			383.9	0.0884
^{137}Cs	416.4	30.14 y	661.615	0.851
^{54}Mn	402.9	312.5 d	834.84	1
^{60}Co	384.7	5.27 y	1173.2	0.999
			1332.508	1
^{22}Na	387.0	2.6 y	1274.4	0.999

Πίνακας 3-2: Σημειακή πηγή βαθμονόμησης ^{152}Eu που χρησιμοποιήθηκε για τη βαθμονόμηση και τη μελέτη της απόδοσης του ανιχνευτή γερμανίου

Ισότοπο	Ενεργότητα κατά την 1η Ιουλίου 1983 (kBq)	Χρόνος ημιζωής, $t_{1/2}$ (y)	Ενέργεια ακτίνων γ (keV)	f_{γ} (gammas/decay)
^{152}Eu	398.1	12.7	121.8	0.2924
			244.67	0.0751
			344.3	0.2660
			367.8	0.0086
			411.09	0.0223
			444	0.0312
			778.9	0.1300
			867.39	0.0421
			964	0.1460
			1085.8	0.0952
			1112.07	0.1360
			1212.89	0.0140
1408.08	0.2080			

3.1.4 Κώδικας MCNP

Οι υπολογισμοί έγιναν σε προσωπικό υπολογιστή με τη χρήση του Monte Carlo κώδικα μεταφοράς νετρονίων και φωτονίων MCNP (εκδόσεις 4C και 4C2) σε συνδυασμό με το πακέτο διατομών DLC-0200/02 που περιέχει δεδομένα διατομών από την ENDF-B/VI βιβλιοθήκη. Οι κώδικες και η βιβλιοθήκη διατομών προέρχονται από την τράπεζα δεδομένων NEA Data Bank (Γαλλία).



Σχήμα 3-5: Δείγμα χαλκού για την πειραματική επαλήθευση της κατανομής της ροής θερμικών νετρονίων στη θέση ακτινοβόλησης.

3.2 ΜΕΘΟΔΟΣ

Για να επιτευχθεί ο ποσοτικός προσδιορισμός των στοιχειακών συγκεντρώσεων σε δείγματα μεγάλου όγκου με τη μέθοδο της EANE αναπτύχθηκαν ειδικές μέθοδοι διόρθωσης για τα φαινόμενα της εξασθένησης των νετρονίων και ακτίνων γ που υπεισέρχονται στη διαδικασία της ανάλυσης.

3.2.1 Διαταραχή του Πεδίου Θερμικών Νετρονίων

3.2.1.1 Εισαγωγή

Βασική προϋπόθεση για την εφαρμογή της EANE σε δείγματα μεγάλου όγκου είναι η γνώση της χωρικής κατανομής της ροής των νετρονίων στο δείγμα κατά την ακτινοβόλησή του. Η παρουσία ενός μεγάλου δείγματος στη θέση ακτινοβόλησης εισάγει φαινόμενα αυτό-απορρόφησης και διαταραχής του πεδίου νετρονίων όπως ήδη έχει συζητηθεί στην παράγραφο 0.

Ο πειραματικός προσδιορισμός της κατανομής της ροής των νετρονίων μέσα το δείγμα, με τοποθέτηση ανιχνευτών ελασμάτων, θέτει περιορισμούς στη γενική εφαρμογή της τεχνικής γιατί προϋποθέτει καταστροφή ή επέμβαση στο δείγμα.

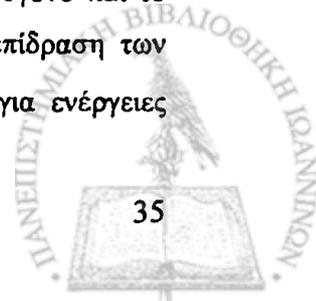
Τα χαρακτηριστικά μεγέθη για τη διαταραχή του πεδίου νετρονίων και την αυτό-απορρόφηση των νετρονίων στο δείγμα μεγάλου όγκου είναι η μακροσκοπική ενεργός διατομή απορρόφησης Σ_a και η σταθερά διάχυσης D του υλικού του δείγματος εφόσον τα φαινόμενα επιβράδυνσης και «θερμοποίησης» των νετρονίων στο υλικό του δείγματος είναι αμελητέα εξαιτίας του μικρού ποσοστού επιθερμικών νετρονίων στη θέση ακτινοβολήσης (0.3%). Όταν τα κύρια συστατικά του δείγματος είναι γνωστά οι σταθερές Σ_a και D είναι επίσης γνωστές από τη βιβλιογραφία [Fleming 1982]. Ωστόσο στη γενική περίπτωση η σύσταση του δείγματος δεν είναι γνωστή.

Για το σκοπό αυτό, αναπτύχθηκε μια ημι-εμπειρική μέθοδος διόρθωσης για την εξασθένηση του πεδίου θερμικών νετρονίων στο δείγμα. Η μέθοδος βασίζεται σε μετρήσεις της ροής θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος και σε σημείο αναφοράς στο γραφίτη κατά την ακτινοβολήση, και την εκτίμηση της αυτό-απορρόφησης των θερμικών νετρονίων σε κυλινδρικά δείγματα διαφόρων μεγεθών και σύστασης μέσω του κώδικα MCNP. Οι συντελεστές διόρθωσης προσδιορίζονται τελικά από καμπύλες βαθμονόμησης που εκτιμώνται για κάθε μέγεθος δείγματος.

3.2.1.2 Ανάπτυξη μοντέλου θερμικής στήλης με τον κώδικα MCNP

Η μελέτη της διαταραχής του πεδίου νετρονίων από την παρουσία του δείγματος στη θέση ακτινοβολήσης, έγινε με τη χρήση του κώδικα MCNP-4C. Το μοντέλο της θερμικής στήλης που αναπτύχθηκε, περιλαμβάνει την καρδιά του αντιδραστήρα, τη στήλη του γραφίτη, το νερό της δεξαμενής του αντιδραστήρα και τον τοίχο θωράκισης.

Η σύγκρουση ενός νετρονίου με ένα άτομο επηρεάζεται από τη θερμική κίνηση του ατόμου αλλά και από την παρουσία γειτονικών ατόμων. Για να ληφθεί υπόψη η θερμική κίνηση, για τα υλικά που συμπεριελήφθησαν στη μελέτη, χρησιμοποιήθηκε η μέθοδος του ελεύθερου αερίου (free gas approximation method) του MCNP. Η μέθοδος της θερμικής συμπεριφοράς του ελεύθερου αερίου (free gas thermal treatment) του κώδικα θεωρεί ότι το μέσο συμπεριφέρεται σαν ελεύθερο αέριο και ότι, στην περιοχή ατομικών βαρών και ενεργειών νετρονίων για την οποία τα θερμικά φαινόμενα είναι σημαντικά, η διατομή ελαστικής σκέδασης είναι ανεξάρτητη της ενέργειας του νετρονίου και οι διατομές των αντιδράσεων είναι ανεξάρτητες της θερμοκρασίας. Επιπλέον, για το υδρογόνο και το γραφίτη χρησιμοποιήθηκε το μοντέλο σκέδασης $S(a,b)$ που λαμβάνει υπόψη την επίδραση των χημικών (μοριακών) δεσμών και της κρυσταλλική δομής (σημαντικός παράγοντας για ενέργειες



νετρονίων χαμηλότερες των 4 eV στους 300 °K). Στην παρούσα μελέτη χρησιμοποιήθηκαν θερμικές διατομές S(a,b) για τα υλικά ελαφρύ νερό, πολυαιθυλένιο, γραφίτη, και βενζίνη [Korol και Houston 1978].

Η ανάπτυξη του μοντέλου της στήλης του γραφίτη πραγματοποιήθηκε σε τρία στάδια. Αρχικά χρησιμοποιήθηκε η τρισδιάστατη λεπτομερής γεωμετρία της καρδιάς και της θερμικής στήλης του αντιδραστήρα (Σχήμα 3-2) για τον προσδιορισμό της χωρικής κατανομής των θερμικών νετρονίων στη θερμική στήλη. Ωστόσο, με γνώμονα τον περιορισμό του υπολογιστικού χρόνου, ο οποίος επιβαρύνεται από την πολυπλοκότητα της γεωμετρίας, αποφασίστηκε να εξεταστεί ένα απλοποιημένο γεωμετρικό μοντέλο. Οι υπολογισμοί επαναλήφθηκαν για διάταξη που περιελάμβανε ομογενή καρδιά του αντιδραστήρα και φάσμα σχάσης που περιγράφεται από την σχέση του Maxwell $E^{1/2} \exp(-E/1.2895)$ (όπου E σε MeV) ενώ τα στοιχεία βηρυλλίου διατηρήθηκαν στη θέση τους.

Επιπλέον μείωση του υπολογιστικού χρόνου επετεύχθη με χρήση της δυνατότητας του κώδικα για Εγγραφή Πηγής σε Επιφάνεια (Surface Source Write – SSW). Η πηγή τοποθετήθηκε στη μετωπική επιφάνεια της θερμικής στήλης (επιφάνεια 1 στο Σχήμα 3-2), καταγράφοντας τις θέσεις και τις ταχύτητες των νετρονίων που διασχίζουν την επιφάνεια κατά την είσοδό τους στη στήλη του γραφίτη. Ο αρχικός αριθμός των ιστοριών που χρησιμοποιήθηκαν για τη δημιουργία του αρχείου της επιφανειακής πηγής ήταν 1×10^9 για τις οποίες καταγράφηκαν 1.6×10^6 γεγονότα (tracks) στην επιφανειακή πηγή. Αυτό το αρχείο χρησιμοποιήθηκε στη συνέχεια για τους επακόλουθους υπολογισμούς προσομοίωσης με τον κώδικα.

Η ροή θερμικών νετρονίων προέκυψε με την τοποθέτηση μετρητών μήκους διαδρομής (track length estimate tallies) F4 που παρέχουν τη μέση ροή νετρονίων σε ένα στοιχείο όγκου (cell) σε μονάδες cm^{-2} ανά αρχικό νετρόνιο πηγής. Τα σχετικά σφάλματα των υπολογισμών περιορίστηκαν κάτω από την τιμή του 10 % ενώ όλα τα αποτελέσματα των προβλέψεων κρίθηκαν αποδεκτά από όλα τα στατιστικά τεστ στα οποία υπεβλήθησαν.

3.2.1.3 Επαλήθευση του μοντέλου θερμικής στήλης

Η επαλήθευση του μοντέλου της θερμικής στήλης έγινε συγκρίνοντας τις κατανομές της ροής θερμικών νετρονίων στη θέση ακτινοβολήσης με και χωρίς την παρουσία δείγματος που προέκυψαν από υπολογισμούς με τον κώδικα MCNP, από πειραματικές μετρήσεις με ανιχνευτές ελασμάτων χρυσού καθώς και από την επίλυση της εξίσωσης διάχυσης.



3.2.1.3.1 Υπολογισμοί ροής θερμικών νετρονίων

Η ροή θερμικών νετρονίων υπολογίστηκε και για τις τρεις διαστάσεις της στήλης του γραφίτη. Επίσης εξετάστηκε η κατανομή της ροής θερμικών νετρονίων κατά την παρουσία δείγματος στη θέση ακτινοβολήσης. Για το λόγο αυτό εισήχθησαν στο μοντέλο τρία παραλληλεπίπεδα δείγματα χαλκού, σιδήρου και πλεξιγκλάς όμοια με αυτά που χρησιμοποιήθηκαν για την πειραματική εκτίμηση της ροής των θερμικών νετρονίων.

3.2.1.3.2 Μετρήσεις ροής θερμικών νετρονίων

Για την πειραματική επαλήθευση των υπολογισμών πραγματοποιήθηκαν πειραματικές μετρήσεις ροής νετρονίων με τη βοήθεια ανιχνευτών ελασμάτων χρυσού. Οι μετρήσεις έγιναν σε ένα σετ από παραλληλεπίπεδα δοκίμια (παράγραφος 0) γνωστών υλικών καθαρότητας $> 99.99\%$. Μετρήσεις έγιναν σε δείγμα από γραφίτη για τον προσδιορισμό της αδιατάρακτης ροής νετρονίων στη θερμική στήλη και σε δείγματα χαλκού σιδήρου και πλεξιγκλάς. Τα ελάσματα χρυσού είχαν μέση μάζα 30 ± 0.5 mg και μέση διάμετρο 1.13 cm. Ο χρυσός διαθέτει μικροσκοπική ενεργό διατομή θερμικών νετρονίων σ_0 ίση με 98.8 barn ενώ το ραδιενεργό προϊόν της ακτινοβόλησής του είναι ^{198}Au με χρόνο ημιζωής 2.7 d, ο οποίος αποδιεγείρεται εκπέμποντας ακτίνες γ ενέργειας 411 keV με πιθανότητα 0.955 ακτίνες γ ανά διάσπαση [Reus και Westmeier 1983]. Οι μετρήσεις ενεργοποίησης των ελασμάτων πραγματοποιήθηκαν μέσω της εκτίμησης της φωτοκορυφής του φάσματος των 411 keV του ^{198}Au με ημιαγωγό ανιχνευτή γερμανίου υψηλής καθαρότητας σχετικής απόδοσης 20%. Η επίδραση του συντονισμού των 4.9 eV του χρυσού στις μετρήσεις της ροής θερμικών νετρονίων υπολογίστηκε με τη μέθοδο διαφοράς του καδμίου (cadmium difference method) χρησιμοποιώντας κάλυμμα καδμίου πάχους 0.1 cm για την απορρόφηση των θερμικών νετρονίων. Οι ακτινοβολήσεις των ελασμάτων έγιναν με διαδοχικό τρόπο για τη αποφυγή φαινομένων αυτό-απορρόφησης από το υλικό των ελασμάτων.

3.2.1.3.3 Λύση της εξίσωσης διάχυσης

Η κατανομή της ροής θερμικών νετρονίων χωρίς την παρουσία δείγματος στη θέση ακτινοβολήσης υπολογίστηκε και με τη λύση της εξίσωσης διάχυσης (σχέση 2.19) θεωρώντας επίπεδη πηγή θερμικών νετρονίων στη μετωπική επιφάνεια της θερμικής στήλης. Η τιμές του μήκους και της σταθεράς διάχυσης για το γραφίτη ελήφθησαν από τη βιβλιογραφία 54 cm και 0.86 cm αντίστοιχα [Glasstone και Edlund 1952]. Σημειώνεται ότι οι διαστάσεις b και c της στήλης που εμπεριέχονται στη σχέση 2.19 είναι οι πραγματικές διαστάσεις της στήλης αφού προστεθεί σε αυτές το διπλάσιο του μήκους



προέκτασης (extrapolation distance). Το μήκος προέκτασης για το γραφίτη είναι $d = 2 \times 0.86 = 1.72 \text{ cm}$. Έτσι $b = (132.1 + 2d) \text{ cm}$ και $c = (130.15 + 2d) \text{ cm}$.

3.2.1.4 Μέθοδος διόρθωσης

Η διερεύνηση του φαινομένου της διαταραχής του πεδίου θερμικών νετρονίων σε σχέση με το υλικό και τις διαστάσεις του δείγματος έγινε μέσω υπολογισμών με τον κώδικα MCNP που είχαν σαν αποτέλεσμα την εκτίμηση των συντελεστών διόρθωσης αυτό-απορρόφησης και διαταραχής θερμικών νετρονίων για κυλινδρικά δείγματα γνωστών υλικών με νετρονικά χαρακτηριστικά που το εύρος τους καλύπτει την περιοχή ενδιαφέροντος της EANE δειγμάτων μεγάλου όγκου. Τα υδρογονούχα και μη υδρογονούχα υλικά που μελετήθηκαν μαζί με τις μακροσκοπικές ενεργές διατομές απορρόφησης (Σ_a), συνολική (Σ_t), το λόγο διατομών σκέδασης προς τη συνολική (Σ_s/Σ_t) και το μήκος διάχυσης (L) δίνονται στους Πίνακες 3-3 και 3-4 αντίστοιχα. Τα μίγματα Α και Β που παρατίθενται αποτελούν ομογενή μίγματα γραφίτη με χαλκό και γραφίτη με νερό αντίστοιχα και συνοδεύονται από το κατ' όγκο ποσοστό του γραφίτη.

Μελετήθηκαν συνολικά 130 ομογενή κυλινδρικά δείγματα διαφόρων υλικών ακτίνας και ύψους μεταξύ 3 cm ως 7.5 cm και 10 cm ως 30 cm αντίστοιχα και όγκου μεταξύ 283 cm^3 και 5298 cm^3 , από τα οποία τα 35 περιείχαν υδρογόνο σε σημαντικό ποσοστό. Οι μακροσκοπικές ενεργές διατομές απορρόφησης των δειγμάτων, Σ_a , καλύπτουν το εύρος μεταξύ 0.002 cm^{-1} και 24 cm^{-1} ενώ οι λόγοι διατομών σκέδασης προς τις αντίστοιχες συνολικές διατομές, Σ_s/Σ_t , κυμάνθηκαν μεταξύ 0.01 και 0.98.

3.2.1.4.1 Διόρθωση για δείγματα γνωστής σύστασης

Οι υπολογισμοί της κατανομής της ροής θερμικών νετρονίων στα δείγματα χρησιμοποιήθηκαν ως βάση δεδομένων για την εξαγωγή καμπύλης βαθμονόμησης του συντελεστή f_n σε συνάρτηση με τις διαστάσεις και το υλικό του δείγματος. Η καμπύλη βαθμονόμησης προέκυψε από τη συσχέτιση του συντελεστή αυτό-απορρόφησης f_n , με μια αδιάστατη μεταβλητή x_0 η οποία εμπεριέχει τις διαστάσεις του κυλινδρικού δείγματος r και h καθώς και τα νετρονικά χαρακτηριστικά του υλικού υπό τη μορφή του μήκους διάχυσης L . Η μεταβλητή x_0 ορίζεται ως $r \cdot h / [(r + h) \cdot L]$. Η καμπύλη βαθμονόμησης που προέκυψε συγκρίθηκε με τα αποτελέσματα της επίλυσης της εξίσωσης διάχυσης (σχέσεις 2.27, 2.28) θέτοντας όπου a και r την ποσότητα $r \cdot h / (r + h)$ και χρησιμοποιώντας την προσεγγιστική σχέση 2.29 για πεπερασμένο κύλινδρο.



Πίνακας 3-3: Μη υδρογονούχα υλικά που χρησιμοποιήθηκαν στους υπολογισμούς και οι αντίστοιχες διατομές τους [Fleming 1982]

Υλικό	Σ_a (cm^{-1})	Σ_t (cm^{-1})	Σ_s/Σ_t (cm^{-1})	L (cm)
Cl	0.002	0.003	0.267	236.3
SiO ₂	0.00373	0.23	0.983	19.82
Pb	0.006	0.369	0.984	12.29
Ca	0.01	0.08	0.875	20.56
Al	0.015	0.099	0.848	15.14
S	0.02	0.063	0.683	16.38
K	0.028	0.048	0.417	15.81
Fe-C	0.220	1.151	0.811	1.15
Fe	0.222	1.15	0.811	1.15
Cr	0.255	0.501	0.493	1.62
Cu	0.321	0.99	0.676	1.03
Ti	0.328	0.555	0.407	1.36
V	0.352	0.704	0.500	1.16
C ₂ Cl ₄	0.784	1.217	0.357	0.59
Sc	0.804	1.61	0.499	0.51
Mn	1.04	1.22	0.148	0.51
Li	3.29	3.35	0.019	0.17
Co	3.46	4.1	0.155	0.15
Ag	3.69	4.04	0.087	0.149
Au	5.79	6.34	0.087	0.095
Rh	10.9	11.3	0.032	0.052
B ₂ O ₃	23.79	24.08	0.012	0.024
Μίγμα A - 0.01 ^a	0.323	0.931	0.653	1.14
Μίγμα A - 0.04 ^a	0.313	0.914	0.657	1.25
Μίγμα A - 0.09 ^a	0.297	0.887	0.665	1.38
Μίγμα A - 0.16 ^a	0.274	0.848	0.677	1.55
Μίγμα A - 0.25 ^a	0.245	0.799	0.694	1.77
Μίγμα A - 0.36 ^a	0.209	0.738	0.717	2.07
Μίγμα A - 0.49 ^a	0.167	0.666	0.750	2.51
Μίγμα A - 0.64 ^a	0.118	0.584	0.799	3.25
Μίγμα A - 0.81 ^a	0.062	0.490	0.874	4.88

^a Μίγμα γραφίτη με χαλκό – κατ' όγκο ποσοστό γραφίτη

Πίνακας 3-4: Υδρογονούχα υλικά που χρησιμοποιήθηκαν στους υπολογισμούς και οι αντίστοιχες διατομές τους [Fleming 1982]

Υλικό	Σ_a (cm^{-1})	Σ_t (cm^{-1})	Σ_s/Σ_t (cm^{-1})	L (cm)
νερό	0.022	3.45	1.000	2.71
πολυαιθυλένιο	0.0269	1.869	0.986	2.64
PVC	0.428	1.516	0.718	0.72
γύψος	0.0125	0.261	0.950	10.13
$\text{C}_2\text{H}_2\text{Cl}_2$	0.708	1.578	0.551	0.55
πλεξιγκλάς	0.0191	1.43	0.987	3.50
Celotex	0.0176	1.345	0.987	3.76
παραφίνη	0.0275	1.904	0.985	2.53
βενζίνη	0.0136	1.037	0.987	4.88
Μίγμα B - 0.01 ^β	0.022	3.438	0.994	2.36
Μίγμα B - 0.04 ^β	0.021	3.345	0.994	2.63
Μίγμα B - 0.09 ^β	0.020	3.191	0.994	2.98
Μίγμα B - 0.16 ^β	0.019	2.975	0.994	3.43
Μίγμα B - 0.25 ^β	0.017	2.698	0.994	4.04
Μίγμα B - 0.36 ^β	0.014	2.359	0.994	4.91
Μίγμα B - 0.49 ^β	0.011	1.958	0.994	6.27
Μίγμα B - 0.64 ^β	0.008	1.496	0.995	8.69
Μίγμα B - 0.81 ^β	0.004	0.972	0.995	14.29

^β Μίγμα γραφίτη με νερό – κατ' όγκο ποσοστό γραφίτη

Η μέθοδος διόρθωσης για την αυτο-απορρόφηση νετρονίων από το υλικό του δείγματος κατά την ακτινοβολήση, για δείγματα γνωστής σύστασης, βασίζεται στον προσδιορισμό του συντελεστή αυτο-απορρόφησης f_n από τις διαστάσεις του δείγματος και το μήκος διάχυσης του γνωστού υλικού. Στη συνέχεια, η μέση ροή θερμικών νετρονίων μέσα στον όγκο ενός δείγματος κατά την ακτινοβολήση του, μπορεί να προσδιοριστεί από τον πειραματικό προσδιορισμό της μέσης ροής θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος με τη χρήση ελασμάτων χρυσού (βλ. παρ. 3.2.1.4.3).

Σημειώνεται ότι το μοντέλο της θερμικής στήλης δύναται να χρησιμοποιηθεί απευθείας για την εκτίμηση του συντελεστή f_n μετά την εισαγωγή σε αυτό του γνωστού υλικού του υπό ανάλυση δείγματος.



3.2.1.4.2 Διόρθωση για δείγματα άγνωστης σύστασης

Για τα δείγματα γνωστής σύστασης όλες οι παράμετροι, όπως η γεωμετρία και τα νετρονικά χαρακτηριστικά του δείγματος, είναι γνωστές με συνέπεια η διόρθωση της αυτο-απορρόφησης θερμικών νετρονίων να γίνεται σύμφωνα με όσα περιγράφονται στην παράγραφο 3.2.1.4.1. Σε δείγματα όμως άγνωστης σύστασης, για τα οποία το μήκος διάχυσης του υλικού δεν είναι γνωστό, η μέθοδος δεν μπορεί να εφαρμοστεί άμεσα.

Για τα δείγματα άγνωστης σύστασης, η μέθοδος διόρθωσης διαφοροποιείται ώστε από τις πειραματικά προσδιοριζόμενες τιμές της μέσης ροής θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος και της ροής αναφοράς στη θέση ακτινοβόλησης πριν την εισαγωγή του δείγματος, να προκύπτει ο προσδιορισμός του συντελεστή διαταραχής θερμικών νετρονίων h_n . Στη συνέχεια, κατάλληλες καμπύλες βαθμονόμησης που συσχετίζουν το συντελεστή h_n με την ενεργό διατομή απορρόφησης θερμικών νετρονίων Σ_a , για κάθε μέγεθος δείγματος, χρησιμοποιούνται για την εκτίμηση της Σ_a . Ο τελικός συντελεστής διόρθωσης της αυτό-απορρόφησης νετρονίων f_n , και κατά συνέπεια η μέση ροή μέσα στον όγκο του υπό ακτινοβόληση δείγματος, προκύπτουν από καμπύλες συσχέτισης του συντελεστή f_n με τη Σ_a οι οποίες διατίθενται για διάφορα μεγέθη δειγμάτων. Οι καμπύλες της διόρθωσης για άγνωστα δείγματα μπορούν να προκύψουν για οποιοδήποτε άλλο μέγεθος δείγματος με τη βοήθεια του μοντέλου.

3.2.1.4.3 Πειραματικός προσδιορισμός της ροής αναφοράς και της μέσης ροής στην επιφάνεια

Για να εφαρμοστούν οι μέθοδοι διόρθωσης που περιγράφονται στις παραγράφους 3.2.1.4.1 και 3.2.1.4.2 είναι απαραίτητο να είναι γνωστές η μέση ροή στην επιφάνεια του δείγματος και η ροή αναφοράς. Και οι δύο παράμετροι προσδιορίζονται πειραματικά με τη χρήση ανιχνευτών ελασμάτων χρυσού.

3.2.2 Φασματοσκοπία γ δειγμάτων μεγάλου όγκου – Διορθώσεις για τη γεωμετρία της πηγής και την εξασθένηση των ακτίνων γ

3.2.2.1 Ανάπτυξη μοντέλου ανιχνευτή με τον κώδικα MCNP

Στη γ φασματοσκοπία δειγμάτων μεγάλου όγκου δύο είναι τα κύρια φαινόμενα που μπορεί να οδηγήσουν σε εσφαλμένη εκτίμηση των φωτοκορυφών του μετρούμενου φάσματος: (α) μεταβολές στους λόγους των εντάσεων μεταξύ των φωτοκορυφών λόγω εξασθένησης στο δείγμα, των εκπεμπόμενων ακτίνων γ και (β) η εξάρτηση της απόκρισης του ανιχνευτή από το σημείο εκπομπής των ακτίνων γ.



Καθώς η χρήση βαθμονομημένων πηγών όγκου είναι πρακτικά αδύνατη εξαιτίας του μεγάλου αριθμού των προτύπων που απαιτούνται για να καλύψουν το εύρος των αναγκών της EANE μεγάλων δειγμάτων, στην παρούσα εργασία η βαθμονόμηση βασίστηκε στην εκτίμηση της απόδοσης του ανιχνευτή για πηγή μεγάλου όγκου μέσω υπολογιστικού μοντέλου με τον κώδικα MCNP. Η μέθοδος αυτή επιτρέπει βαθμονόμηση του ανιχνευτή για το εύρος των ενεργειών, υλικών, διαστάσεων των δειγμάτων που ενδιαφέρουν την EANE και έχει εφαρμοστεί και από άλλους ερευνητές [Bronson και Wang 1996, Rodenas και συν. 2000].

Το μοντέλο του ανιχνευτή αναπτύχθηκε με βάση τα στοιχεία που διατέθηκαν από τον κατασκευαστή (Σχήμα 2-3) για τα υλικά και τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του ανιχνευτή. Ωστόσο επειδή είναι δυνατόν να παρατηρηθούν μικρές διαφορές των ονομαστικών από τις πραγματικές παραμέτρους του ανιχνευτή κυρίως όσον αφορά τον ενεργό όγκο του κρυστάλλου κρίθηκε απαραίτητο το μοντέλο να ελεγχθεί. Σημειώνεται ότι η διαφορά μεταξύ της ονομαστικής από την πραγματική τιμή του ενεργού όγκου του ανιχνευτή οφείλεται κυρίως σε αδυναμία εκτίμησης από τον κατασκευαστή, της νεκρής ζώνης του κρυστάλλου, η οποία αφ' ενός δεν συμβάλλει στην ανίχνευση ακτίνων γ , αφετέρου ενεργεί ως απορροφητής της ακτινοβολίας γ [Rodenas και συν. 2003]. Επιπλέον, η ζώνη μετάπτωσης (transition zone), δηλαδή η ζώνη αυξανόμενης απόδοσης συλλογής φορτίου, του ανιχνευτή, μεταξύ της νεκρής περιοχής και του ενεργού όγκου, συμπεριφέρεται σαν ημι-ενεργή περιοχή με αποτέλεσμα την επιπλέον μείωση του πραγματικού ενεργού όγκου του κρυστάλλου [Clouvas και συν. 1998]. Σύγκριση των τιμών της απόδοσης του ανιχνευτή υπερκαθαρού γερμανίου που προσδιορίστηκαν πειραματικά και εκτιμήθηκαν μέσω υπολογισμών Monte Carlo, χρησιμοποιώντας τις ονομαστικές τιμές των γεωμετρικών χαρακτηριστικών του ανιχνευτή, έδειξαν συστηματική υπερεκτίμηση της απόκρισής του από τον κώδικα. Για το λόγο αυτό μελετήθηκε η επίδραση του πάχους της νεκρής περιοχής του κρυστάλλου στην απόκριση του ανιχνευτή ώστε να επιτευχθεί η καλύτερη σύμπτωση με τις πειραματικές τιμές. Επιπλέον οι υπολογισμοί της απόκρισης του ανιχνευτή έγιναν υπό την έννοια σχετικής απόδοσης.

Οι τιμές της απόδοσης του ανιχνευτή υπολογίστηκαν με τη χρήση του ανιχνευτή ύψους παλμών F8 του κώδικα που εκτιμά την αποτιθέμενη ενέργεια στα καθορισμένα ενεργειακά διαστήματα (energy bins). Τα τυχαία σφάλματα των υπολογισμών διατηρήθηκαν κάτω από 2 % και είναι συγκρίσιμα με την ακρίβεια της βαθμονόμησης των πιστοποιημένων πηγών ακτίνων γ που χρησιμοποιήθηκαν στις πειραματικές μετρήσεις. Τα αποτελέσματα των προβλέψεων κρίθηκαν αποδεκτά από τα στατιστικά τεστ στα οποία υπεβλήθησαν.



3.2.2.2 Επαλήθευση του μοντέλου ανιχνευτή

Η επαλήθευση του μοντέλου του ανιχνευτή έγινε με πειραματικές μετρήσεις της απόδοσης στον τρισδιάστατο χώρο γύρω από τον ανιχνευτή για ενέργειες ακτίνων γ της περιοχής ενδιαφέροντος της ΕΑΝΕ δειγμάτων μεγάλου όγκου. Χρησιμοποιήθηκαν σημειακές πηγές ^{60}Co και ^{137}Cs . Ελήφθησαν μετρήσεις απόδοσης για ενέργειες ακτίνων γ 1332, 1173 και 662 keV και για θέσεις (x, y) σε διάφορα επίπεδα παράλληλα προς την επιφάνεια του ανιχνευτή, τα οποία βρίσκονταν σε ύψος z ως προς την αρχή των αξόνων. Ως αρχή των αξόνων ορίζεται το σημείο τομής του άξονα συμμετρίας του κρυστάλλου με την επιφάνεια του.

3.2.2.3 Μέθοδος διόρθωσης

Η απόδοση του ανιχνευτή γερμανίου για πηγή όγκου εξαρτάται τόσο από το υλικό όσο και από τη θέση, το σχήμα αλλά και το μέγεθος του δείγματος. Μελετήθηκε η απόδοση του ανιχνευτή για κυλινδρικά δείγματα με ομογενή κατανομή ενεργότητας και βρέθηκε ο συντελεστής διόρθωσης f_γ , ο οποίος εκφράζει το λόγο της απόδοσης του ανιχνευτή για πηγή όγκου προς την απόδοση για σημειακή πηγή στον αέρα και τοποθετημένη στο γεωμετρικό κέντρο του μεγάλου δείγματος. Τα υλικά που μελετήθηκαν, οι πυκνότητές τους και οι μαζικοί συντελεστές εξασθένησης ακτίνων γ αντιπροσωπευτικών ενεργειών (0.30, 0.66 και 1.33 MeV) παρουσιάζονται στον Πίνακα 3-5. Οι μαζικοί συντελεστές εξασθένησης ακτίνων γ ελήφθησαν από τη βιβλιογραφία [Hubbel και Seltzer 1995]. Πραγματοποιήθηκαν υπολογισμοί για δείγματα ακτίνας από 4.3 cm έως 7.5 cm και ύψους από 9 cm έως 30 cm. Η απόσταση του κέντρου της πηγής από την επιφάνεια του ανιχνευτή ήταν 25 cm.

Στην περίπτωση υλικού γνωστής σύστασης, το μοντέλο του ανιχνευτή μπορεί να χρησιμοποιηθεί απευθείας για τον υπολογισμό του συντελεστή f_γ . Στην περίπτωση που δεν υπάρχουν στοιχεία για τη σύσταση του υπό ανάλυση δείγματος, απαιτείται εναλλακτική μέθοδος διόρθωσης. Για το λόγο αυτό, τα αποτελέσματα των υπολογισμών για τους συντελεστές διόρθωσης της απόδοσης του ανιχνευτή για πηγές όγκου, f_γ , χρησιμοποιήθηκαν ως μια βάση δεδομένων για την εξαγωγή καμπύλης βαθμονόμησης του συντελεστή f_γ σε σχέση με τις διαστάσεις και το υλικό του δείγματος. Η καμπύλη βαθμονόμησης προέκυψε από τη συσχέτιση του συντελεστή διόρθωσης f_γ , με μια αδιάστατη μεταβλητή $\mu \cdot r \cdot h / [(r + h)]$ η οποία εμπεριέχει τις διαστάσεις του κυλινδρικού δείγματος r και h καθώς και τον γραμμικό συντελεστή εξασθένησης $\mu(E_\gamma)$ του υλικού.

Πίνακας 3-5: Κατάλογος υλικών που χρησιμοποιήθηκαν στους υπολογισμούς και των αντίστοιχων πυκνοτήτων και μαζικών συντελεστών εξασθένησης ακτίνων γ

Υλικό	Πυκνότητα ρ [g/cm ³]	μ/ρ [$\times 10^{-1}$ cm ² /g]		
		1332 keV	662 keV	303 keV
παραφίνη	0.93	0.6312	0.8847	1.217
νερό	1.00	0.6122	0.8572	1.182
πλεξιγκλάς	1.19	0.5940	0.8330	1.150
cellulose	1.42	0.5847	0.8190	1.129
ασβέστιο	1.55	0.5527	0.7789	1.111
SiO ₂	2.32	0.5510	0.7729	1.072
γύψος	2.32	0.5643	0.7919	1.105
αλουμίνιο	2.70	0.5319	0.7468	1.038
βάριο	3.50	0.4880	0.7766	1.861
γερμάνιο	5.32	0.4938	0.7084	1.123
χρώμιο	7.18	0.5126	0.7249	1.061
σίδηρος	7.92	0.5180	0.7366	1.093
χαλκός	8.94	0.5093	0.7262	1.112
μόλυβδος	11.35	0.5616	1.101	3.949

Η μέθοδος διόρθωσης για την αυτο-απορρόφηση ακτίνων γ από το υλικό του δείγματος και την απόδοση του ανιχνευτή για πηγή μεγάλου όγκου κατά την ανίχνευση των ακτίνων γ, βασίζεται στον προσδιορισμό του συντελεστή f_r από τις διαστάσεις του δείγματος και τον γραμμικό συντελεστή εξασθένησης του υλικού. Για υλικό άγνωστης σύστασης ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης του υλικού δεν είναι γνωστός εκ των προτέρων μπορεί ωστόσο να προσδιοριστεί πειραματικά, πριν από την ακτινοβολία του δείγματος, σύμφωνα με τη μέθοδο που περιγράφεται στην παράγραφο 3.2.2.3.1. Στη συνέχεια, η απόδοση του ανιχνευτή για το συγκεκριμένο δείγμα, προσδιορίζεται εφόσον είναι γνωστή η σχέση της απόδοσης του ανιχνευτή για σημειακή πηγή με την ενέργεια των ακτίνων γ για την αντίστοιχη απόσταση πηγής-ανιχνευτή. Η σχέση αυτή προσδιορίζεται πειραματικά με τη βοήθεια σημειακών πηγών βαθμονόμησης.



3.2.2.3.1 Πειραματικός προσδιορισμός του γραμμικού συντελεστή εξασθένησης

Ο προσδιορισμός του γραμμικού συντελεστή εξασθένησης ακτίνων γ , $\mu(E_\gamma)$, από το υλικό του δείγματος γίνεται με πειραματική μέτρηση της διέλευσης ακτίνων γ χρησιμοποιώντας κατευθυνόμενη δέσμη πηγής φωτονίων από πηγή ^{152}Eu κατά τη διεύθυνση του κεντρικού άξονα του ανιχνευτή και κατευθυντήρα μολύβδου μπροστά από την επιφάνεια του ανιχνευτή. Λαμβάνονται δύο φάσματα με και χωρίς την παρεμβολή του δείγματος μεταξύ της πηγής και του ανιχνευτή και ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης $\mu(E_\gamma)$ προσδιορίζεται σε συνάρτηση της ενέργειας των φωτονίων E_γ από τη σχέση 2.34.

3.2.3 Συνολική διόρθωση για την αυτο-απορρόφηση νετρονίων, τη γεωμετρία μέτρησης και την εξασθένηση των ακτίνων γ

Για τη συνολική διόρθωση της αυτο-απορρόφησης νετρονίων κατά την ακτινοβολήση του δείγματος καθώς και της γεωμετρίας μέτρησης και της εξασθένησης των ακτίνων γ κατά την ανίχνευση των ακτίνων γ είναι απαραίτητο να συνδυαστεί η εφαρμογή και των δύο συντελεστών διόρθωσης f_n και f_γ . Για το λόγο αυτό ορίζεται ο συνολικός συντελεστής διόρθωσης f ως το γινόμενο των συντελεστών f_n και f_γ .

Ο διαχωρισμός των δύο συντελεστών εξετάστηκε, υπό την έννοια της εισαγωγής σφάλματος στο τελικό αποτέλεσμα, χρησιμοποιώντας λογισμικό που αναπτύχθηκε στο IRI TU-Delft [Blaauw 2003], που παρέχει το συνολικό συντελεστή διόρθωσης χωρίς να διαχωρίζει τα δύο φαινόμενα. Ο συνολικός συντελεστής διόρθωσης υπολογίζεται λαμβάνοντας υπόψη την απόδοση του ανιχνευτή, την εξασθένηση των ακτίνων γ και τη σχετική τιμή της ροής θερμικών νετρονίων για κάθε σημείο και ολοκληρώνοντας σε όλο τον όγκο του δείγματος. Το λογισμικό μπορεί να χρησιμοποιηθεί για στερεό και για υγρό δείγμα. Στην περίπτωση υγρού δείγματος οι παράγοντες της ολοκλήρωσης για την εξαγωγή του συνολικού συντελεστή διόρθωσης είναι δυνατόν να διαχωριστούν χωρίς επίπτωση στο αποτέλεσμα. Αυτό το γεγονός προσφέρει τη δυνατότητα ελέγχου της μεθόδου διαχωρισμού των συντελεστών f_n και f_γ εφόσον διατηρώντας το υλικό σταθερό, η σύγκριση των αποτελεσμάτων για τους συνολικούς συντελεστές διόρθωσης μεταξύ των επιλογών στερεάς και υγρής φάσης αποτελεί στην πραγματικότητα και σύγκριση μεταξύ συσχετισμένου και διαχωρισμένου υπολογισμού των συντελεστών διόρθωσης της αυτό-απορρόφησης νετρονίων και της εξασθένησης ακτίνων γ . Οι υπολογισμοί έγιναν για διάφορες τιμές των παραμέτρων του δείγματος, μήκος διάχυσης και διάμετρος δείγματος, για απόσταση πηγής - ανιχνευτή 20 cm.

3.2.4 Ανομοιογενή Δείγματα

Οι μέθοδοι διόρθωσης που περιγράφονται στις προηγούμενες παραγράφους έχουν ως αρχική προϋπόθεση την ομοιογενή, τουλάχιστον σε μακροσκοπική κλίμακα, σύσταση του δείγματος. Το υλικό μπορεί να περιέχει τμήματα διαφορετικής σύστασης αλλά αυτά θεωρούνται ομοιόμορφα κατανεμημένα στην έκταση του δείγματος. Ωστόσο η ύπαρξη ανομοιογενειών μπορεί να οδηγήσει σε σημαντικά σφάλματα ανάλυσης. Κάποιες ανομοιογένειες μπορούν να επηρεάσουν μόνο όσον αφορά τα νετρόνια ή μόνο τα φωτόνια, ενώ κάποιες και τα δύο. Δύο τύποι ανομοιογένειας είναι δυνατόν να παρουσιαστούν: ανομοιογένεια σύστασης (στην κατανομή των βασικών στοιχείων του δείγματος) και ανομοιογένεια ιχνοστοιχείων.

Τα όρια εφαρμογής της τεχνικής, σε δείγματα άγνωστης σύστασης, μελετήθηκαν υπό την έννοια της εκτίμησης σφαλμάτων στα αποτελέσματα για ακραίες ειδικές περιπτώσεις ανομοιογενειών. Ο αριθμός των πιθανών ανομοιογενειών είναι άπειρος. Ωστόσο οι ακραίες περιπτώσεις ανομοιογένειας που μελετήθηκαν επιτρέπουν τη εκτίμηση των ορίων του σφάλματος που είναι δυνατόν να εισαχθεί στον προσδιορισμό της συγκέντρωσης των ιχνοστοιχείων στην περίπτωση που το υπό ανάλυση δείγμα θεωρηθεί ομοιογενές, ενώ στην πραγματικότητα δεν είναι. Οι ανομοιογένειες που μελετήθηκαν ήταν συμμετρικές ως προς τον κύριο άξονα του κυλινδρικού δείγματος λόγω της περιστροφής του κατά τη μέτρηση.

Πίνακας 3-6: Μερικά ραδιολογικά χαρακτηριστικά των υλικών των δειγμάτων που μελετήθηκαν

Υλικό	Πυκνότητα (g/cm ³)	Σ_a (cm ⁻¹)	Σ_s (cm ⁻¹)	$\mu_{\gamma,100}$ (cm ⁻¹)	$\mu_{\gamma,300}$ (cm ⁻¹)	$\mu_{\gamma,700}$ (cm ⁻¹)	$\mu_{\gamma,1500}$ (cm ⁻¹)
χαλκός	8.96	0.326	0.669	4.10	1.00	0.64	0.43
χρυσός	19.3	5.83	0.428	99.5	7.23	1.96	1.00
γραφίτης	1.60	0.00032	0.019	0.242	0.171	0.120	0.083
SiO ₂	2.32	0.0037	0.226	0.391	0.250	0.129	0.120

Η ανομοιογένεια σύστασης σε ένα δείγμα μεγάλου όγκου μπορεί να είναι είτε αξονική είτε ακτινική. Τυπικά παραδείγματα αξονικής και ακτινικής ανομοιογένειας δίνονται στο Σχήμα 3-6. Τα υλικά που μελετήθηκαν ήταν ο γραφίτης, ο χαλκός και το SiO₂. Αυτά τα υλικά διαφέρουν έως και 5 τάξεις μεγέθους ως προς τη μακροσκοπική ενεργό διατομή απορρόφησης θερμικών νετρονίων, 2 τάξεις μεγέθους όσον αφορά τη μακροσκοπική ενεργό διατομή σκέδασης θερμικών νετρονίων και 3



τάξεις μεγέθους ως προς τους συντελεστές εξασθένησης ακτίνων γ στην ενεργειακή περιοχή ενδιαφέροντος (Πίνακας 3-6).

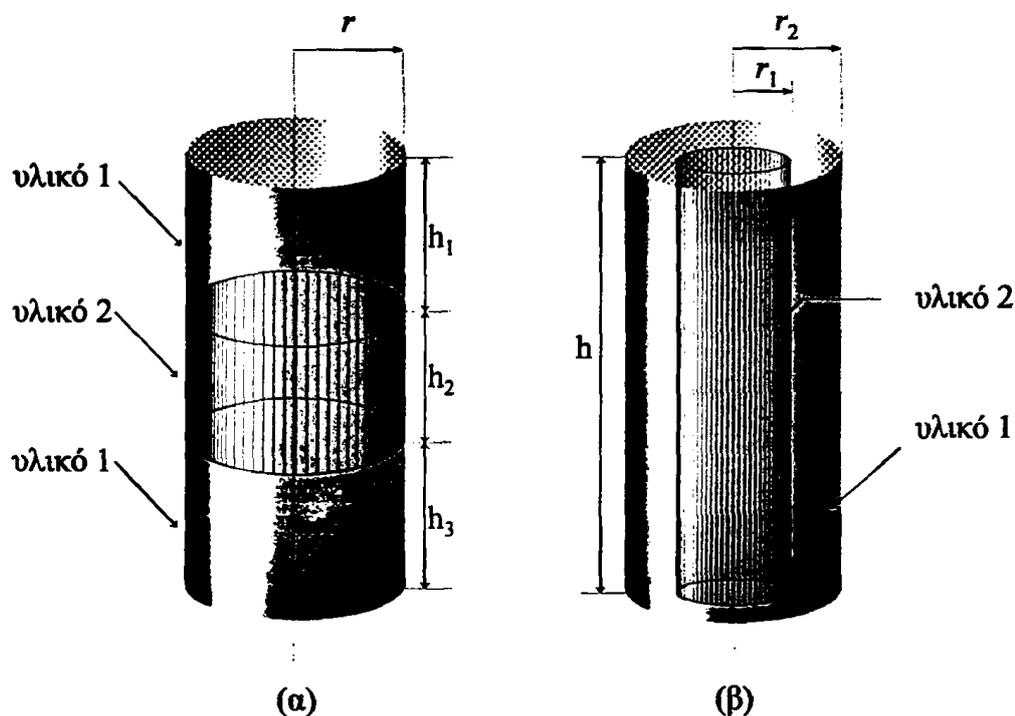
Οι διαστάσεις του κυλινδρικού δείγματος ήταν $r = 5$ cm και $h = 20$ cm. Τα σφάλματα που υπεισέρχονται στη μέθοδο μελετήθηκαν μέσω της εκτίμησης ενός παράγοντα ανομοιογένειας R_f^j . Ο παράγοντας αυτός αντιπροσωπεύει το λόγο του διορθωτικού συντελεστή f_i που προκύπτει από τη μέθοδο για το ανομοιογενές δείγμα αν αγνοηθεί η ύπαρξη της ανομοιογένειας, προς τον πραγματικό συντελεστή διόρθωσης που προκύπτει απευθείας από το αντίστοιχο μοντέλο για το συγκεκριμένο ανομοιογενές δείγμα, $f_{i,a}$. Ο δείκτης i δέχεται τιμές n και γ που αντιστοιχούν στα φαινόμενα εξασθένησης νετρονίων και φωτονίων αντίστοιχα ενώ ο δείκτης j δέχεται τιμές m και t υποδεικνύοντας ανομοιογένειας σύστασης (matrix) και ιχνοστοιχείων (trace elements) αντίστοιχα.

3.2.4.1 Ανομοιογένειες σύστασης κατά την ακτινοβόληση

Μελετήθηκε η επίδραση τόσο των ακτινικών όσο και των αξονικών ανομοιογενειών σύστασης στον συντελεστή διόρθωσης αυτό-απορρόφησης νετρονίων f_n . Εφόσον ο προσδιορισμός του συντελεστή διόρθωσης αυτό-απορρόφησης νετρονίων f_n βασίζεται στη μετρούμενη μέση ροή νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος με ανιχνευτές ελασμάτων που τοποθετούνται σε διάφορα ύψη του κυλινδρικού δείγματος, η ανομοιογένεια κατά μήκος του άξονα αναμένεται να διορθώνεται. Η ακτινική ανομοιογένεια ωστόσο δεν διορθώνεται.

Στους υπολογισμούς χρησιμοποιήθηκαν κατανομές δύο υλικών όπως φαίνονται στο Σχήμα 3-6 ενώ η σύστασή τους φαίνεται στον Πίνακα 3-7. Το ύψος της αξονικής ανομοιογένειας μεταβλήθηκε από $h_2 = 1$ cm έως $h_2 = 18$ cm (Σχήμα 3-6α) ενώ αντίστοιχα η ακτίνα της ακτινικής ανομοιογένειας μεταβλήθηκε από $r_1 = 0.5$ cm έως $r_1 = 4.5$ cm (Σχήμα 3-6β). Οι συνδυασμοί των υλικών 1 και 2 επιλέχθηκαν λόγω της σημαντικής διαφοράς των υλικών τους ως προς τις ιδιότητες απορρόφησης νετρονίων (Πίνακας 3-6).

Η μέση ροή στην επιφάνεια του ανομοιογενούς δείγματος χρησιμοποιείται για τον προσδιορισμό του συντελεστή διόρθωσης αυτό-απορρόφησης νετρονίων f_n από τις αντίστοιχες καμπύλες των Σχημάτων 4-5 και 4-8 για $l = r \cdot h / (r + h) = 4$ cm. Οι διαφορές μεταξύ του f_n και του πραγματικού συντελεστή διόρθωσης αυτό-απορρόφησης νετρονίων $f_{n,a}$, που προκύπτει από την ακριβή προσομοίωση του ανομοιογενούς δείγματος, ευθύνονται για την εισαγωγή σφάλματος στα αποτελέσματα.



Σχήμα 3-6: Παραδείγματα (α) αξονικής και (β) ακτινικής ανομοιογένειας σύστασης σε κυλινδρικά δείγματα.

Πίνακας 3-7: Συνδυασμοί υλικών 1 και 2 για την εξομοίωση αξονικών και ακτινικών ανομοιογενειών σύστασης σε κυλινδρικό δείγμα όπως αναπαρίστανται στο Σχήμα 3-6

α/α	υλικό 1	υλικό 2
1	C	SiO ₂
2	SiO ₂	C
3	C	Cu
4	Cu	C
5	SiO ₂	Cu
6	Cu	SiO ₂

3.2.4.2 Ανομοιογένειες ιχνοστοιχείων κατά την ακτινοβόληση

Για τη μελέτη των ανομοιογενειών ιχνοστοιχείων ως προς την επίδρασή τους στη μέθοδο διόρθωσης της αυτό-απορρόφησης νετρονίων κατά την ακτινοβόληση, θεωρήθηκαν ακραίες κατανομές 12 g χρυσού σε δείγμα γραφίτη ακτίνας 5.0 cm και ύψους 20 cm. Ο χρυσός επιλέχθηκε λόγω της υψηλής του ενεργού διατομής απορρόφησης θερμικών νετρονίων. Οι κατανομές που εξετάστηκαν ήταν: (α) σε όλη την επιφάνεια του κυλινδρικού δείγματος (πάχος 1 mm), (β) στην κυλινδρική επιφάνεια του δείγματος (πάχος 1 mm), (γ) σε μία από τις κυκλικές επιφάνειες του δείγματος (πάχος 1 mm) (δ) σε δίσκο στο κέντρο του δείγματος (πάχος 2 mm), (ε) σφαιρική ακτίνας 1 cm στο κέντρο του δείγματος και (στ) κατά μήκος του άξονα συμμετρίας με τη μορφή σύρματος ακτίνας 3 mm. Τα υπόλοιπα ιχνοστοιχεία του δείγματος μπορεί να κατανέμονται είτε με τον ίδιο τρόπο είτε ομοιογενώς μέσα στον όγκο του δείγματος. Η μέση ροή στην επιφάνεια του ανομοιογενούς δείγματος χρησιμοποιείται για τον προσδιορισμό του συντελεστή διόρθωσης αυτό-απορρόφησης νετρονίων $f_{n,i}$ από τις αντίστοιχες καμπύλες των Σχημάτων 4-5 και 4-8 για $l = r \cdot h / (r + h) = 4 \text{ cm}$. Οι διαφορές μεταξύ του $f_{n,i}$ και του πραγματικού συντελεστή διόρθωσης αυτό-απορρόφησης νετρονίων f_n για το συγκεκριμένο δείγμα ευθύνονται για την εισαγωγή σφάλματος στα αποτελέσματα.

Σημειώνεται ότι όταν το ιχνοστοιχείο ενδιαφέροντος είναι ο χρυσός, ο πραγματικός παράγοντας διόρθωσης f_n ισούται με το λόγο της μέσης ροής στον όγκο όπου εκτείνεται ο χρυσός προς της μέση ροή στη επιφάνεια του δείγματος. Ωστόσο όταν το ιχνοστοιχείο ενδιαφέροντος κατανέμεται ομοιογενώς μέσα στο γραφίτη, ο αντίστοιχος παράγοντας διόρθωσης f_n ισούται με το λόγο της μέσης ροής θερμικών νετρονίων μέσα στον όγκο του δείγματος προς τη μέση ροή στη επιφάνεια του δείγματος.

3.2.4.3 Ανομοιογένειες σύστασης κατά την ανίχνευση ακτίνων γ

Οι ανομοιογένειες σύστασης μπορούν επίσης εκτός των άλλων να είναι αξονικές ή ακτινικές. Οι αξονικές μπορούν να ανιχνευθούν από τις μετρήσεις διέλευσης ακτίνων γ κατά τον προσδιορισμό του συντελεστή εξασθένησης $\mu(E_\gamma)$ αν αυτές πραγματοποιηθούν σε διάφορα ύψη του κυλινδρικού δείγματος. Η εισαγωγή σφάλματος μπορεί να αποφευχθεί προσδιορίζοντας ένα ισοδύναμο γραμμικό συντελεστή εξασθένησης από τις τιμές του $\mu(E_\gamma)$ που προκύπτουν για τα διαφορετικά ύψη. Εναλλακτικά μπορεί να πραγματοποιηθεί μία και μόνο μέτρηση διέλευσης ακτίνων γ κατά τη διάρκεια της οποίας το δείγμα κινείται κατά τον κατακόρυφο άξονα ώστε να προκύψει η μέση τιμή του γραμμικού συντελεστή εξασθένησης για όλες τις τιμές z του δείγματος.



Αξονικές ανομοιογένειες: Οι υπολογισμοί του συντελεστή διόρθωσης της απόδοσης του ανιχνευτή f_γ έγιναν θεωρώντας κυλινδρικό δείγμα ακτίνας $r = 5$ cm, με την αξονική ανομοιογένεια που φαίνεται στο Σχήμα 3-6α με $h_1 = h_2 = h_3 = 6.67$ cm (ποσοστό ανομοιογένειας ~ 33 %) και για τους συνδυασμούς υλικών του Πίνακα 3-8. Η απόσταση δείγματος ανιχνευτή ήταν 25 cm. Θεωρήθηκε ότι στην πράξη ο υπολογισμός του συντελεστή f_γ βασίζεται στο γραμμικό συντελεστή εξασθένησης $\mu(E_\gamma)$, που προσδιορίζεται από τη μέθοδο ολοκλήρωσης σε όλο το ύψος του δείγματος. Στην περίπτωση μίας και μόνο μέτρησης διέλευσης ακτίνων γ με ταυτόχρονη περιστροφή και κατακόρυφη κίνηση του δείγματος, η σύσταση του δείγματος αντιμετωπίζεται ως ομογενές μίγμα των υλικών. Τα υλικά 1 έως 6 του Πίνακα 3-8 χρησιμοποιήθηκαν για τον υπολογισμό του $f_{\gamma,a}$ ενώ τα αντίστοιχα ομογενή μίγματα (υλικά 7 έως 12) χρησιμοποιήθηκαν για τον υπολογισμό των τιμών του f_γ . Τα ιχνοστοιχεία ενδιαφέροντος θεωρούνται ομοιογενώς κατανεμημένα μέσα στον όγκο του υλικού.

Πίνακας 3-8: Αξονικές ανομοιογένειες σύστασης σε κυλινδρικό δείγμα ($r = 5$ cm, $h_1 = h_2 = h_3 = 6.67$ cm) όπως αναπαρίστανται στο Σχήμα 3-6α για διαφορετικά υλικά 1 και 2. Τα υλικά 7 έως 12 αποτελούνται από τα αντίστοιχα ομογενή μίγματα με το ποσοστό του καθένα από τα δύο υλικά να αναγράφεται πριν από το υλικό

α/α	υλικό 1	υλικό 2	α/α	μίγμα
1	C	Cu	7	0.667 C + 0.333 Cu
2	Cu	C	8	0.333 C + 0.667 Cu
3	C	SiO ₂	9	0.667 C + 0.333 SiO ₂
4	SiO ₂	C	10	0.333 C + 0.667 SiO ₂
5	SiO ₂	Cu	11	0.667 SiO ₂ + 0.333 Cu
6	Cu	SiO ₂	12	0.333 SiO ₂ + 0.667 Cu

Ακτινικές ανομοιογένειες: Οι υπολογισμοί του συντελεστή διόρθωσης της απόδοσης του ανιχνευτή f_γ έγιναν θεωρώντας απόσταση δείγματος ανιχνευτή 25 cm και κυλινδρικό δείγμα ακτίνας $r_1 = 5$ cm και ύψους $h = 20$ cm, με την ακτινική ανομοιογένεια που φαίνεται στο Σχήμα 3-6β με $r_2 = 2.89$ cm (ποσοστό ανομοιογένειας ~ 33 %) και για τους συνδυασμούς υλικών του Πίνακα 3-9. Κατά τη μέτρηση διέλευσης ακτίνων γ , οι ακτίνες γ διανύουν μέσα στο ανομοιογενές υλικό απόσταση ίση με τη διάμετρο του δείγματος $2r_1$. Συγκεκριμένα διανύουν απόσταση $2r_2$ μέσα στο υλικό 2 (μ_1) και $2(r_1 - r_2)$ στο υλικό 1 (μ_2). Έτσι οι συντελεστές διόρθωσης $f_{\gamma,i}$ προέκυψαν από την τιμή



Πειραματικές διατάξεις και μέθοδοι για την ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση δειγμάτων μεγάλου όγκου

γραμμικού συντελεστή εξασθένησης που υπολογίστηκε από τη σχέση $\mu(E_\gamma) = \mu_1(E_\gamma) \cdot r_2 / r_1 + \mu_2(E_\gamma) \cdot (1 - r_2 / r_1)$ και όχι από το αντίστοιχο ομογενές μίγμα.

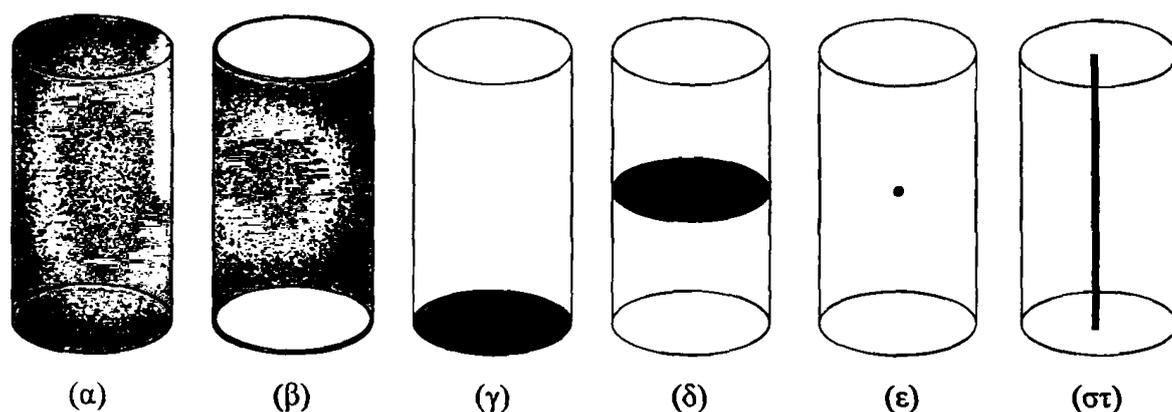
Πίνακας 3-9: Ακτινικές ανομοιογένειες σύστασης σε κυλινδρικό δείγμα ($r_1 = 5$ cm, $r_2 = 0.7r_1 = 3.5$ cm και $h = 20$ cm) όπως αναπαρίστανται στο Σχήμα 3-6β για διαφορετικά υλικά 1 και 2

a/a	υλικό 1	υλικό 2
1	C	Cu
2	Cu	C
3	C	SiO ₂
4	SiO ₂	C
5	SiO ₂	Cu
6	Cu	SiO ₂

3.2.4.4 Ανομοιογένειες ιχνοστοιχείων κατά την ανίχνευση ακτίνων γ

Αντίθετα προς τις ανομοιογένειες σύστασης, οι ανομοιογένειες ιχνοστοιχείων δεν μπορούν να προκύψουν από μετρήσεις διέλευσης ακτίνων γ. Ενδείξεις για αυτού του τύπου ανομοιογένειες αποτελούν αντιφάσεις στην αναλογία των κορυφών του φάσματος, σε σχέση με τη βιβλιογραφία, όταν πρόκειται για ισότοπο που εκπέμπει ακτίνες γ σε τουλάχιστον δύο ενέργειες.

Στην παρούσα εργασία μελετήθηκε η επίδραση των ανομοιογενειών ιχνοστοιχείων στον συντελεστή διόρθωσης της απόδοσης του ανιχνευτή, σε ακραίες συνθήκες. Εξαιτίας της περιστροφής του δείγματος κατά την ανίχνευση των ακτίνων γ, μελετήθηκαν μόνο ανομοιογένειες με ακτινική συμμετρία. Οι περιπτώσεις που εξετάστηκαν (Σχήμα 3-7) είναι: (α) κατανομή της ενεργότητας του υπό ανάλυση ιχνοστοιχείου στην επιφάνεια του κυλινδρικού δείγματος, (β) κατανομή της ενεργότητας του υπό ανάλυση ιχνοστοιχείου στην κυλινδρική επιφάνεια του δείγματος, (γ) κατανομή ενεργότητας στην άνω ή κάτω επιφάνεια (δίσκος) του δείγματος, (δ) κατανομή ενεργότητας σε διατομή (δίσκος) στο κέντρο του δείγματος, (ε) ενεργότητα σε σημείο στο κέντρο του δείγματος, (στ) γραμμική κατανομή ενεργότητας στον κύριο άξονα του δείγματος. Οι υπολογισμοί έγιναν για σειρά δειγμάτων από νερό, γραφίτη, σίδηρο και μόλυβδο με διαστάσεις $r = 3.65$ cm και $h = 3$ cm καθώς και $r = 5$ cm και $h = 20$ cm αντιπροσωπεύοντας έτσι δύο όγκους δειγμάτων 250 ml και 1600 ml αντίστοιχα. Οι υπολογισμοί έγιναν για απόσταση δείγματος - ανιχνευτή 25 cm. Οι ενέργειες των ακτίνων γ που εξετάστηκαν καλύπτουν την ενεργειακή περιοχή ενδιαφέροντος της EANE μεγάλων δειγμάτων από 0.1 MeV to 1.5 MeV.



Σχήμα 3-7: Τυπικές περιπτώσεις ανομοιογένειας ιχνοστοιχείων σε ομογενή ως προς τη σύστασή τους κυλινδρικά δείγματα. Οι εικονιζόμενες περιπτώσεις περιλαμβάνουν: (α) κατανομή της ενεργότητας του υπό ανάλυση ιχνοστοιχείου στην επιφάνεια του κυλινδρικού δείγματος, (β) κατανομή της ενεργότητας του υπό ανάλυση ιχνοστοιχείου στην κυλινδρική επιφάνεια του δείγματος, (γ) κατανομή ενεργότητας στην άνω ή κάτω επιφάνεια (δίσκος) του δείγματος, (δ) κατανομή ενεργότητας σε διατομή (δίσκος) στο κέντρο του δείγματος, (ε) ενεργότητα σε σημείο στο κέντρο του δείγματος, (στ) γραμμική κατανομή ενεργότητας στον κύριο άξονα του δείγματος.

3.2.5 Διαδικασία – Πρωτόκολλο

Η ΕΑΝΕ δειγμάτων μεγάλου όγκου απαιτεί να συμπεριληφθούν στη διαδικασία επιπρόσθετα στάδια σε σχέση με τη συμβατική ΕΑΝΕ. Τα στάδια αυτά περιγράφονται παρακάτω υπό τη μορφή πρωτοκόλλου που ακολουθείται κατά την εφαρμογή της τεχνικής:

I. Διόρθωση του υποβάθρου

Το φυσικό υπόβαθρο του ανιχνευτικού συστήματος υπολογίζεται με μέτρηση του φάσματος της φυσικής ενεργότητας του δείγματος και του χώρου όπου πραγματοποιείται η μέτρηση. Η μέτρηση πραγματοποιείται πριν την ακτινοβολήση του δείγματος. Η φυσική ενεργότητα είναι μετρήσιμη σε σχέση με την τελική ενεργότητα του δείγματος λόγω της υψηλής απόδοσης του ανιχνευτή και της μικρότερης ροής νετρονίων από αυτή της συμβατικής ΕΑΝΕ.

II. Προσδιορισμός του συντελεστή διέλευσης ακτίνων γ

Η μέτρηση του γραμμικού συντελεστή εξασθένησης των ακτίνων γ από το υλικό του δείγματος πραγματοποιείται με ανίχνευση της ακτινοβολίας γ πηγής ^{152}Eu με και χωρίς την παρουσία δείγματος μεταξύ του ανιχνευτή και της πηγής ^{152}Eu . Τα αποτελέσματα της μέτρησης χρησιμοποιούνται στον προσδιορισμό του γραμμικού συντελεστή εξασθένησης $\mu(E_\gamma)$ ως συνάρτηση της ενέργειας ακτίνων γ .

III. Ακτινοβόληση του δείγματος

Η ακτινοβόληση του δείγματος γίνεται στη θερμική στήλη του αντιδραστήρα βάσει των πρωτοκόλλων της EANE για τους συγκεκριμένους τύπους υλικών και ραδιονουκλιδίων που προσδιορίζονται. Το δείγμα φέρει στην επιφάνειά του ελάσματα χρυσού για τον προσδιορισμό της μέσης ροής θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος κατά την ακτινοβόληση.

IV. Μέτρηση του ακτινοβολημένου δείγματος

Η μέτρηση του δείγματος πραγματοποιείται στην ανιχνευτική διάταξη γ φασματοσκοπίας με ταυτόχρονη περιστροφή του δείγματος.

V. Μέτρηση των ανιχνευτών ελασμάτων

Η μέτρηση των ανιχνευτών ελασμάτων γίνεται σε ανεξάρτητη διάταξη γ φασματοσκοπίας που περιλαμβάνει ανιχνευτή υπερκαθαρού γερμανίου (HPGe) σχετικής απόδοσης 20 %.

VI. Επεξεργασία δεδομένων

Κατά την επεξεργασία των μετρήσεων ακολουθείται η εξής διαδικασία:

VI.1. Τα φάσματα του ^{152}Eu της μέτρησης διέλευσης ακτίνων γ διορθώνονται για τη συνεισφορά του υποβάθρου με βάση το φάσμα του μη ακτινοβολημένου δείγματος και του χώρου. Από τις μετρήσεις διέλευσης της ακτινοβολίας γ του ^{152}Eu , με και χωρίς το δείγμα, προσδιορίζονται οι γραμμικοί συντελεστές εξασθένησης για το υλικό του δείγματος.

VI.2. Η μέση ροή θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος, που προκύπτει από τις μετρήσεις των ελασμάτων χρυσού, κανονικοποιημένη ως προς τη ροή αναφοράς χρησιμοποιείται για την εξαγωγή του συντελεστή διόρθωσης της αυτο-απορρόφησης θερμικών νετρονίων f_n .

VI.3. Ο συνολικός συντελεστής διόρθωσης f υπολογίζεται από τις τιμές των συντελεστών f_n και f_r . Ο συνολικός συντελεστής αντιπροσωπεύει τη διαφορά στα αποτελέσματα των μετρήσεων στην περίπτωση που το δείγμα θα ήταν σημειακή πηγή «μηδενικής» μάζας τοποθετημένη στο κέντρο του δείγματος.

VI.4. Το φάσμα του ακτινοβολημένου δείγματος διορθώνεται για τη συνεισφορά του υποβάθρου χρησιμοποιώντας το φάσμα του μη ακτινοβολημένου δείγματος. Στη συνέχεια εφαρμόζεται στο φάσμα ο συνολικός συντελεστής διόρθωσης f . Έτσι οι διορθωμένες περιοχές των φωτοκορυφών μπορούν να ταυτοποιηθούν [Reus και Westmeier 1983] και οι συγκεντρώσεις των στοιχείων να προσδιοριστούν με τη μέθοδο που εφαρμόζεται και στη συμβατική EANE.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 4

ΑΠΟΤΕΛΕΣΜΑΤΑ

Μέθοδοι διόρθωσης και πειραματική επαλήθευση

4.1 ΑΚΤΙΝΟΒΟΛΗΣΗ ΣΤΗ ΘΕΡΜΙΚΗ ΣΤΗΛΗ

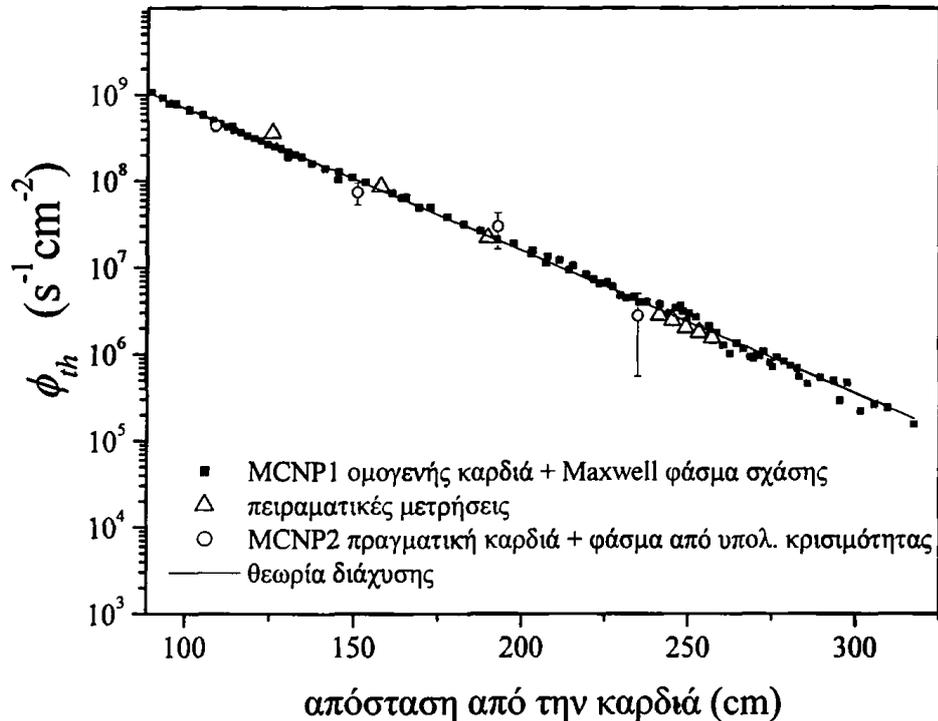
4.1.1 Ροή νετρονίων στη θερμική στήλη – Επαλήθευση μοντέλου

4.1.1.1 Ροή νετρονίων στη θερμική στήλη χωρίς την παρουσία δείγματος – Σύγκριση με πειραματικά δεδομένα

Στο Σχήμα 4-1 συγκρίνονται τα αποτελέσματα των υπολογισμών της ροής θερμικών νετρονίων κατά μήκος της στήλης του γραφίτη, που προκύπτουν από υπολογισμούς με το μοντέλο της λεπτομερούς γεωμετρίας της καρδιάς και το απλοποιημένο μοντέλο της ομογενούς καρδιάς σε σχέση με τη ροή θερμικών νετρονίων που προσδιορίστηκε πειραματικά. Η γραμμική προσαρμογή των δεδομένων έγινε με βάση τη λύση της εξίσωσης διάχυσης υπό την υπόθεση της επιφανειακής πηγής θερμικών νετρονίων στη μετωπική επιφάνεια της θερμικής στήλης (εξ. 2.19) ($\chi^2 = 0.992$). Οι κατανομές ροής που προκύπτουν δεν υποδεικνύουν διαφορές μεταξύ των δύο μοντέλων και τα αποτελέσματα των υπολογισμών Monte Carlo είναι σε πολύ καλή συμφωνία με τα αποτελέσματα της λύσης της εξίσωσης διάχυσης, αλλά και με τα πειραματικά αποτελέσματα. Το μήκος διάχυσης για το γραφίτη που

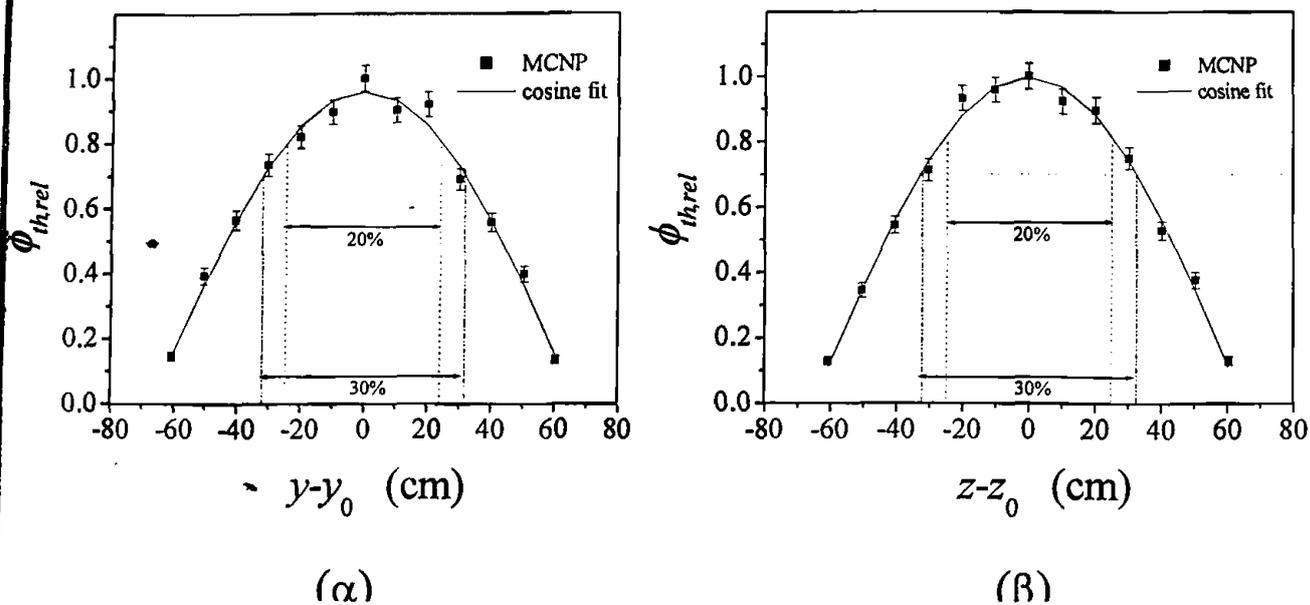


προκύπτει από τη γραμμική προσαρμογή των δεδομένων στο Σχήμα 4-1, είναι 53.3 ± 0.8 cm τιμή η οποία βρίσκεται σε συμφωνία με τις τιμές που δίνονται στη βιβλιογραφία [Report ANL-5800].



Σχήμα 4-1: Κατανομή της ροής θερμικών νετρονίων, ϕ_{th} , κατά μήκος της θερμικής στήλης όπως προκύπτει από υπολογισμούς με τον MCNP για την πραγματική γεωμετρία της καρδιάς με φάσμα νετρονίων σχάσης από υπολογισμούς κρισιμότητας και ομογενοποιημένη καρδιά με Maxwell φάσμα νετρονίων σχάσης (σχετικά σφάλματα < 10%), σε σχέση με τις πειραματικές μετρήσεις της ροής με ελάσματα χρυσού.

Στο Σχήμα 4-2 φαίνονται οι κατανομές της ροής θερμικών νετρονίων χωρίς την παρουσία δείγματος στη θέση ακτινοβόλησης κατά τους άξονες y και z . Η προσαρμογή των δεδομένων στο σχήμα έγινε με βάση τη σφαιρική κατανομή όπως υποδεικνύεται από τη θεωρία διάχυσης (εξ. 2.18). Συγκεκριμένα θεωρήθηκε ο πρώτος όρος της σειράς 2.18 με $x = z = 0$ και $b = y + 2d = 130.15$ για τον άξονα y ($\chi^2 = 1.13$) και με $x = y = 0$ και $c = z + 2d = 134.25$ για τον άξονα z ($\chi^2 = 1.05$). Το 80 % του μέγιστου της θερμικής ροής (ομοιογένεια 20 %) περιλαμβάνει την περιοχή -25 cm έως 25 cm που στην πράξη αντιστοιχεί σε μέγιστο πλάτος και ύψος δείγματος 50 cm. Για ομοιογένεια 30 % το αντίστοιχο εύρος που καλύπτεται είναι -30 cm έως 30 cm και για τους δύο άξονες y και z , δηλαδή μέγιστο πλάτος και ύψος δείγματος 60 cm.

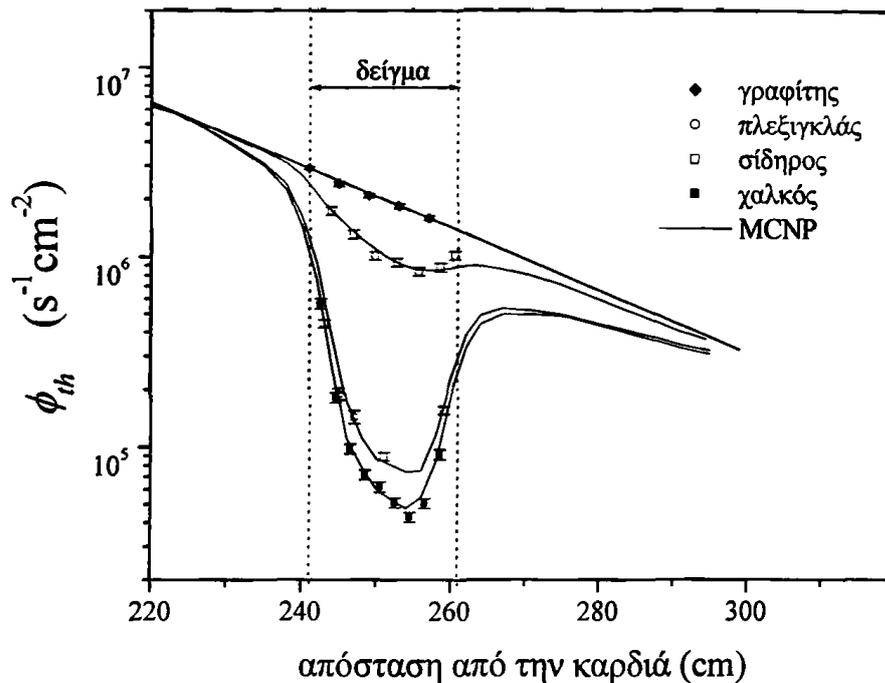


Σχήμα 4-2: Κατανομές της ροής θερμικών νετρονίων, $\phi_{th,rel}$, κατά τους άξονες (α) y και (β) z της θερμικής στήλης όπως προκύπτουν από υπολογισμούς με τον MCNP. Οι διακεκομμένες γραμμές δείχνουν τις περιοχές 20 % και 30 % ομοιογένειας της ροής θερμικών νετρονίων.

4.1.1.2 Ροή νετρονίων στη θερμική στήλη παρουσία δείγματος – Σύγκριση με πειραματικά δεδομένα

Η παρουσία ενός μεγάλου δείγματος στη στήλη του γραφίτη διαταράσσει το πεδίο ροής θερμικών νετρονίων όχι μόνο μέσα στο δείγμα αλλά και στην περιφέρειά του. Στο Σχήμα 4-3 συγκρίνονται τα αποτελέσματα των υπολογισμών με τις μετρήσεις της ροής θερμικών νετρονίων σε ομοιογενή δείγματα γραφίτη, πλεξιγκλάς, σιδήρου και χαλκού που έγιναν με ανιχνευτές ελασμάτων. Βρέθηκε ικανοποιητική συμφωνία μεταξύ υπολογισμένων και πειραματικών τιμών της ροής θερμικών νετρονίων.

Σύμφωνα με τα Σχήματα 4-1, 4-2 και 4-3 το μοντέλο της καρδιάς και της θερμικής στήλης του αντιδραστήρα προβλέπει ικανοποιητικά την κατανομή ροής θερμικών νετρονίων και τη διαταραχή του πεδίου νετρονίων στη στήλη του γραφίτη, λόγω της παρουσίας δείγματος μεγάλου όγκου, και τη αυτο-απορρόφηση νετρονίων μέσα στον όγκο του δείγματος. Ως εκ τούτου το μοντέλο παρέχει τη δυνατότητα υπολογισμού των συντελεστών διόρθωσης της ροής θερμικών νετρονίων για υλικά και τύπους δειγμάτων που ενδιαφέρουν τη ΕΑΝΕ μεγάλων δειγμάτων.



Σχήμα 4-3: Κατανομή της ροής θερμικών νετρονίων, ϕ_{th} , κατά τον άξονα του δείγματος, όπως προκύπτει από υπολογισμούς με τον MCNP και πειραματικές μετρήσεις με ελάσματα χρυσού για παραλληλεπίπεδα δείγματα διαστάσεων $10 \times 10 \times 20 \text{ cm}^3$ από γραφίτη, πλεξιγκλάς, σίδηρο και χαλκό στη θέση ακτινοβολήσης.

4.1.2 Καμπύλες διόρθωσης για την αυτό-απορρόφηση νετρονίων

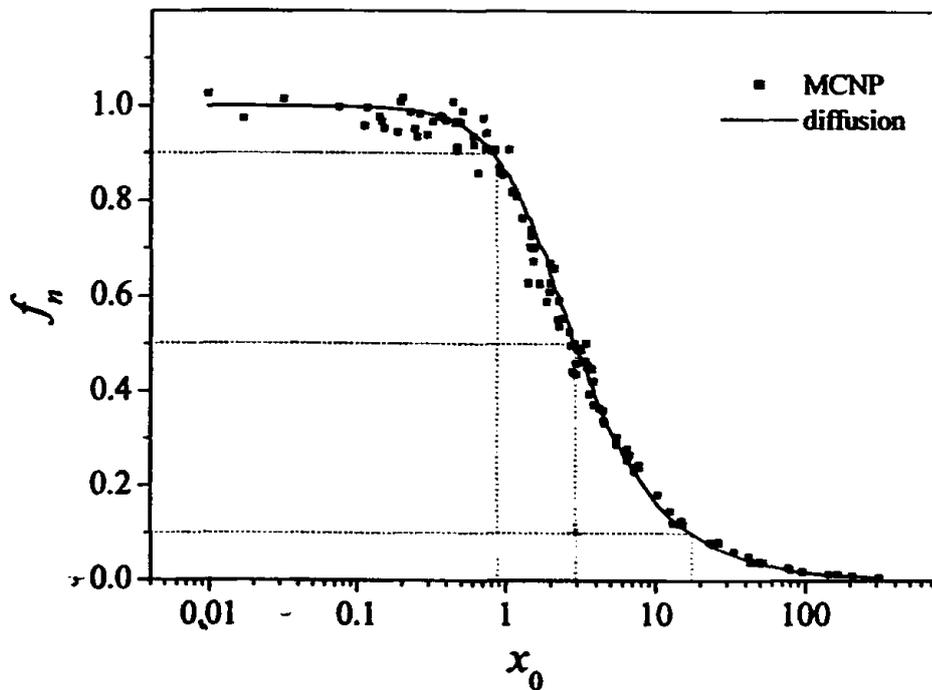
4.1.2.1 Ημι-εμπειρική καμπύλη διόρθωσης για δείγματα γνωστής σύστασης – Πειραματική επαλήθευση

Ο συντελεστής διόρθωσης της αυτο-απορρόφησης θερμικών νετρονίων, f_n , εξαρτάται από το μήκος διάχυσης των θερμικών νετρονίων του υλικού, L , και από τις διαστάσεις του δείγματος. Στο Σχήμα 4-4 δίνονται οι τιμές του συντελεστή f_n που υπολογίστηκαν για κυλινδρικά δείγματα από τα υλικά που δίνονται στους Πίνακες 3-3 και 3-4 σε σχέση με την αδιάστατη μεταβλητή x_0 η οποία ορίζεται ως $r \cdot h / [(r + h) \cdot L]$. Βρέθηκε ότι ο συντελεστής f_n που προκύπτει από τη θεωρία διάχυσης εισάγοντας τις σχέσεις 2.27 και 2.28 στη σχέση 2.29 για την περίπτωση κυλίνδρου με πεπερασμένο μήκος (οι σχέσεις 2.27 – 2.30 ισχύουν για την περίπτωση μονο-ενεργειακού ισοτροπικού πεδίου νετρονίων). Ως εκ τούτου είναι δυνατός ο προσδιορισμός του συντελεστή f_n , για μεγάλα ομοιογενή δείγματα με γνωστή μακροσκοπική σύσταση. Αξίζει να σημειωθεί ότι η τιμή του συντελεστή αυτό-απορρόφησης θερμικών νετρονίων, f_n , είναι λίγο μικρότερη της μονάδας (> 0.9) για $x_0 < 1$, ισούται με 0.5 όταν $x_0 = 3$ και λαμβάνει τιμές μικρότερες του 0.15 για $x_0 > 15$. Κατά συνέπεια η μέθοδος δεν

Αποτελέσματα

ενδείκνυται για δείγματα με υψηλές τιμές x_0 λόγω των σφαλμάτων που σχετίζονται με τον προσδιορισμό του συντελεστή f_n .

Για να διαπιστωθεί το κατά πόσο η ροή θερμικών νετρονίων στη θέση ακτινοβόλησης μπορεί να θεωρηθεί ισοτροπική, συγκρίθηκαν, για σφαιρικό δείγμα νερού ακτίνας 10 cm, τα αποτελέσματα υπολογισμών (α) με το πραγματικό μοντέλο της θερμικής στήλης (β) διατηρώντας τη γεωμετρία της θερμικής στήλης και παράλληλη μονοενεργειακή δέσμη θερμικών νετρονίων που εκπέμπεται από την μετωπική επιφάνεια της θερμικής στήλης (επιφάνεια 1 στο Σχήμα 3-2), (γ) διατηρώντας τη γεωμετρία της θερμικής στήλης και παράλληλη δέσμη θερμικών νετρονίων που εκπέμπεται από την μετωπική επιφάνεια της θερμικής στήλης (επιφάνεια 1 στο Σχήμα 3-2) με ενεργειακή κατανομή Maxwell και (δ) σφαιρική γεωμετρία γραφίτη ακτίνας 65 cm με πηγή θερμικών νετρονίων κατανεμημένη ομοιόμορφα στην επιφάνεια της σφαίρας (Πίνακας 4-1).



Σχήμα 4-4: Εξάρτηση του συντελεστή διόρθωσης αυτό-απορρόφησης νετρονίων, f_n , από την αδιάστατη μεταβλητή $x_0 = l/L$ του δείγματος, με $l = r \cdot h / (r + h)$ (τα σχετικά σφάλματα των υπολογισμών ήταν $< 10\%$). Η συνεχής γραμμή δείχνει τα αποτελέσματα της θεωρίας διάχυσης.

Παρά το γεγονός ότι οι απόλυτες τιμές της ροής θερμικών νετρονίων στον όγκο και στην επιφάνεια του δείγματος, ϕ_v και ϕ_s αντίστοιχα, δεν ταυτίζονται, οι σχετικές τιμές της ροής υπό την

έννοια του συντελεστή f_n συμπίπτουν μεταξύ του πλήρους μοντέλου (περίπτωση α) και του μονοενεργειακού ιστροπικού πεδίου νετρονίων (περίπτωση δ), γεγονός που υποδηλώνει ότι ισχύει η βασική προϋπόθεση της θεωρίας διάχυσης και επιτρέπει συνεπώς την έγκυρη συσχέτιση των αποτελεσμάτων αυτής με τους υπολογισμούς του μοντέλου.

Πίνακας 4-1: Υπολογισμοί του f_n με τον κώδικα MCNP για σφαιρικό δείγμα νερού ακτίνας 10 cm σε μέσο από γραφίτη για διάφορες επιλογές πηγής νετρονίων

Πηγή νετρονίων	ϕ_V ($\text{cm}^{-2}\text{n}^{-1}$)	$\sigma_{rel}(\phi_V)$	ϕ_S ($\text{cm}^{-2}\text{n}^{-1}$)	$\sigma_{rel}(\phi_S)$	f_n	$\sigma_{rel}(f_n)$
α^1	6.24E-10	0.069	1.07E-09	0.057	0.582	0.052
β^1	6.01E-07	0.019	1.07E-06	0.016	0.564	0.014
γ^1	2.43E-06	0.011	4.25E-06	0.010	0.572	0.009
δ^1	1.20E-04	0.006	2.09E-04	0.006	0.574	0.005

¹α: μοντέλο της θερμικής στήλης,

β: γεωμετρία της θερμικής στήλης με παράλληλη μονοενεργειακή δέσμη θερμικών νετρονίων που εκπέμπεται από την μετωπική επιφάνεια της θερμικής στήλης,

γ: σφαιρική γεωμετρία γραφίτη ακτίνας 65 cm με ιστροπική πηγή θερμικών νετρονίων από την επιφάνεια της σφαίρας,

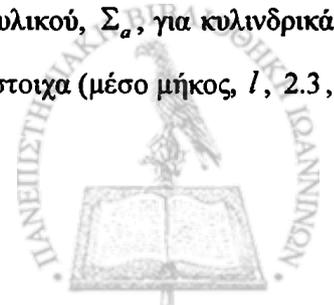
δ: γεωμετρία θερμικής στήλης με παράλληλη δέσμη θερμικών νετρονίων κάταννομής Maxwell που εκπέμπεται από την μετωπική επιφάνεια της θερμικής στήλης.

4.1.2.2 Διόρθωση για μη υδρογονούχα δείγματα άγνωστης σύστασης

Στη γενική περίπτωση της μη καταστροφικής EANE δειγμάτων μεγάλου όγκου, η σύσταση του υπό ανάλυση δείγματος δεν είναι γνωστή εκ των προτέρων και επομένως η καμπύλη του Σχήματος 4-4 δεν είναι άμεσα εφαρμόσιμη. Στην περίπτωση αυτή η μέθοδος διόρθωσης βασίζεται στον προσδιορισμό των ιδιοτήτων του υλικού ως προς την εξασθένηση και τη σκέδαση νετρονίων από τη μετρούμενη ροή θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος με τη χρήση ανιχνευτών ελασμάτων.

4.1.2.2.1 Συντελεστής διαταραχής ροής νετρονίων

Στο Σχήμα 4-5 απεικονίζεται ο συντελεστής διαταραχής της νετρονικής ροής στην επιφάνεια του κυλινδρικού δείγματος, h_n , όπως υπολογίζεται για τα υλικά που παρουσιάζονται στον Πίνακα 3-3, σαν συνάρτηση της μακροσκοπικής ενεργού διατομής απορρόφησης του υλικού, Σ_a , για κυλινδρικά δείγματα ακτίνας 3.0, 5.0 και 10 cm, και ύψους 10, 20-και 30 cm αντίστοιχα (μέσο μήκος, l , 2.3,



Αποτελέσματα

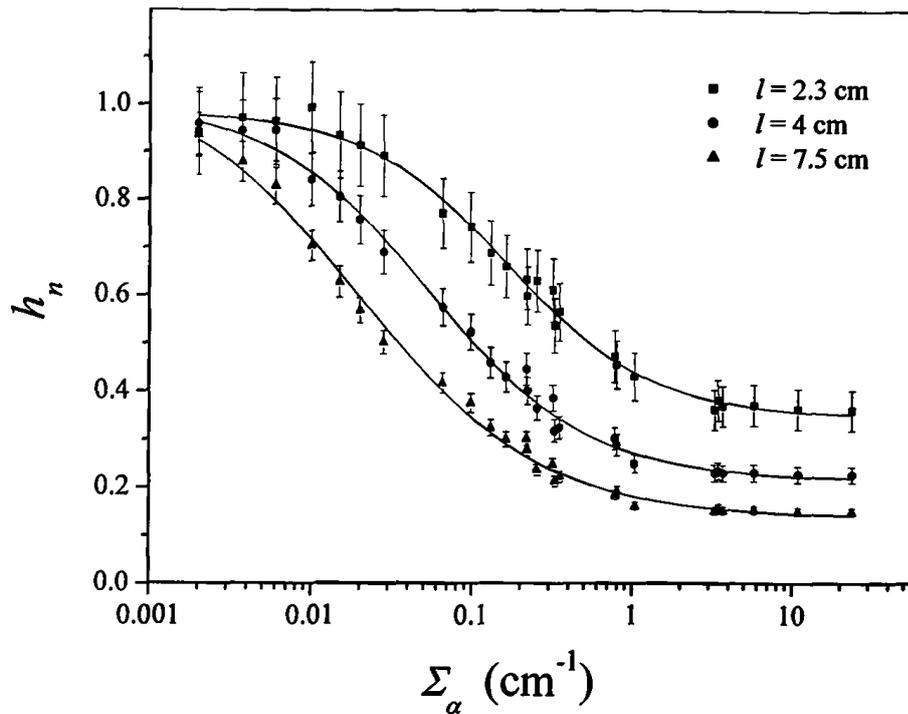
4.0 και 7.5 cm αντίστοιχα). Από το Σχήμα 4-5 παρατηρείται ότι οι ασθενείς απορροφητές νετρονίων δεν διαταράσσουν τη νετρονική ροή στον επιβραδυντή γραφίτη ($h_n \approx 1$). Ωστόσο υλικά που αποτελούν ισχυρούς απορροφητές προκαλούν σημαντική διαταραχή της ροής. Η ελάχιστη τιμή του συντελεστή διαταραχής της νετρονικής ροής στην επιφάνεια του κυλινδρικού δείγματος, $h_{n,\min}$, είναι ανεξάρτητη από το είδος του υλικού, αλλά εξαρτάται από το υλικό του επιβραδυντή καθώς και τις διαστάσεις του δείγματος [Mechreblian και Holmes 1960]. Στο Σχήμα 4-6 απεικονίζεται η τιμή του $h_{n,\min}$ για επιβραδυντή γραφίτη και για ισχυρό («απόλυτο») κυλινδρικό απορροφητή (BO_3), με ακτίνες μεταξύ 0.5 και 10 cm και ύψη μεταξύ 4.0 και 30 cm, σε συνάρτηση με τη μέση διάσταση του κυλινδρικού δείγματος $l = r \cdot h / (r + h)$.

4.1.2.2 Συντελεστής αυτο-απορρόφησης ροής νετρονίων

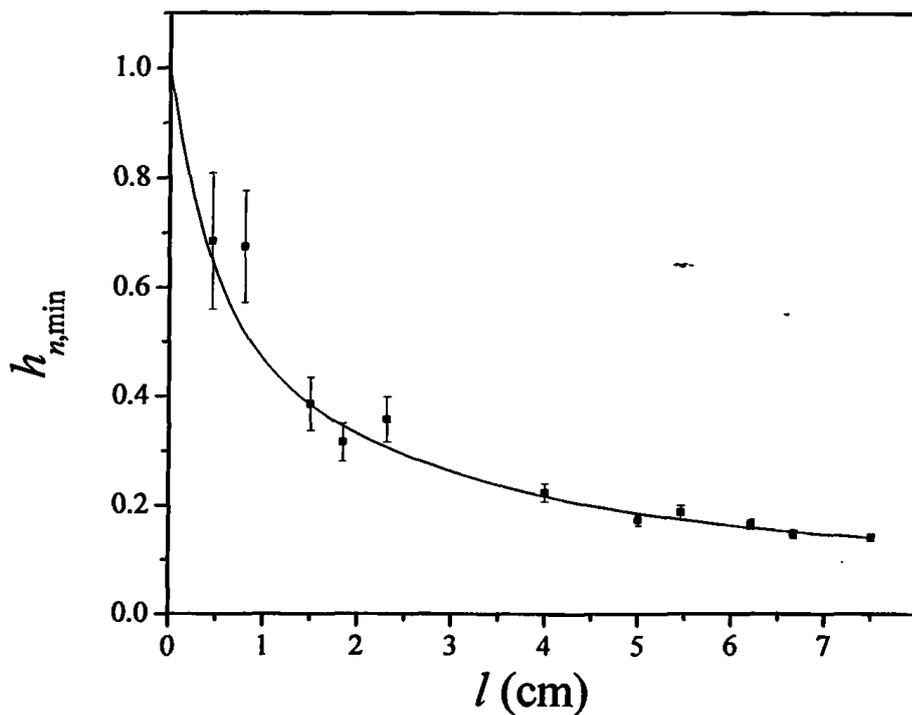
Στο Σχήμα 4-7 δίνεται η εξάρτηση του συνολικού συντελεστή αυτό-απορρόφησης θερμικών νετρονίων, g_n , όπως υπολογίζεται για τα υλικά που παρουσιάζονται στον Πίνακα 3-3 σαν συνάρτηση της μακροσκοπική ενεργού διατομής απορρόφησης του υλικού, Σ_a , για κυλινδρικά δείγματα ακτίνας 3.0, 5.0 και 10 cm, και ύψους 10, 20 και 30 cm αντίστοιχα (μέσο μήκος, l , 2.3, 4.0 και 7.5 cm αντίστοιχα). Η τιμή του συντελεστή g_n προσεγγίζει η μονάδα για υλικά που χαρακτηρίζονται ως ασθενείς απορροφητές ($\Sigma_a \leq 0.003$) και τείνει στο μηδέν για ισχυρούς απορροφητές ($\Sigma_a \geq 1$).

4.1.2.3 Συντελεστής διόρθωσης ροής νετρονίων

Όταν πρόκειται να πραγματοποιηθεί ΕΑΝΕ δειγμάτων μεγάλου όγκου και άγνωστης σύστασης, η μέτρηση της ροής θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος κανονικοποιημένη ως προς τη ροή αναφοράς στο γραφίτη, επιτρέπει τον προσδιορισμό της μακροσκοπικής ενεργού διατομής απορρόφησης θερμικών νετρονίων, Σ_a , μέσω της αντίστοιχης προς το μέγεθος του κυλινδρικού δείγματος καμπύλης του Σχήματος 4-5. Στη συνέχεια η τιμή της Σ_a χρησιμοποιείται για τον προσδιορισμό του συνολικού συντελεστή αυτο-απορρόφησης θερμικών νετρονίων g_n από την αντίστοιχη καμπύλη του Σχήματος 4-7. Ο συντελεστής διόρθωσης της αυτό-απορρόφησης θερμικών νετρονίων, f_n , προκύπτει από το λόγο g_n / h_n ή απευθείας από την αντίστοιχη καμπύλη του Σχήματος 4-8.

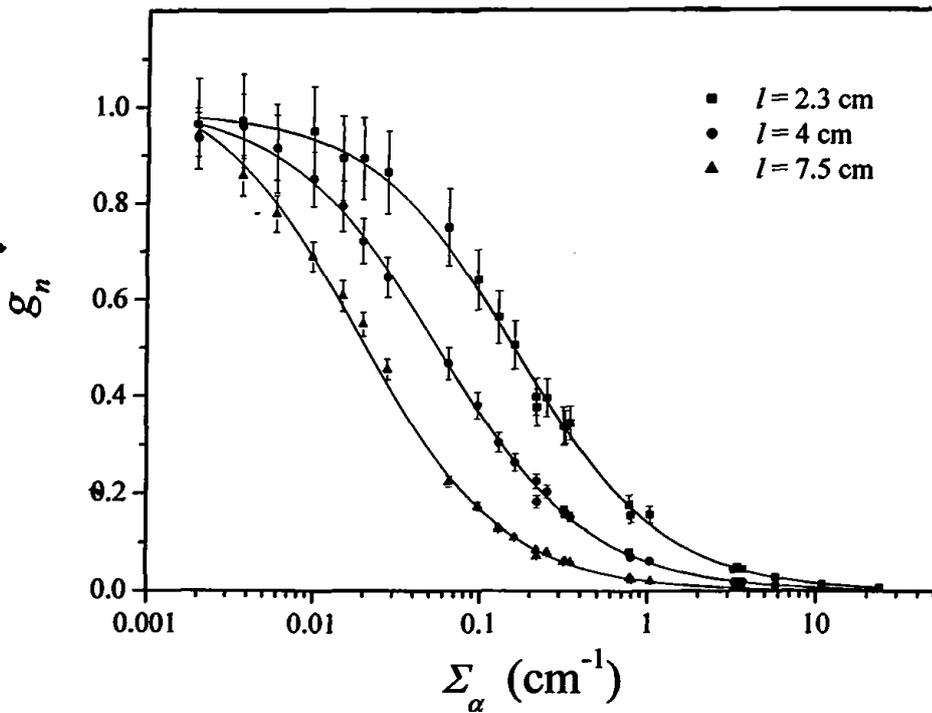


Σχήμα 4-5: Εξάρτηση του συντελεστή διαταραχής της ροής θερμικών νετρονίων, h_n , από τη μακροσκοπική ενεργό διατομή απορρόφησης θερμικών νετρονίων του δείγματος, Σ_a , με $l = r \cdot h / (r + h)$ 2.3, 4 και 7.5 cm.

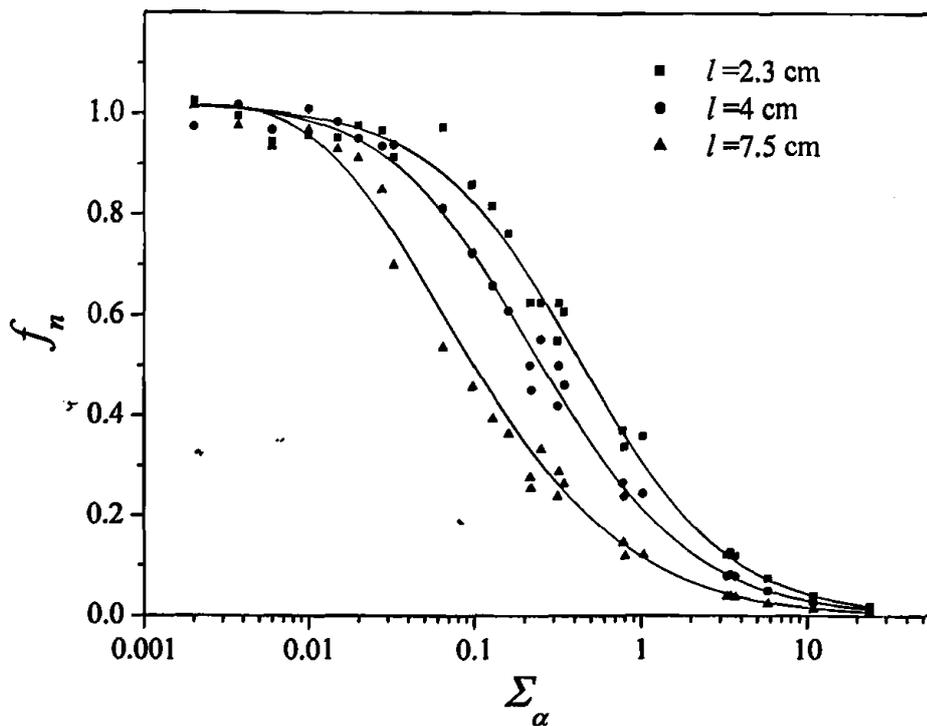


Σχήμα 4-6: Η ελάχιστη τιμή του συντελεστή διαταραχής της ροής θερμικών νετρονίων, $h_{n,min}$, για απόλυτο κυλινδρικό απορροφητή σε επιβραδυντή γραφίτη σε σχέση με τη μέση διάσταση του δείγματος $l = r \cdot h / (r + h)$.

Αποτελέσματα



Σχήμα 4-7: Εξάρτηση του συνολικού συντελεστή αυτό-απορρόφησης θερμικών νετρονίων, g_n , από τη μακροσκοπική ενεργό διατομή απορρόφησης θερμικών νετρονίων του δείγματος, Σ_α , με $l = r \cdot h / (r + h)$ 2.3, 4 και 7.5 cm.



Σχήμα 4-8: Εξάρτηση του συντελεστή αυτό-απορρόφησης θερμικών νετρονίων, f_n , από τη μακροσκοπική ενεργό διατομή απορρόφησης θερμικών νετρονίων του δείγματος, Σ_α , με $l = r \cdot h / (r + h)$ 2.3, 4 και 7.5 cm. Τα σχετικά σφάλματα στους υπολογισμούς ήταν < 10 %.

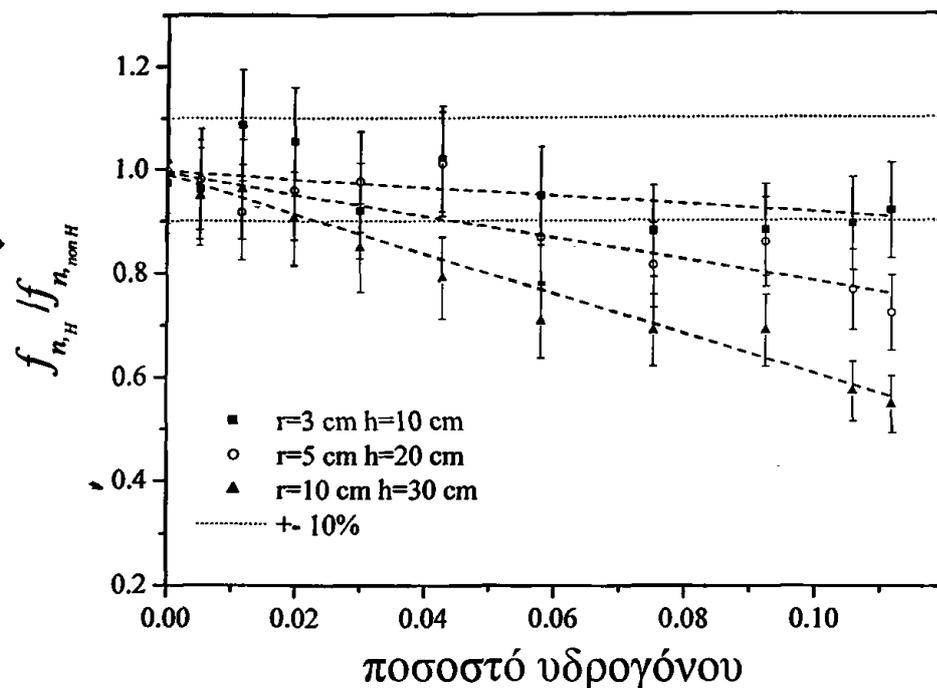
4.1.2.3 Διόρθωση για υδρογονούχα δείγματα άγνωστης σύστασης

Η επίδραση στο διορθωτικό συντελεστή αυτο-απορρόφησης, f_n , από την ύπαρξη υδρογόνου στο δείγμα, μελετήθηκε για ομογενή μίγματα νερού και γραφίτη με κατά βάρος συγκέντρωση υδρογόνου από 0 % έως 11 % (Πίνακας 3-4). Στο Σχήμα 4-9 απεικονίζεται ο λόγος των συντελεστών αυτο-απορρόφησης ενός υδρογονούχου προς ένα «μη υδρογονούχο» δείγμα, $f_{n,H} / f_{n,non H}$, σε συνάρτηση με τη συγκέντρωση υδρογόνου. Ο συντελεστής του υδρογονούχου δείγματος, $f_{n,H}$, προέκυψε από την προσομοίωση του δείγματος ενώ ο συντελεστής του «μη υδρογονούχου» δείγματος, $f_{n,non H}$, από τις καμπύλες διόρθωσης για τα μη υδρογονούχα υλικά της παραγράφου 4.1.2.2 με βάση την υπολογιζόμενη ροή στην επιφάνεια του δείγματος. Επιπλέον, στο Σχήμα 4-10 απεικονίζεται η εξάρτηση του λόγου $f_{n,H} / f_{n,non H}$ από τη συγκέντρωση του υδρογόνου στο δείγμα, για δύο διαφορετικούς τύπους μιγμάτων, νερού με γραφίτη και πολυαιθυλενίου με γραφίτη και διαστάσεις δείγματος $r = 5$ cm και $h = 20$ cm. Βρέθηκε ότι ο λόγος των συντελεστών αυτό-απορρόφησης, $f_{n,H} / f_{n,non H}$, μειώνεται όσο αυξάνεται η συγκέντρωση και ότι η μεταβολή εξαρτάται από το μέγεθος του δείγματος. Άρα, αν η παρουσία του υδρογόνου σε ένα δείγμα δε ληφθεί υπόψη, υπερεκτιμάται η τιμή του συντελεστή διόρθωσης f_n και συνεπώς της μέσης ροής στον όγκο του δείγματος γεγονός που οδηγεί σε υποτίμηση της συγκέντρωσης των στοιχείων στο-δείγμα.

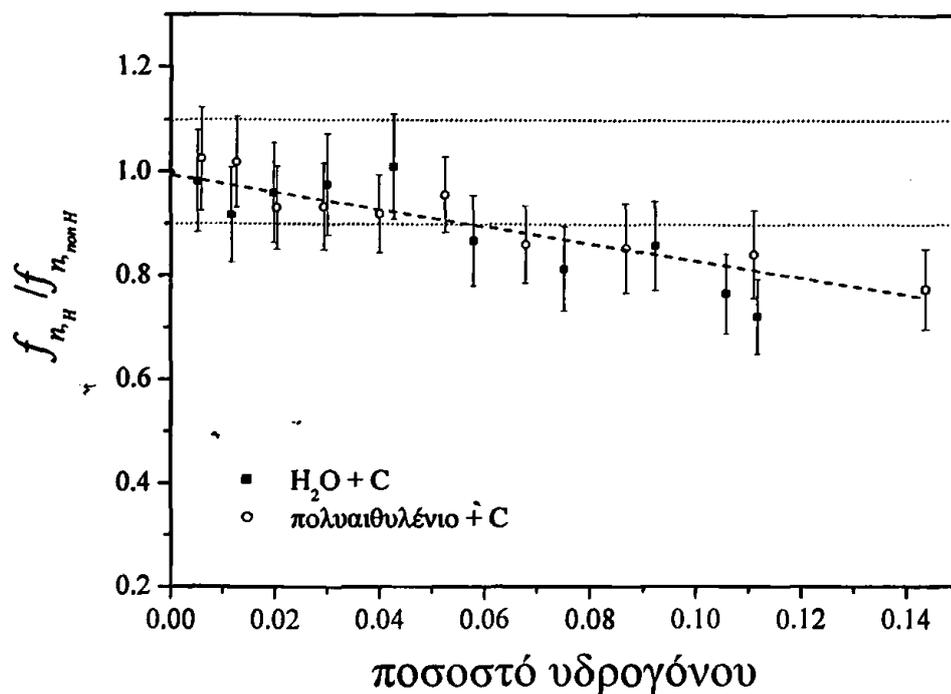
Τα αποτελέσματα της παρούσας εργασίας υποδεικνύουν ότι κατά την ανάλυση υδρογονούχων δειγμάτων είναι απαραίτητο να ληφθεί ειδική μέριμνα. Για μικρά δείγματα, για παράδειγμα ένα δείγμα με $l = 2.3$ cm, ή δείγματα με χαμηλή περιεκτικότητα σε υδρογόνο, όπως είναι για παράδειγμα δείγμα φλοιώδους οστίτη ιστού (cortical bone) με συγκέντρωση υδρογόνου 3.4 % [ICRU-44 1989], η απόκλιση του συντελεστή αυτο-απορρόφησης από την «αρχική» του τιμή δεν υπερβαίνει το 5 – 10 %, και σε ορισμένες εφαρμογές θα μπορούσε να αγνοηθεί. Ωστόσο, για μεγαλύτερα δείγματα ή δείγματα με υψηλή περιεκτικότητα σε υδρογόνο, για παράδειγμα δείγμα λίπους ή μαλακού ιστού με ποσοστό υδρογόνου 11.2 % και 10.2 % αντίστοιχα [ICRU-44 1989], ο συντελεστής αυτο-απορρόφησης f_n δεν μπορεί να προσδιοριστεί άμεσα. Σ' αυτές τις περιπτώσεις κρίνεται απαραίτητη η γνώση της περιεκτικότητας του υδρογόνου στο δείγμα μέσω ανεξάρτητης μεθόδου. Μία τέτοια μέθοδος προσδιορισμού της περιεκτικότητας του υδρογόνου σε ένα μεγάλο δείγμα είναι η άμεση ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση (Prompt Gamma Neutron Activation Analysis). Η περιεκτικότητα του υδρογόνου προσδιορίζεται μέσω της ανάλυσης της φωτοκορυφής των 2.2 MeV του υδρογόνου στο φάσμα των άμεσα εκπεμπόμενων φωτονίων. Εναλλακτικά μπορούν να χρησιμοποιηθούν εξωτερικά πρότυπα που προετοιμάζονται έτσι ώστε να αντιπροσωπεύουν τα υπό ανάλυση υλικά [Perry 1991].



Αποτελέσματα



Σχήμα 4-9: Ο λόγος των συντελεστών αυτό-απορρόφησης $f_{n,H} / f_{n,nonH}$ ενός υδρογονούχου δείγματος προς ένα μη υδρογονούχο δείγμα σε συνάρτηση με το ποσοστό του υδρογόνου στο δείγμα για τρία μεγέθη δειγμάτων ($l = r \cdot h / (r + h)$) 2.3, 4 και 7.5 cm) και υλικά μίγματα νερού με γραφίτη σε διάφορα ποσοστά.



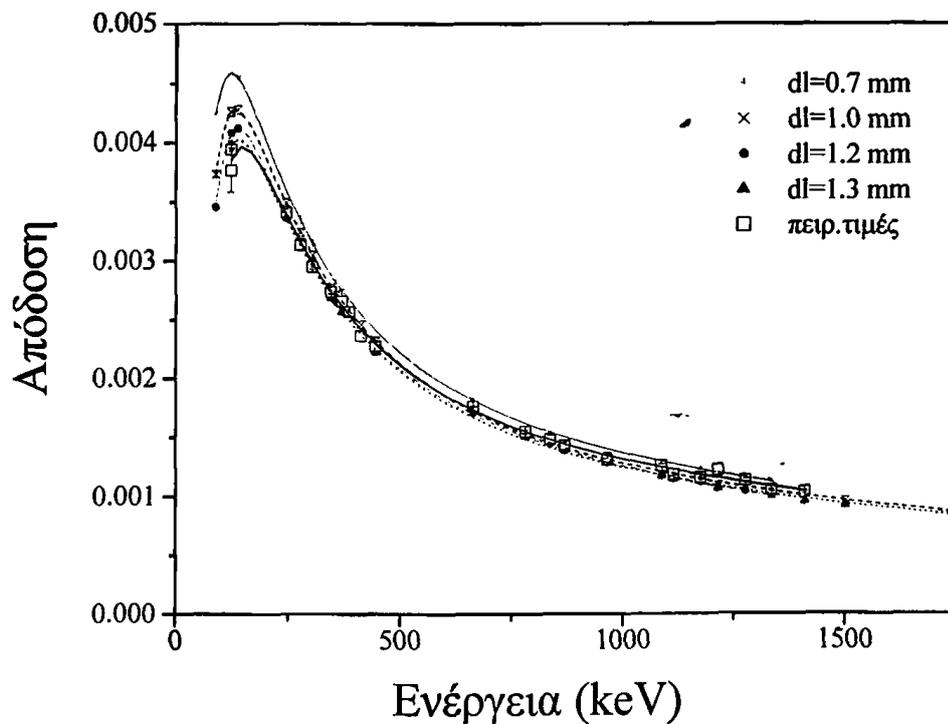
Σχήμα 4-10: ο λόγος των συντελεστών αυτό-απορρόφησης $f_{n,H} / f_{n,nonH}$ ενός υδρογονούχου δείγματος προς ένα μη υδρογονούχο δείγμα σε συνάρτηση με το ποσοστό του υδρογόνου στο δείγμα για δύο διαφορετικούς τύπους μιγμάτων, νερό με γραφίτη και πολυαιθυλένιο με γραφίτη ($l = r \cdot h / (r + h) = 4 \text{ cm}$).

4.2 ΜΕΤΡΗΣΗ ΣΤΗ ΔΙΑΤΑΞΗ γ ΦΑΣΜΑΤΟΣΚΟΠΙΑΣ

4.2.1 Απόδοση του ανιχνευτή για σημειακή πηγή φωτονίων – Επαλήθευση μοντέλου

Παρατηρήθηκαν μικρές αποκλίσεις στις τιμές της απόκρισης του ανιχνευτή που μετρήθηκαν από αυτές που υπολογίστηκαν με τη βοήθεια του μοντέλου. Το εύρημα αυτό πιθανώς να σχετίζεται με διαφορές του ενεργού όγκου του κρυστάλλου σε σχέση με αυτόν που προκύπτει από τις τιμές του κατασκευαστή.

Από το Σχήμα 4-11 παρατηρείται η εξάρτηση της απόδοσης του ανιχνευτή από το πάχος της νεκρής ζώνης (dead layer) και από την ενέργεια σε περίπτωση σημειακής πηγής φωτονίων επί του κυρίου άξονα του ανιχνευτή και σε απόσταση 25 cm από την επιφάνειά του. Βέλτιστη σύγκριση των αποτελεσμάτων βρέθηκε θεωρώντας πάχος νεκρής ζώνης 1.0 mm. Παρόμοιες διαφορές έχουν παρατηρηθεί κι από άλλους ερευνητές [Clouvas και συν. 1998, Rodenas και συν. 2003]. Στους περαιτέρω υπολογισμούς θεωρήθηκε νεκρή ζώνη κρυστάλλου πάχους 1.0 mm.

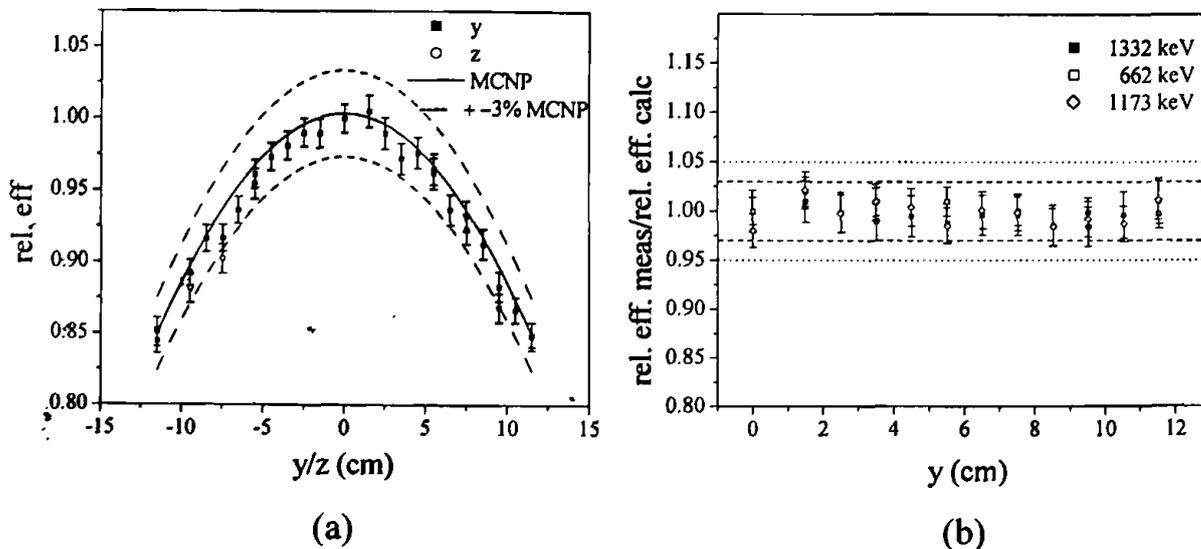


Σχήμα 4-11: Εξάρτηση της απόδοσης από την ενέργεια για σημειακή πηγή ακτίνων γ στον άξονα συμμετρίας του ανιχνευτή σε απόσταση 25 cm από την επιφάνειά του, όπως αυτή προσδιορίζεται πειραματικά και υπολογίζεται από το μοντέλο του ανιχνευτή για διάφορα πάχη νεκρής ζώνης του κρυστάλλου (dead layer).

4.2.2 Απόδοση ανιχνευτή στο χώρο – Επαλήθευση μοντέλου

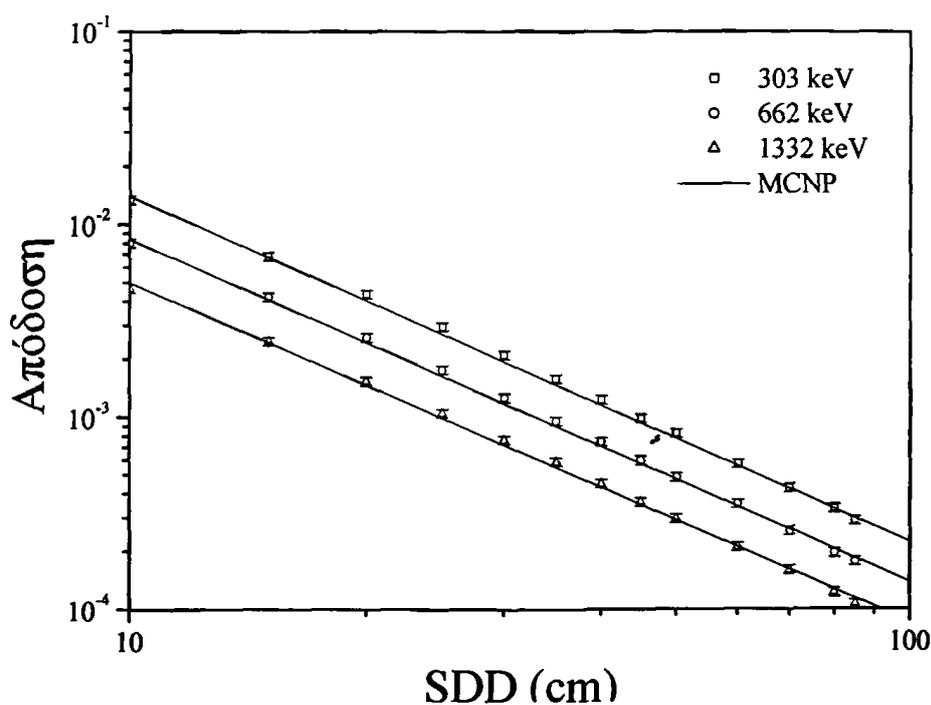
Στο Σχήμα 4-12α δίνεται η σύγκριση της σχετικής απόδοσης του ανιχνευτή για διάφορες αποστάσεις y και z εκτός του άξονά του, όπως αυτή προκύπτει από το μοντέλο και από πειραματικές μετρήσεις, για τη φωτοκορυφή των 1332 keV σημειακής πηγής ^{60}Co , που βρίσκεται σε επίπεδο κάθετο στον άξονα συμμετρίας του ανιχνευτή, σε απόσταση 25 cm από την επιφάνειά του. Οι τιμές της απόδοσης κανονικοποιήθηκαν ως προς την απόδοση για την ίδια ενέργεια για σημειακή πηγή στο σημείο $y=z=0$ και στην ίδια απόσταση από την επιφάνεια του ανιχνευτή. Βρέθηκε ότι η πειραματικά μετρούμενη απόδοση προβλέπεται από τον κώδικα με ακρίβεια $\pm 3\%$ σε μία περιοχή ± 12 cm. Αν ολοκληρωθούν οι πειραματικά μετρούμενες και υπολογιζόμενες συναρτήσεις της απόδοσης σε όλο το εύρος των y και z αξόνων που αναπαρίστανται στο σχήμα, προκύπτουν διαφορές 0.8% και 1.3% αντίστοιχα.

Στο Σχήμα 4-12β δίνεται ο λόγος της μετρούμενης προς την υπολογιζόμενη σχετική απόδοση του ανιχνευτή εκτός του άξονα για ενέργειες φωτονίων 1332, 1173 και 662 keV σε συνάρτηση με την οριζόντια απόσταση y από τον άξονα του ανιχνευτή σε επίπεδο κάθετο στον άξονα συμμετρίας του ανιχνευτή σε απόσταση 25 cm από την επιφάνειά του. Παρόμοια αποτελέσματα προέκυψαν για τις κατακόρυφες αποστάσεις z από τον άξονα του ανιχνευτή. Βρέθηκε ότι οι μετρούμενες και οι υπολογιζόμενες τιμές της σχετικής απόδοσης συμφωνούν με ανοχή $\pm 3\%$ και για τις τρεις ενέργειες ακτίνων γ .



Σχήμα 4-12: (α) Υπολογιζόμενη και μετρούμενη σχετική απόδοση εκτός άξονα ως προς τον άξονα για φωτόνια 1332 keV για επίπεδο παράλληλο στην επιφάνεια του ανιχνευτή σε απόσταση 25 cm από αυτή, (β) λόγος της μετρούμενης προς την υπολογιζόμενη σχετική απόδοση του ανιχνευτή εκτός του άξονα για ενέργειες φωτονίων 1332, 1173 και 662 keV σε συνάρτηση με την οριζόντια απόσταση y από τον άξονα του ανιχνευτή σε επίπεδο κάθετο στον άξονα συμμετρίας του ανιχνευτή σε απόσταση 25 cm από την επιφάνειά του.

Στο Σχήμα 4-13 δίνεται η σύγκριση της μετρούμενης με την υπολογιζόμενη απόδοση του ανιχνευτή για σημειακή πηγή κατά μήκος του κυλινδρικού άξονα συμμετρίας του, σε σχέση με την απόσταση της πηγής από την επιφάνειά του, για τρεις ενέργειες ακτίνων γ 303, 662 και 1332 keV. Οι τιμές της απόδοσης που προέκυψαν από το μοντέλο (συνεχείς γραμμές) κανονικοποιήθηκαν ως προς την αντίστοιχη πειραματική τιμή της απόδοσης σημειακής πηγής σε απόσταση 10 cm από την επιφάνεια του ανιχνευτή. Παρατηρείται ότι η συνάρτηση της απόδοσης του ανιχνευτή στον άξονα, ως προς την απόσταση από την επιφάνειά του, προβλέπεται ικανοποιητικά από το μοντέλο.



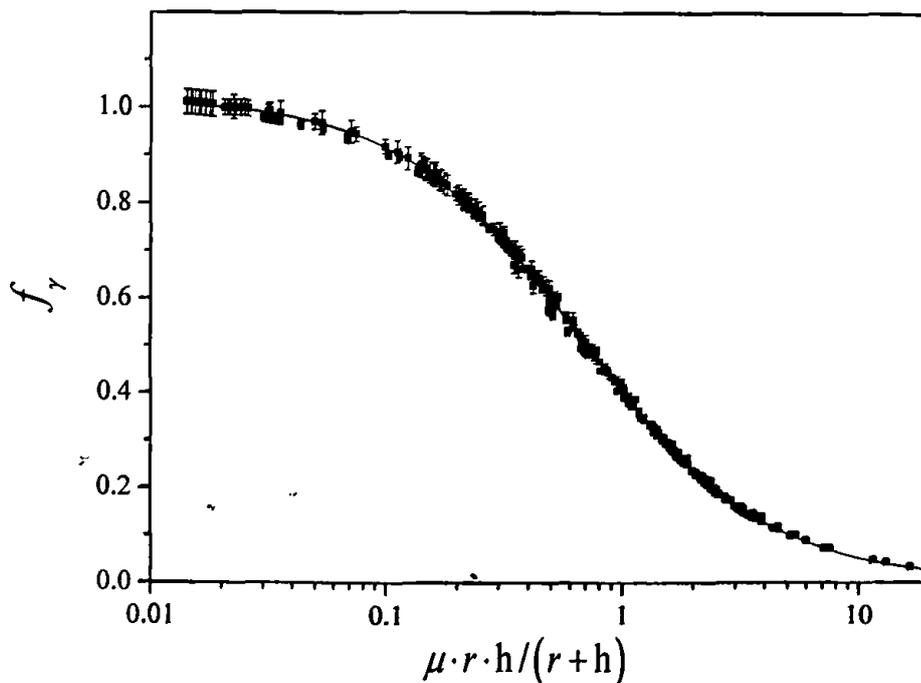
Σχήμα 4-13: Υπολογιζόμενη και μετρούμενη απόδοση για σημειακή πηγή ακτίνων γ πάνω στον άξονα του ανιχνευτή για φωτόνια 303, 662 και 1332 keV. Οι τιμές της απόδοσης που προέκυψαν από το μοντέλο (συνεχείς γραμμές) έχουν κανονικοποιηθεί ως προς την αντίστοιχη πειραματική τιμή της απόδοσης στα 10 cm από την επιφάνεια του ανιχνευτή.

4.2.3 Καμπύλες διόρθωσης για τη γεωμετρία της πηγής και την εξασθένηση των ακτίνων γ σε πηγή μεγάλου όγκου

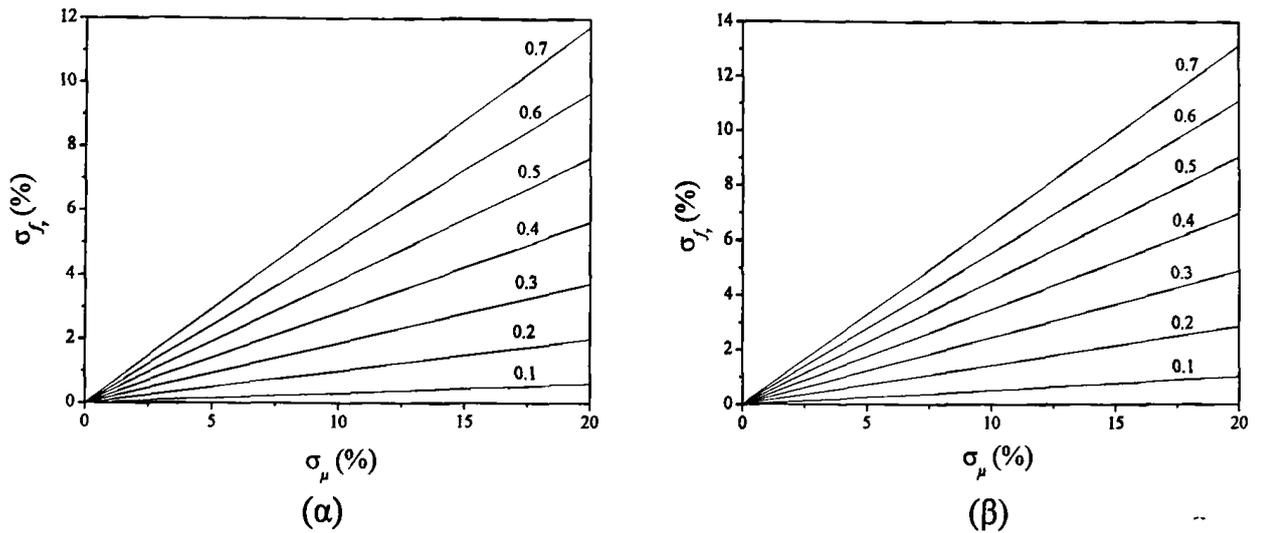
Στο Σχήμα 4-14 απεικονίζεται η εξάρτηση του συντελεστή διόρθωσης της απόδοσης του ανιχνευτή για ομοιογενή πηγή όγκου, f_v , από την αδιάστατη μεταβλητή $\mu \cdot r \cdot h / (r + h)$ (βλ. παρ. 3.2.2.3), για τα υλικά του Πίνακα 3-5. Το Σχήμα 4-14 αναδεικνύει τις δυνατότητες εφαρμογής της μεθόδου

Αποτελέσματα

διόρθωσης στην EANE ομοιογενών δειγμάτων μεγάλου όγκου, όταν είναι γνωστός ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης ακτίνων γ του υλικού, μ . Στην περίπτωση που η μακροσκοπική σύσταση του υλικού δεν είναι γνωστή εκ των προτέρων, ο συντελεστής μ προσδιορίζεται πειραματικά για το άγνωστο υλικό χρησιμοποιώντας τη διάταξη διέλευσης ακτίνων γ που περιγράφεται στην παράγραφο 3.2.2.3.1. Είναι φανερό ότι τα σφάλματα κατά τον πειραματικό προσδιορισμό του συντελεστή μ επηρεάζουν άμεσα την εκτίμηση του συντελεστή f_γ . Στα Σχήματα 4-15α και 4-15β ποσοτικοποιείται η επίδραση του σφάλματος του γραμμικού συντελεστή εξασθένησης μ στον προσδιορισμό του παράγοντα διόρθωσης f_γ για δύο μεγέθη δειγμάτων, $r = 4.28$ cm, $h = 9$ cm και $r = 7.5$ cm, $h = 30$ cm αντίστοιχα. Παρατηρείται ότι ο συντελεστής f_γ δεν είναι ιδιαίτερα ευαίσθητος ως προς το σφάλμα κατά τον προσδιορισμό του μ . Για παράδειγμα, σφάλμα της τάξης του 3 % στην τιμή του μ οδηγεί σε σφάλμα 2 % στην τιμή του f_γ για δείγμα ακτίνας $r = 7.5$ cm και ύψους $h = 30$ cm, με γραμμικό συντελεστή εξασθένησης 0.7 cm⁻¹.



Σχήμα 4-14: Εξάρτηση του υπολογιζόμενου συντελεστή διόρθωσης της απόδοσης του ανιχνευτή για ομοιογενή πηγή μεγάλου όγκου, f_γ , από την αδιάστατη μεταβλητή του δείγματος $\mu \cdot r \cdot h / (r + h)$ για απόσταση κέντρου μάζας πηγής - επιφάνειας ανιχνευτή SDD= 25 cm.



Σχήμα 4-15: Το σφάλμα στην εκτίμηση του συντελεστή f_f λόγω ενός σφάλματος στον προσδιορισμό του γραμμικού συντελεστή εξασθένησης, μ , σε συνάρτηση με το σφάλμα στην τιμή του μ για δείγματα διαστάσεων (α) $r = 4.28$ cm, $h = 9$ cm και (β) $r = 7.5$ cm, $h = 30$ cm. Οι τιμές στις καμπύλες υποδεικνύουν τις διαφορετικές τιμές του μ σε cm^{-1} .

4.3 ΣΥΝΟΛΙΚΗ ΔΙΟΡΘΩΣΗ ΓΙΑ ΤΗΝ ΑΥΤΟ-ΑΠΟΡΡΟΦΗΣΗ ΝΕΤΡΟΝΙΩΝ, ΤΗ ΓΕΩΜΕΤΡΙΑ ΤΗΣ ΠΗΓΗΣ ΚΑΙ ΤΗΝ ΕΞΑΣΘΕΝΗΣΗ ΤΩΝ ΑΚΤΙΝΩΝ γ

Στον Πίνακα 4-2 δίνονται οι τιμές του συνολικού συντελεστή διόρθωσης f , κατά την ανίχνευση ακτίνων γ διαφόρων ενεργειών, για δείγμα από υλικό με μήκος διάχυσης $L = 2.54$ cm και σταθερά διάχυσης $D = 1.4$ cm (αντιστοιχεί σε υδατικό δείγμα), διαστάσεων $r = 4.5$ cm και $h = 16$ cm. Στην περίπτωση αυτή ο συσχετισμός ή ο διαχωρισμός των διορθώσεων f_n και f_f σχετίζεται με την επιλογή στο λογισμικό αν πρόκειται για στερεό ή υγρό υλικό αντίστοιχα. Ο Πίνακας 4-3 επιτρέπει τη σύγκριση των συνολικών συντελεστών διόρθωσης f για δείγματα στερεά και υγρά υποθετικού υλικού με μήκος διάχυσης $L = 0.5$ cm και σταθερά διάχυσης $D = 1.4$ cm, κατά την ανίχνευση φωτονίων ενέργειας 121.78 keV (φωτόνια από πηγή ^{152}Eu).

Βρέθηκε ότι, παρά την μεταβολή των παραμέτρων (ενέργεια φωτονίων, μήκος διάχυσης και διάμετρος), δεν υπάρχει μεγάλη διαφορά στις τιμές του διορθωτικού παράγοντα, f , μεταξύ επιλογής, στο λογισμικό του IRI - TU Delft, υγρού και στερεού δείγματος.

Αποτελέσματα

Πίνακας 4-2: Συνολικός συντελεστής διόρθωσης f για δείγμα από νερό (μήκος διάχυσης $L = 2.54$ cm και σταθερά διάχυσης $D = 1.4$ cm) διαστάσεων $r = 4.5$ cm και $h = 16$ cm για την περίπτωση όπου οι δύο διορθώσεις f_n και f_γ συσχετίζονται (λειτουργία του λογισμικού για στερεό δείγμα) και τη σύγκριση με το συντελεστή που προκύπτει από το διαχωρισμό των δύο διορθώσεων (λειτουργία του λογισμικού για υγρό δείγμα), για διάφορες ενέργειες ακτίνων γ

Ενέργεια (keV)	Επιλογή Υγρού: OFF		Επιλογή Υγρού: ON
	f	σ_f (%)	
121.78	2.588	2	2.540
244.69	2.393	3	2.345
344.29	2.170	2	2.209
411.12	2.069	4	2.085
443.89	2.063	2	2.042
778.92	1.924	1.5	1.940
964.11	1.843	2	1.852
1112.07	1.779	2.4	1.747
1408.00	1.777	2	1.760
10000	1.391	1.5	1.384

Πίνακας 4-3: Συνολικός συντελεστής διόρθωσης f για στερεό (συσχετισμός διορθώσεων f_n και f_γ) δείγμα από ακραίο φανταστικό υλικό με μήκος διάχυσης $L = 0.5$ cm και σταθερά διάχυσης $D = 1.4$ cm για δύο διαστάσεις και σύγκριση με τον αντίστοιχο συντελεστή για υγρό δείγμα (διαχωρισμός των δύο διορθώσεων), για τη χαμηλή ενέργεια 121.78 keV του ^{152}Eu

Διαστάσεις r (cm), h (cm)	Ενέργεια (keV)	Επιλογή Υγρού: OFF		Επιλογή Υγρού: ON
		f	σ_f (%)	
4.5, 16	121.78	8.4	3	8.2
7.5, 16	121.78	15.3	2	15.4

4.4 ΕΠΙΔΡΑΣΗ ΤΩΝ ΑΝΟΜΟΙΟΓΕΝΕΙΩΝ ΣΤΗΝ ΑΚΡΙΒΕΙΑ ΤΗΣ ΜΕΘΟΔΟΥ

4.4.1 Ανομοιογένειες σύστασης κατά την ακτινοβόληση

Στα Σχήματα 4-16, 4-17 και 4-18 εμφανίζεται η εξάρτηση του παράγοντα ανομοιογένειας σύστασης R_n^m για δύο περιπτώσεις ανομοιογενειών, αξονικές και ακτινικές (Σχήμα 3-6), από το ποσοστό της ανομοιογένειας στον όγκο του υλικού, V_i/V_s για συνδυασμούς υλικών SiO_2 - γραφίτη, χαλκό - γραφίτη και SiO_2 - χαλκό.

Αξονικές ανομοιογένειες: Από τους υπολογισμούς που φαίνονται στο Σχήμα 4-16 προκύπτει ότι ο παράγοντας ανομοιογένειας R_n^m δεν διαφέρει στατιστικά από τη μονάδα για αξονικούς συνδυασμούς του SiO_2 με το γραφίτη. Αντίθετα, σύμφωνα με τα Σχήματα 4-17 και 4-18, οι μέγιστες αποκλίσεις του R_n^m από τη μονάδα φθάνουν το 26 % και 23 % σε δείγματα χαλκού με ανομοιογένεια γραφίτη ή SiO_2 αντίστοιχα. Το γεγονός αυτό αποδίδεται στο ότι και οι δύο συνδυασμοί χαρακτηρίζονται από μεγάλες διαφορές στις ιδιότητες απορρόφησης θερμικών νετρονίων μεταξύ των υλικών.

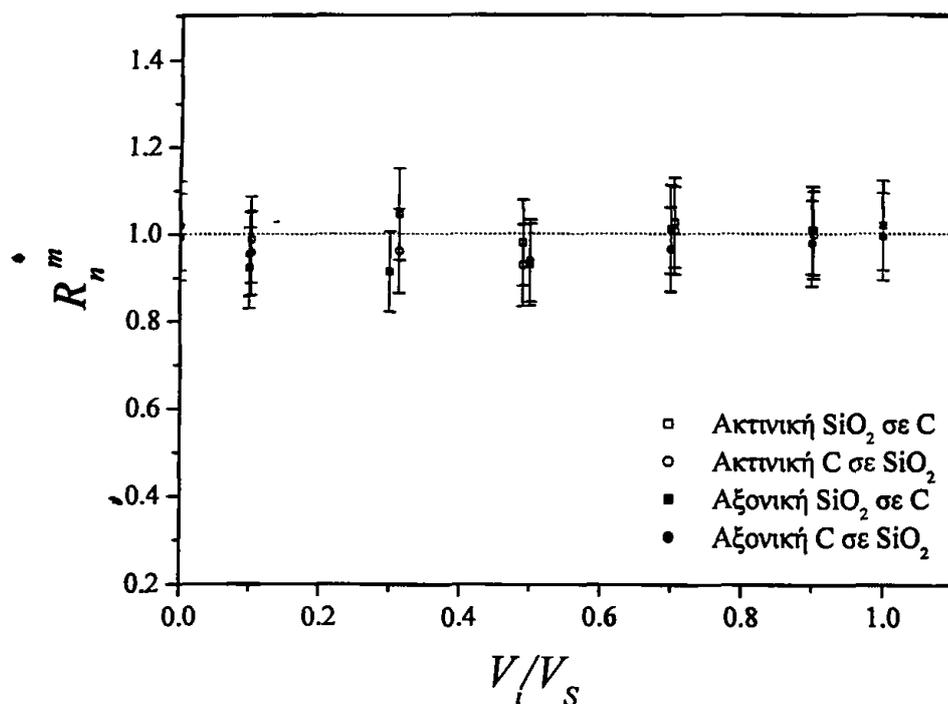
Ακτινικές ανομοιογένειες: Από το Σχήμα 4-16 προκύπτει ότι ο παράγοντας ανομοιογένειας R_n^m δε διαφέρει στατιστικά από τη μονάδα για τους συνδυασμούς του SiO_2 με το γραφίτη. Για τους συνδυασμούς χαλκού με γραφίτη που μελετήθηκαν (Σχήμα 4-17) η μέγιστη τιμή του παράγοντα ανομοιογένειας R_n^m , 1.22, παρατηρήθηκε όταν ο χαλκός βρισκόταν στο εσωτερικό δείγματος από γραφίτη σε ποσοστό όγκου 0.7 και η μικρότερη, 0.62, όταν ο γραφίτης βρισκόταν στο εσωτερικό δείγματος από χαλκό σε ποσοστό όγκου 0.5. Για τους συνδυασμούς SiO_2 - Cu, όπως προκύπτει από το Σχήμα 4-18, δεν παρατηρήθηκε στατιστικά σημαντική διαφορά από τη μονάδα για τον παράγοντα ανομοιογένειας R_n^m για ανομοιογένειες χαλκού στο εσωτερικό δείγματος από SiO_2 . Η μικρότερη τιμή για τον R_n^m , 0.64, υπολογίστηκε όταν το SiO_2 βρισκόταν στο εσωτερικό δείγματος από χαλκό σε ποσοστό όγκου 0.3. Συμπεραίνεται λοιπόν ότι όταν το υλικό «ισχυρός απορροφητής» (χαλκός) βρίσκεται στην εξωτερική πλευρά του δείγματος, μειώνεται δραστικά η ροή θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια γεγονός που οδηγεί σε υποτίμηση του συντελεστή διόρθωσης f_n και της ροής θερμικών στον όγκο του δείγματος και συνεπώς υπερεκτίμηση των τελικών συγκεντρώσεων στο δείγμα.

4.4.2 Ανομοιογένειες ιχνοστοιχείων κατά την ακτινοβόληση

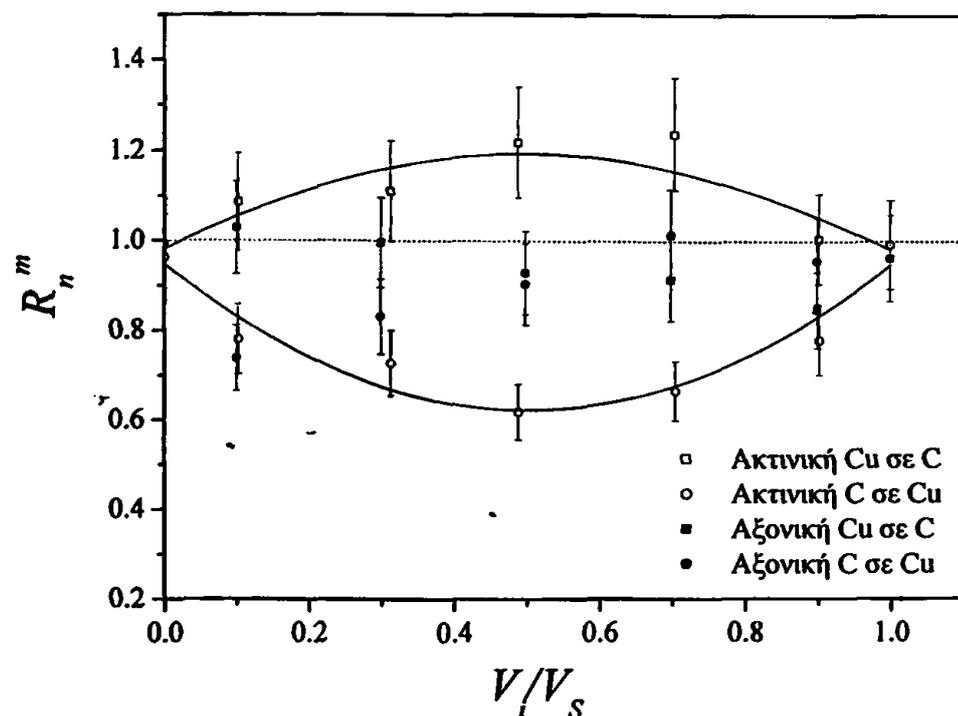
Ο Πίνακας 4-4 δίνει τον παράγοντα ανομοιογένειας R_n^i για τις έξι κατανομές χρυσού που μελετήθηκαν σε δείγμα γραφίτη και τις περιπτώσεις όπου το υπό ανάλυση ιχνοστοιχείο είναι ο χρυσός (ανομοιογενώς κατανεμημένος) είτε ένα άλλο στοιχείο που παρουσιάζει ομοιογενή κατανομή μέσα στον όγκο του δείγματος. Βρέθηκε (Πίνακας 4-4) ότι, στην περίπτωση που το υπό ανάλυση ιχνοστοιχείο είναι κάποιο στοιχείο ομοιογενώς κατανεμημένο μέσα στον όγκο του δείγματος, ο παράγοντας ανομοιογένειας R_n^i διαφέρει λίγο από τη μονάδα. Αντίθετα, όταν το στοιχείο ενδιαφέροντος είναι ο ίδιος ο χρυσός, παρατηρείται μια δραστική μείωση του σήματος βρίσκεται είτε κοντά στον άξονα συμμετρίας του δείγματος ($R_n^i = 1.6$) είτε κοντά στο κέντρο του ($R_n^i = 2.2$).



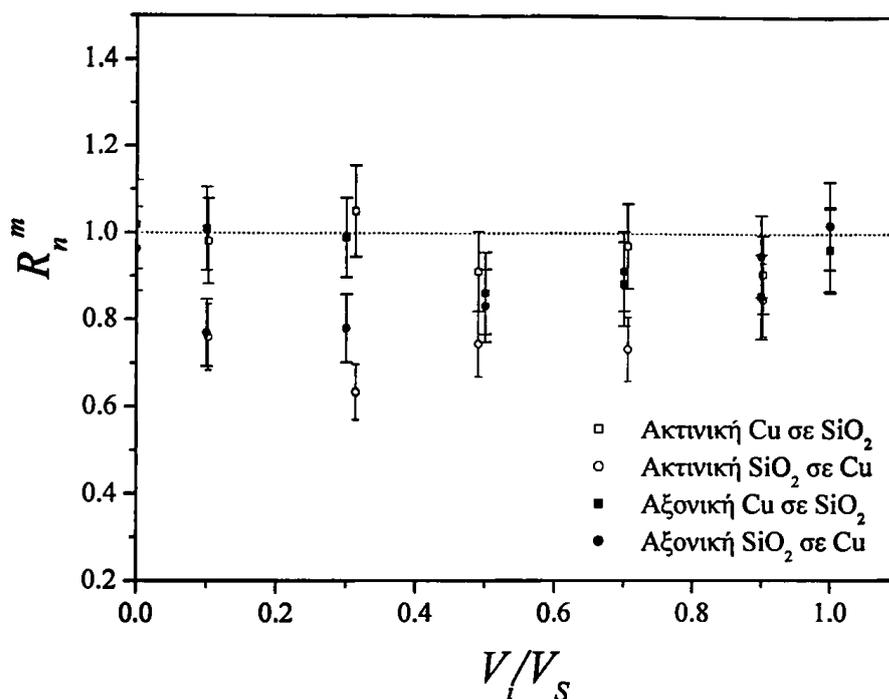
Αποτελέσματα



Σχήμα 4-16: Ο λόγος R_n^m για αξονικές και ακτινικές ανομοιογένειες σύστασης σε κυλινδρικά δείγματα. ($r_2 = 5 \text{ cm}$, $r_1 = 0.5 \text{ cm} - 4.5 \text{ cm}$ και $h = 20 \text{ cm}$) σε συνάρτηση με τον ποσοστό της ανομοιογένειας κατ' όγκο στο δείγμα, V_i/V_s για συνδυασμούς υλικών γραφίτη και SiO_2 .



Σχήμα 4-17: Ο λόγος R_n^m για αξονικές και ακτινικές ανομοιογένειες σύστασης σε κυλινδρικά δείγματα. ($r_2 = 5 \text{ cm}$, $r_1 = 0.5 \text{ cm} - 4.5 \text{ cm}$ και $h = 20 \text{ cm}$) σε συνάρτηση με τον ποσοστό της ανομοιογένειας κατ' όγκο στο δείγμα, V_i/V_s για συνδυασμούς υλικών γραφίτη και χαλκού.



Σχήμα 4-18: Ο λόγος R_n^m για αξονικές και ακτινικές ανομοιογένειες σύστασης σε κυλινδρικά δείγματα. ($r_2 = 5 \text{ cm}$, $r_1 = 0.5 \text{ cm} - 4.5 \text{ cm}$ και $h = 20 \text{ cm}$) σε συνάρτηση με τον ποσοστό της ανομοιογένειας κατ' όγκο στο δείγμα, V_i/V_s για συνδυασμούς υλικών SiO_2 και χαλκού.

Πίνακας 4-4: Τιμές του λόγου R_n^i για ανομοιογενή κατανομή χρυσού, μάζας 12 g, σε δείγμα από γραφίτη όταν το υπό ανάλυση στοιχείο είναι είτε ο χρυσός είτε κάποιο άλλο ιχνοστοιχείο ομοιογενώς κατανεμημένο μέσα στο γραφίτη

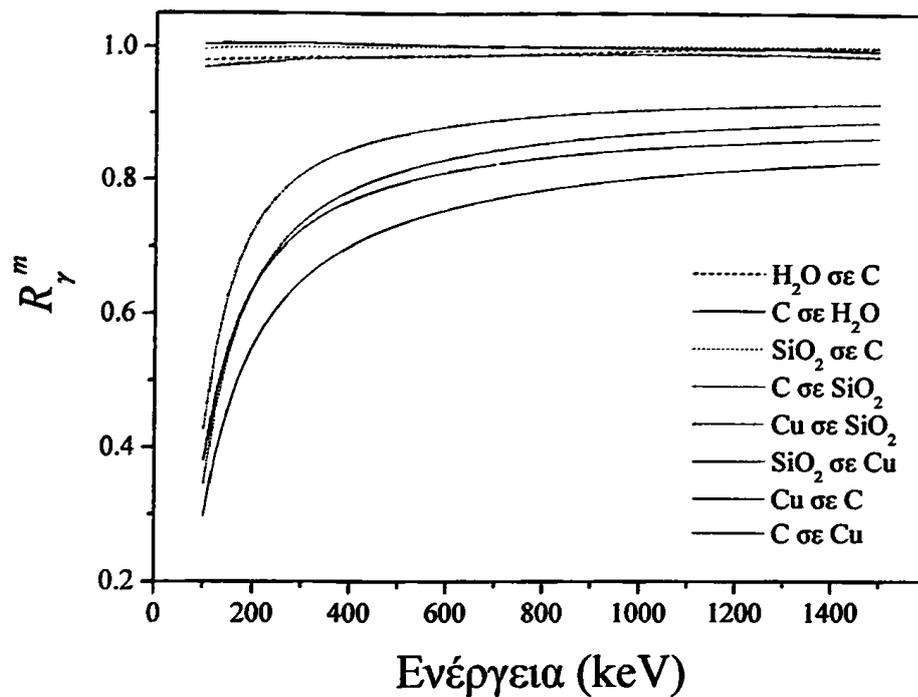
Υπό ανάλυση στοιχείο	Όλη η επιφάνεια	Κυλινδρική επιφάνεια	Κυκλική επιφάνεια	Δίσκος στο κέντρο	Σφαίρα στο κέντρο	Σύρμα στο κέντρο
χρυσός	0.975	1.00	1.10	1.14	1.60	2.21
άλλο στοιχείο	0.97	0.97	1.05	0.94	1.00	1.01

4.4.3 Ανομοιογένειες σύστασης κατά την ανίχνευση ακτίνων γ

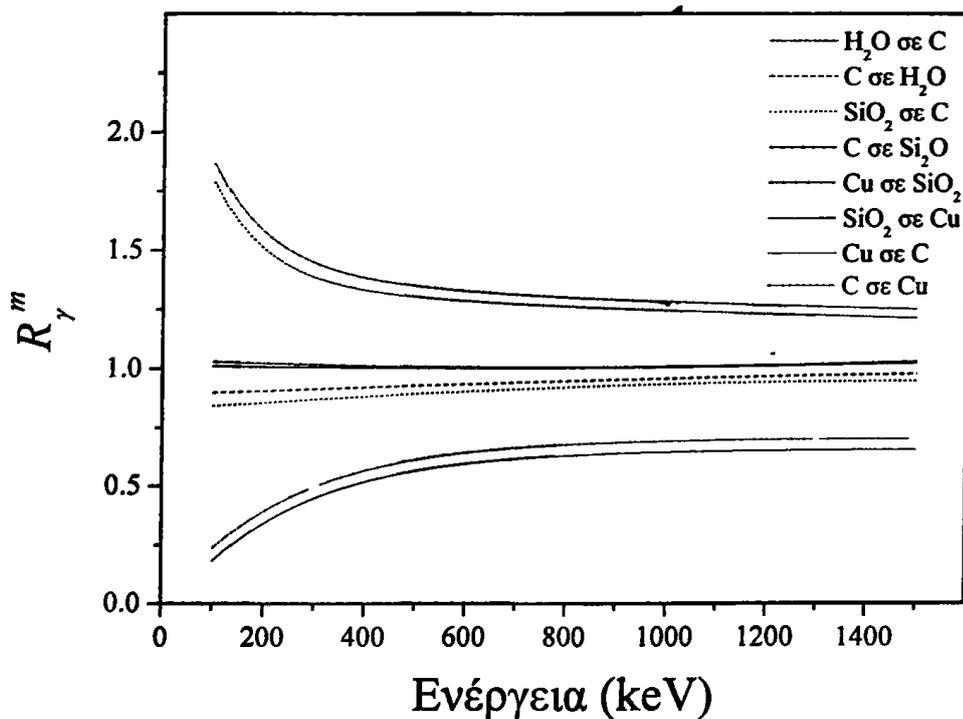
Στα Σχήματα 4-19 και 4-20 δίνεται η εξάρτηση του παράγοντα ανομοιογένειας R_γ^m για αξονικές και ακτινικές ανομοιογένειες αντίστοιχα με ποσοστό ανομοιογένειας $\sim 33\%$ ($h_2 = 6.67$ cm και $r_2 = 2.89$ cm αντίστοιχα) από την ενέργεια των ακτίνων γ .

Αξονικές ανομοιογένειες: Η επίδραση της αξονικής ανομοιογένειας αυξάνεται όσο μειώνεται η ενέργεια των ακτίνων γ (Σχήμα 4-19). Ο παράγοντας R_γ^m αποκλίνει δραστικά από τη μονάδα για υλικά με μεγάλο συντελεστή εξασθένησης, μ , όπως για παράδειγμα υλικά που περιέχουν Cu. Για τους συνδυασμούς του με γραφίτη είτε με SiO_2 , οι αποκλίσεις του R_γ^m από τη μονάδα φθάνουν το 70% για ενέργεια 100 keV και το 18% για φωτόνια ενέργειας 1.5 MeV. Αντίθετα, στους συνδυασμούς του γραφίτη με το SiO_2 , ο παράγοντας R_γ^m παρουσιάζει αποκλίσεις από τη μονάδα μικρότερες του 4%.

Ακτινικές ανομοιογένειες: Από το Σχήμα 4-20 παρατηρείται ότι η επίδραση της ακτινικής ανομοιογένειας σύστασης αυξάνεται όσο μειώνεται η ενέργεια των ακτίνων γ . Ο παράγοντας R_γ^m αποκλίνει δραστικά από τη μονάδα για υλικά με μεγάλο συντελεστή εξασθένησης ακτίνων γ , μ , όπως για παράδειγμα υλικά που περιέχουν χαλκό. Επιπλέον, όταν το υλικό με το μεγαλύτερο συντελεστή εξασθένησης βρίσκεται στο εσωτερικό του δείγματος η μέθοδος οδηγεί σε υποτίμηση των τελικών συγκεντρώσεων στο δείγμα ενώ αντίθετα η παρουσία του υλικού με υψηλό μ στο εξωτερικό του δείγματος οδηγεί σε υπερεκτίμηση. Συγκεκριμένα, για τους συνδυασμούς του γραφίτη με το SiO_2 , που μελετήθηκαν για τον παράγοντα R_γ^m , παρατηρήθηκαν αποκλίσεις από τη μονάδα μικρότερες του 20% σε ολόκληρη την περιοχή γ ενεργειών που μελετήθηκαν. Αντίθετα οι αποκλίσεις ήταν μεγάλες για τους συνδυασμούς του χαλκού είτε με το γραφίτη είτε με το SiO_2 . Έτσι ο παράγοντας R_γ^m κυμαίνεται μεταξύ 0.18 και 0.7 όταν το εσωτερικό του δείγματος αποτελείται από χαλκό στην περιοχή ενεργειών από 100 keV έως 1.5 MeV, και μεταξύ 1.88 και 1.25, όταν το εξωτερικό του δείγματος αποτελείται από χαλκό.



Σχήμα 4-19: Ο λόγος R_γ^m για αξονικές ανομοιογένειες σύστασης σε κυλινδρικά δείγματα. ($r = 5$ cm, $h_2 = 6.67$ cm ώστε $V_1/V_s = 33.3\%$) σε συνάρτηση με την ενέργεια των ακτίνων γ για 8 συνδυασμούς υλικών 1 και 2 (Σχήμα 3-6α).

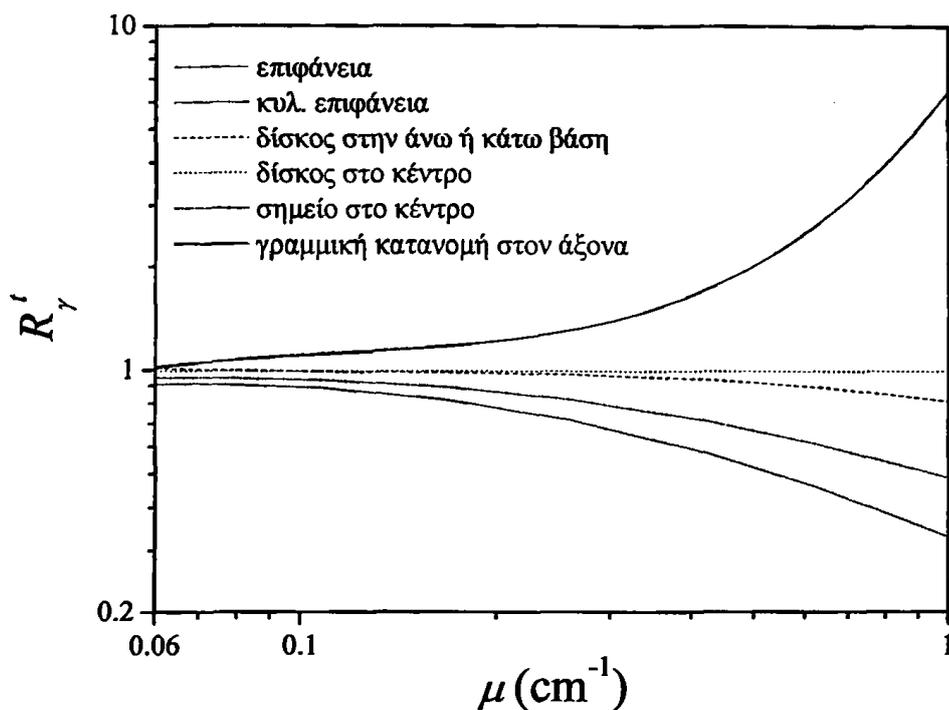


Σχήμα 4-20: Ο λόγος R_γ^m για ακτινικές ανομοιογένειες σύστασης σε κυλινδρικά δείγματα. ($r_2 = 5$ cm, $r_1 = 2.89$ cm και $h = 20$ cm ώστε $V_1/V_s = 33.4\%$) σε συνάρτηση με την ενέργεια των ακτίνων γ για 8 συνδυασμούς υλικών 1 και 2 (Σχήμα 3-6β).

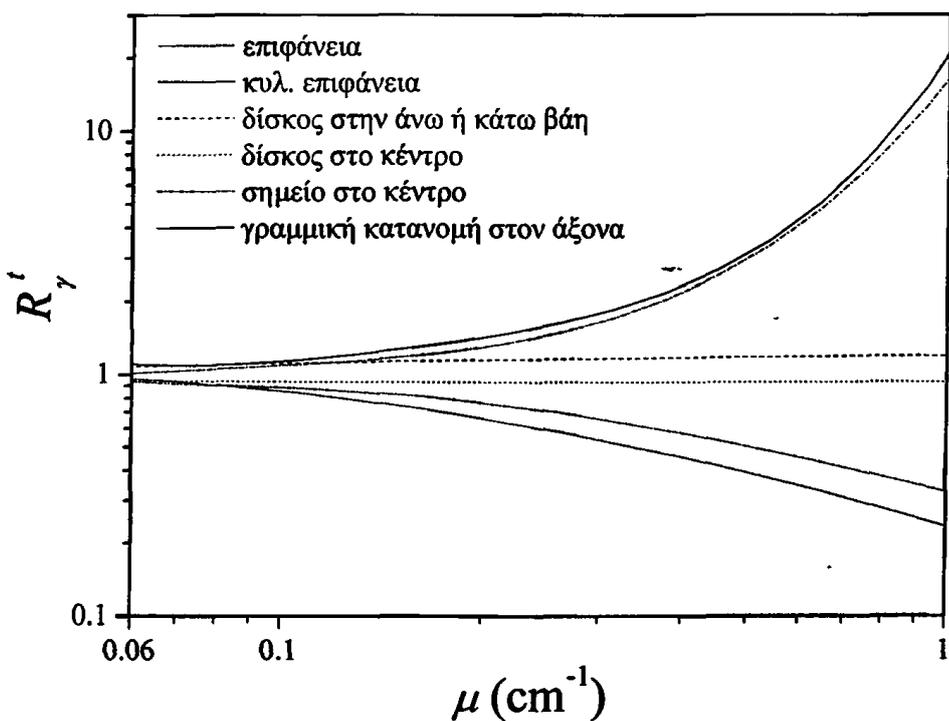
4.4.4 Ανομοιογένειες ιχνοστοιχείων κατά την ανίχνευση ακτίνων γ

Στα Σχήματα 4-21 και 4-22 φαίνεται ο παράγοντας ανομοιογένειας R'_γ , για δείγματα όγκου 250 ml και 1600 ml αντίστοιχα, σαν συνάρτηση του γραμμικού συντελεστή εξασθένησης, μ , στην περιοχή τιμών μεταξύ 0.06 cm^{-1} και 1 cm^{-1} δεδομένου ότι τιμές του μ μεγαλύτερες του 1 cm^{-1} είναι σπάνιες.

Οι καμπύλες των Σχημάτων 4-21 και 4-22 αντιπροσωπεύουν το άνω όριο του εισαγόμενου σφάλματος λόγω ανομοιογένειας των υπό ανάλυση ιχνοστοιχείων για κυλινδρικά δείγματα με γραμμικό συντελεστή εξασθένησης ακτίνων γ , μ , μεταξύ 0.06 cm^{-1} και 1 cm^{-1} και όγκο 250 ml και 1600 ml αντίστοιχα. Η πιο έντονη επίδραση στα αποτελέσματα παρατηρείται για τις περιπτώσεις όπου το υπό ανάλυση στοιχείο κατανέμεται στο εξωτερικό (ενεργότητα κατανεμημένη στην επιφάνεια ή στην κυλινδρική επιφάνεια του δείγματος) ή στον κύριο άξονα του κυλινδρικού δείγματος. Συγκεκριμένα ο συντελεστής R'_γ μειώνεται με αύξηση του μ όταν η μετρούμενη ενεργότητα κατανέμεται είτε στην επιφάνεια είτε στην κυλινδρική επιφάνεια του δείγματος ενώ αυξάνεται με αύξηση του μ όταν βρίσκεται κατά μήκος του κυρίου άξονα του δείγματος. Αντίθετα όταν το ιχνοστοιχείο κατανέμεται σε μία από τις βάσεις του κυλινδρικού δείγματος, ή σε δίσκο στο κέντρο του δείγματος η ανομοιογένεια έχει πολύ μικρή επίπτωση στα αποτελέσματα της ανάλυσης. Για τις ακραίες περιπτώσεις ανομοιογένειας που μελετήθηκαν η συγκέντρωση σε κυλινδρικά δείγματα όγκου 250 ml μπορεί να υπολογιστεί στα πλαίσια ενός παράγοντα του 1.13 και του 6.3 για υλικά με γραμμικό συντελεστή εξασθένησης 0.1 cm^{-1} και 1 cm^{-1} αντίστοιχα (βλ. Σχήμα 4-21). Σε δείγματα όγκου 1600 ml (βλ. Σχήμα 4-22), η συγκέντρωση υπολογίζεται στα πλαίσια ενός παράγοντα του 1.2 και του 20 για υλικά με γραμμικό συντελεστή εξασθένησης 0.1 cm^{-1} και 1 cm^{-1} αντίστοιχα. Ωστόσο στην πράξη αναμένονται μικρότερες τιμές του λόγου R'_γ . Οι τιμές του λόγου R'_γ από τα σχήματα 4-21 και 4-22 για παραδείγματα που μελετήθηκαν και ενδεικτικές τιμές ενέργειας ακτίνων γ φαίνονται στους Πίνακες 4-5 και 4-6 αντίστοιχα. Συγκεκριμένα το νερό και το SiO_2 επιλέχθηκαν ως αντιπροσωπευτικά υλικά ενός βιολογικού και ενός γεωλογικού δείγματος αντίστοιχα. Όπως συνάγεται από τον Πίνακα 4-5 οι συγκεντρώσεις σε δείγματα νερού και SiO_2 όγκου 250 ml μπορούν να υπολογιστούν στα πλαίσια ενός παράγοντα του 1.2 και 1.4 αντίστοιχα ενώ ο Πίνακας 4-6 δείχνει ότι για δείγματα όγκου 1600 ml αυτοί οι παράγοντες γίνονται 1.3 και 1.7 αντίστοιχα.



Σχήμα 4-21: Ο λόγος R' σαν συνάρτηση του γραμμικού συντελεστή εξασθένησης μ για έξι περιπτώσεις ανομοιογένειας ιχνοστοιχείων (βλ. Σχήμα 3-7) σε κυλινδρικά δείγματα όγκου 250 ml.



Σχήμα 4-22: Ο λόγος R' σαν συνάρτηση του γραμμικού συντελεστή εξασθένησης μ για έξι περιπτώσεις ανομοιογένειας ιχνοστοιχείων (βλ. Σχήμα 3-7) σε κυλινδρικά δείγματα όγκου 1600 ml.

Αποτελέσματα

Πίνακας 4-5: Εύρος τιμών του λόγου R'_γ για κυλινδρικά δείγματα νερού και SiO₂ όγκου 250 ml

Υλικό	Πυκνότητα (g/cm ³)	E_γ (keV)	μ (cm ⁻¹)	Εύρος τιμών R'_γ
νερό	1.0	300	0.119	0.87 – 1.12
		700	0.084	0.89 – 1.08
		1500	0.058	0.92 – 1.02
SiO ₂	2.32	300	0.250	0.71 – 1.29
		700	0.175	0.80 – 1.18
		1500	0.120	0.87 – 1.12

Πίνακας 4-6: Εύρος τιμών του λόγου R'_γ για κυλινδρικά δείγματα νερού και SiO₂ όγκου 1600 ml

Υλικό	Πυκνότητα (g/cm ³)	E_γ (keV)	μ (cm ⁻¹)	Εύρος τιμών R'_γ
νερό	1.0	300	0.119	0.80 – 1.19
		700	0.084	0.90 – 1.12
		1500	0.058	0.94 – 1.09
SiO ₂	2.32	300	0.250	0.60 – 1.58
		700	0.175	0.69 – 1.36
		1500	0.120	0.79 – 1.19

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 5

ΣΥΖΗΤΗΣΗ

Γενική συζήτηση – Ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση μεγάλων δειγμάτων (LSNAA)

5.1 ΕΙΣΑΓΩΓΗ

Ο προσδιορισμός της στοιχειακής σύστασης υλικών έχει τεράστια σημασία σε όλα σχεδόν τα πεδία της επιστήμης και της τεχνολογίας όπως για παράδειγμα σε βιοϊατρικές, περιβαλλοντικές, γεωλογικές και αρχαιολογικές εφαρμογές, στον ποιοτικό έλεγχο τροφίμων, αγροτικών και βιομηχανικών προϊόντων καθώς επίσης και στον τομέα διαχείρισης καταλοίπων.

Η ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση διαθέτει σημαντικό πλεονέκτημα όσον αφορά την ευαισθησία της, έναντι των άλλων αναλυτικών τεχνικών, λόγω της υψηλής τιμής της ενεργού διατομής ενεργοποίησης μεγάλου αριθμού στοιχείων και της δυνατότητας πολύ-στοιχειακής ανάλυσης ενός δείγματος. Επιπλέον, η ΕΑΝΕ είναι μη καταστροφική τεχνική και δεν απαιτεί προετοιμασία του δείγματος. Επομένως εξαλείφονται προβλήματα που αντιμετωπίζουν άλλες αναλυτικές τεχνικές, όπως η ανεπαρκής ομογενοποίηση, η ρύπανση και η απώλεια στοιχείων κατά τη διαδικασία προετοιμασίας του δείγματος. Τέλος, ο ισοτοπικός χαρακτήρας της ανάλυσης εφοδιάζει την ΑΝΕ με μεθόδους αυτό-αξιολόγησης ως προς το αναλυτικό της αποτέλεσμα. Ένα ακόμη σημαντικό πλεονέκτημα της ΑΝΕ, έναντι των άλλων αναλυτικών μεθόδων, είναι η δυνατότητα



ανάλυσης δειγμάτων μεγάλου όγκου ($V > 0.5 \text{ L}$), καθώς το μέσο μήκος διαδρομής των νετρονίων και των φωτονίων στα υλικά είναι της τάξης των εκατοστών.

Ο ποσοτικός προσδιορισμός των στοιχειακών συγκεντρώσεων σε δείγματα μεγάλου όγκου προϋποθέτει την εφαρμογή μεθόδων διόρθωσης για τα φαινόμενα της εξασθένησης των νετρονίων και ακτίνων γ που υπεισέρχονται στη διαδικασία της ανάλυσης. Πιο συγκεκριμένα, οι απαιτούμενες διορθώσεις περιλαμβάνουν: (α) διόρθωση για τη διαταραχή του πεδίου νετρονίων, την αυτο-απορρόφηση των θερμικών νετρονίων μέσα στο δείγμα και τα φαινόμενα επιβράδυνσής τους στο μεγάλο δείγμα (β) διόρθωση για την εξασθένηση των ακτίνων γ μέσα στο δείγμα και την χωρική κατανομή της ενεργότητας σε σχέση με τη γεωμετρία σημειακής πηγής. Δύο επιπλέον παράμετροι που πρέπει να ληφθούν υπόψη κατά την EANE μεγάλων δειγμάτων είναι (α) η εφαρμογή διόρθωσης για την παρουσία του υδρογόνου στο δείγμα (στοιχείο που σκεδάζει έντονα τα νετρόνια) και (β) η εισαγωγή σφάλματος στην ανάλυση λόγω της επίδρασης πιθανών ανομοιογενειών του δείγματος.

Σημειώνεται ότι ισχυρό περιορισμό της εφαρμογής της EANE αποτελεί η απαίτηση χρήσης πυρηνικού αντιδραστήρα.

5.2 ΜΕΘΟΔΟΣ ΔΙΟΡΘΩΣΗΣ ΓΙΑ ΤΗΝ ΑΥΤΟ-ΑΠΟΡΡΟΦΗΣΗ ΝΕΤΡΟΝΙΩΝ

Η εισαγωγή ενός μεγάλου δείγματος στη θέση ακτινοβολήσής έχει σαν συνέπεια την πρόκληση διαταραχής του πεδίου νετρονίων τόσο μέσα στο δείγμα όσο και στο μέσο που το περιβάλλει λόγω σκέδασης και αυτο-απορρόφησης νετρονίων από το υλικό του δείγματος. Για τον προσδιορισμό της κατανομής της ροής θερμικών νετρονίων στο δείγμα, οι Overwater και Hoogenboom [1994] πρότειναν τη λύση της εξίσωσης διάχυσης για τη γεωμετρία της διάταξης ακτινοβολήσης. Η λύση της εξίσωσης δίνει την κατανομή της ροής των θερμικών νετρονίων σε δύο διαστάσεις υπό την προϋπόθεση ότι η σύσταση του δείγματος είναι γνωστή και συνεπώς οι μέσες τιμές του μήκους, L , και της σταθεράς διάχυσης, D , μπορούν να υπολογιστούν. Στην περίπτωση δείγματος άγνωστης σύστασης ο προσδιορισμός των παραμέτρων L και D γίνεται με τη βοήθεια μέτρησης της σχετικής ροής νετρονίων σε τουλάχιστον δύο σημεία της εξωτερικής επιφάνειας του αγνώστου δείγματος ως προς τη ροή αναφοράς στις ίδιες θέσεις για δείγμα από γραφίτη παρόμοιων διαστάσεων. Η αναλυτική λύση χρησιμοποιεί ως αρχικές τιμές των παραμέτρων L και D τις τιμές του γραφίτη και στη συνέχεια με τη μέθοδο της μη γραμμικής προσαρμογής ελαχίστων τετραγώνων εξάγονται οι τιμές για τα L και D που δίνουν την καλύτερη σύμπτωση με τις πειραματικά προσδιοριζόμενες τιμές της ροής στην επιφάνεια του δείγματος. Η διαδικασία επαναλαμβάνεται για διάφορα επίπεδα καθ' ύψος του δείγματος.

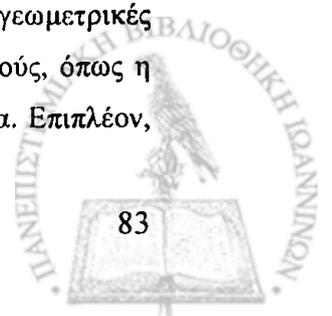


Συζήτηση

Στην παρούσα εργασία, η μελέτη του πεδίου θερμικών νετρονίων στη θέση ακτινοβόλησης και ο υπολογισμός του συντελεστή διόρθωσης της αυτό-απορρόφησης νετρονίων έγινε μέσω εξομοίωσης της πειραματικής διάταξης με τη μέθοδο Monte Carlo. Τα αποτελέσματα της παραγράφου 4.1.1 (Σχήματα 4-1 και 4-3) υποδεικνύουν ότι το μοντέλο της καρδιάς και της θερμικής στήλης του αντιδραστήρα που χρησιμοποιήθηκε είχε τη δυνατότητα να προβλέψει ικανοποιητικά την κατανομή ροής θερμικών νετρονίων στη στήλη του γραφίτη καθώς και τη διαταραχή του πεδίου νετρονίων λόγω της παρουσίας δείγματος μεγάλου όγκου. Οι συντελεστές f_n που υπολογίστηκαν εκφράστηκαν με ενιαίο τρόπο για όλα τα μεγέθη και τους τύπους των δειγμάτων σε σχέση με την αδιάστατη μεταβλητή $x_0 = r \cdot h / [(r + h) \cdot L]$ και συνέστησαν με τον τρόπο αυτό μία ημι-εμπειρική γενική καμπύλη βαθμονόμησης για δείγματα γνωστής μακροσκοπικής σύστασης (Σχήμα 4-4) για ένα μεγάλο εύρος τιμών της μακροσκοπικής ενεργού διατομής απορρόφησης των δειγμάτων (0.002 cm^{-1} ως 24 cm^{-1}) και λόγων των διατομών σκέδασης προς τις συνολικές (0.01 ως 0.98). Η χρήση της ημι-εμπειρικής καμπύλης που βρέθηκε ενδείκνυται στην περιοχή $0.1 \leq x_0 \leq 15$.

Για τη γενική περίπτωση άγνωστης σύστασης δείγματος, αναπτύχθηκε μια ημι-εμπειρική μέθοδος προσδιορισμού του συντελεστή f_n (παράγραφος 4.1.2.2). Η μέθοδος βασίζεται σε μετρήσεις ροής θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος και της ροής αναφοράς στην περιοχή του δείγματος πριν την ακτινοβόληση. Ο προσδιορισμός των συντελεστών διόρθωσης γίνεται από καμπύλες βαθμονόμησης που προκύπτουν υπολογιστικά για κάθε μέγεθος δείγματος. Αναπτύχθηκαν καμπύλες βαθμονόμησης για τους συντελεστές διαταραχής του πεδίου θερμικών νετρονίων, h_n , g_n και f_n , που αντιστοιχούν σε κυλινδρικά δείγματα με $r \cdot h / (r + h)$ ίσο με 2.3, 4.0 και 7.5 cm. Ωστόσο οι υπολογισμοί μπορούν εύκολα να επεκταθούν ώστε να καλύψουν επιπλέον ανάγκες εφαρμογών ως προς το σχήμα και το μέγεθος των δειγμάτων. Τα φαινόμενα επιβράδυνσης των νετρονίων μέσα στο δείγμα μπορούν να αγνοηθούν εφόσον το ποσοστό των επιθερμικών νετρονίων στη θέση ακτινοβόλησης είναι πολύ μικρό ($\sim 0.4\%$).

Η μέθοδος διόρθωσης για την αυτό-απορρόφηση των νετρονίων που παρουσιάστηκε στην παρούσα εργασία μοιάζει κατ' αρχήν με τη μέθοδο που προτάθηκε από τους Overwater και Hoogenboom [1994], και εφαρμόζεται στη διάταξη του IRI, στο Delft της Ολλανδίας, για την ανάλυση μεγάλων δειγμάτων. Και οι δύο τεχνικές βασίζονται στη μέτρηση της ροής θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος και την εξαγωγή κατάλληλων συντελεστών διόρθωσης της αυτό-απορρόφησης νετρονίων. Ωστόσο, η αναλυτική λύση της εξίσωσης διάχυσης για τις γεωμετρικές παραμέτρους του δείγματος που χρησιμοποιείται στο IRI εισάγει ορισμένους περιορισμούς, όπως η προϋπόθεση ιστροπικού πεδίου ροής και πλήθους γεγονότων σκέδασης μέσα στο δείγμα. Επιπλέον,



η εφαρμογή της λύσης της εξίσωσης διάχυσης σε δύο διαστάσεις προϋποθέτει ότι η διαρροή νετρονίων κατά τη τρίτη διάσταση μπορεί να θεωρηθεί αμελητέα. Οι υπολογισμοί όμως των Overwater και Hoogenboom [1994], για την κατανομή της ροής των νετρονίων σε τρεις διαστάσεις, έδειξαν ότι η ροή στο πίσω μέρος του δείγματος είναι αυξημένη, σε σχέση με αυτή της δισδιάστατης λύσης, λόγω της διαρροής από την πάνω και κάτω πλευρά του δείγματος (z διάσταση). Το γεγονός αυτό έχει σαν αποτέλεσμα την εισαγωγή σφάλματος [Overwater 1994]. Επιπλέον, η θεωρία διάχυσης μπορεί να εφαρμοστεί μόνο στις περιπτώσεις υλικών τα οποία δεν έχουν ισχυρά απορροφητικές ιδιότητες ως προς τα νετρόνια [Meghreblian και Holmes 1960].

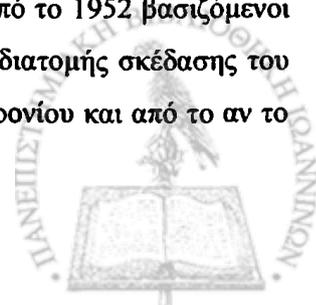
Η μέθοδος που αναπτύχθηκε στην παρούσα εργασία για τη διόρθωση της αυτό-απορρόφησης θερμικών νετρονίων κατά την ακτινοβόληση μεγάλων δειγμάτων σε σχέση με τη μέθοδο του IRI Delft, διαθέτει τα εξής πλεονεκτήματα:

- Καλύτερη αναπαραγωγή-προσέγγιση του πραγματικού πεδίου νετρονίων κατά την ακτινοβόληση του δείγματος.
- Ευελιξία στην περιγραφή της τρισδιάστατης γεωμετρίας του δείγματος που παρέχει ο κώδικας Monte Carlo.
- Δυνατότητα επέκτασης του εύρους των δυνατών υλικών και σε υλικά που απορροφούν θερμικά νετρόνια.

Επιπλέον είναι μία μέθοδος η οποία είναι ανεξάρτητη από την ισχύ του αντιδραστήρα και δεν απαιτεί την εξ' αρχής γνώση της σύστασης. Ωστόσο, για να εφαρμοστούν οι καμπύλες βαθμονόμησης σε δείγμα άγνωστης σύστασης, απαιτείται εκ των προτέρων η πληροφορία για το αν το δείγμα περιέχει υδρογόνο.

5.3 ΥΔΡΟΓΟΝΟΥΧΑ ΔΕΙΓΜΑΤΑ

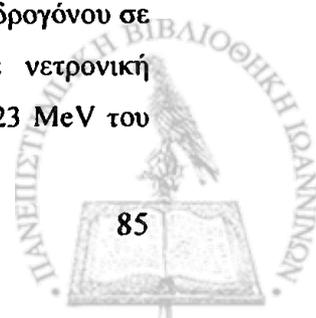
Κατά τη μελέτη της διαταραχής του πεδίου νετρονίων από την παρουσία υδρογόνου σε ένα δείγμα παρατηρήθηκε ότι για ορισμένα υδρογονούχα δείγματα δεν ισχύουν οι καμπύλες βαθμονόμησης δειγμάτων άγνωστης σύστασης. Άρα στην περίπτωση αυτή είναι απαραίτητο να ληφθεί ειδική μέριμνα. Το φαινόμενο αυτό έχει αναφερθεί κι από άλλους ερευνητές και έχει συσχετιστεί με την υψηλή διατομή σκέδασης νετρονίων στο υδρογόνο. Το μέγεθος του σφάλματος εξαρτάται από το μέγεθος του δείγματος, από το αν το υδρογόνο είναι ελεύθερο ή συνδεδεμένο στο μόριο υλικού και από την ενεργειακή κατανομή των νετρονίων. Οι Glastone και Edlund ήδη από το 1952 βασιζόμενοι και σε πειραματικά δεδομένα, αναφέρουν τιμές της μικροσκοπικής ενεργού διατομής σκέδασης του υδρογόνου μεταξύ 20 και 80 barns που εξαρτώνται από την ενέργεια του νετρονίου και από το αν το



Συζήτηση

υδρογόνο είναι ελεύθερο ή χημικά συνδεδεμένο σε ένα μόριο. Παρόμοια οι Dede και συν. [1995] βρήκαν ότι οι χημικοί δεσμοί επιδρούν ισχυρά στις ιδιότητες σκέδασης στη θερμική περιοχή ενός μέσου που περιέχει ελαφρά στοιχεία όπως το υδρογόνο. Παρόμοια ο Drozdowicz [1998] επισημαίνει τα σοβαρά προβλήματα που μπορούν να προκύψουν αν κατά τη χρήση των ενεργών διατομών του υδρογόνου δεν ληφθεί υπόψη η χημική σύνδεσή του στο μέσο. Επιπλέον οι Copley και Stone [1989] έδειξαν με υπολογισμούς Monte Carlo ότι η μέση διαδρομή των νετρονίων σε ένα σκεδαστή είναι δυνατόν να αυξηθεί ή να μειωθεί λόγω σκέδασης ανάλογα προς το σχήμα του μέσου. Οι Trubert και συν. [1991], αναφέρουν σφάλματα έως και 18 % στην ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση δειγμάτων όγκου 20 cm^3 , αν αγνοηθεί η επίδραση του υδρογόνου. Οι Blaauw και Mackey [1997] αναφέρουν ότι υφίσταται μια μη γραμμική σχέση μεταξύ της νετρονικής πυκνότητας μέσα σε ένα υλικό και της συγκέντρωσης του υδρογόνου (υπό την έννοια της μακροσκοπικής ενεργού διατομής σκέδασης) σε αυτό. Ωστόσο η εργασία τους αναφέρεται σε δείγματα μικρότερου μεγέθους από αυτά που μελετώνται στη παρούσα εργασία.

Στην παρούσα εργασία, εξετάστηκε η επίδραση του υδρογόνου στον διορθωτικό συντελεστή αυτό-απορρόφησης, f_n , για ομογενή μίγματα νερού με γραφίτη και πολυαιθυλενίου με γραφίτη σε συνάρτηση με το ποσοστό του υδρογόνου του δείγματος, για διάφορα μεγέθη δειγμάτων (Σχήματα 4-9 και 4-10). Βρέθηκε ότι το σφάλμα στην εκτίμηση του διορθωτικού συντελεστή f_n , αυξάνεται με την αύξηση της περιεκτικότητας του δείγματος σε υδρογόνο και επιπλέον η έκταση του φαινομένου εξαρτάται από το μέγεθος του δείγματος. Συγκεκριμένα, αν η παρουσία του υδρογόνου σε ένα δείγμα δε ληφθεί υπόψη, η μέθοδος διόρθωσης για τα δείγματα άγνωστης σύστασης, οδηγεί σε υπερεκτίμηση του συντελεστή διόρθωσης f_n και συνεπώς σε υποτίμηση της συγκέντρωσης των στοιχείων στο δείγμα. Η υποτίμηση αυτή είναι της τάξης του 5 - 10 % για μικρά μεγέθη δειγμάτων, για παράδειγμα δείγματα με $l = 2.3 \text{ cm}$, ή δείγματα με χαμηλή περιεκτικότητα σε υδρογόνο, όπως είναι για παράδειγμα δείγμα φλοιώδους οστίτη ιστού (cortical bone) που έχει συγκέντρωση υδρογόνου 3.4 % [ICRU-44 1989] και ίσως να μπορούσε να αγνοηθεί. Δεν ισχύει όμως το ίδιο για μεγαλύτερα δείγματα ή δείγματα με υψηλή περιεκτικότητα σε υδρογόνο, για παράδειγμα δείγμα λίπους ή μαλακού ιστού με ποσοστό υδρογόνου 0.112 και 0.102 αντίστοιχα [ICRU-44 1989] για τα οποία η απόκλιση μπορεί να φθάσει και 45 % σε δείγματα ακτίνας $r = 10 \text{ cm}$ και ύψους $h = 30 \text{ cm}$ ($l = 7.5 \text{ cm}$). Σ' αυτές τις περιπτώσεις οι καμπύλες που προκύπτουν υπολογιστικά μπορούν να εφαρμοστούν σε υδρογονούχα δείγματα για τη διόρθωση του συντελεστή f_n με βάση το μέγεθος του δείγματος και τη γνώση της περιεκτικότητάς του σε υδρογόνο. Ως μέθοδος προσδιορισμού της περιεκτικότητας του υδρογόνου σε ένα μεγάλο δείγμα προτείνεται να χρησιμοποιηθεί η τεχνική της ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση των ακαριαίων ακτίνων γ μέσω της ανάλυσης της φωτοκορυφής των 2.223 MeV του



υδρογόνου στο φάσμα των άμεσα εκπεμπόμενων ακτίνων γ . Διάταξη ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση των ακαριαίων ακτίνων γ μεγάλων δειγμάτων έχει ήδη αναπτυχθεί στο εργαστήριο του ερευνητικού αντιδραστήρα του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος» [Stamatelatos και συν. 2004, Kasviki και συν. 2004]. Εναλλακτικά μπορούν να χρησιμοποιηθούν εξωτερικά πρότυπα που προετοιμάζονται έτσι ώστε να αντιπροσωπεύουν τα υπό ανάλυση υλικά.

5.4 ΜΕΘΟΔΟΣ ΔΙΟΡΘΩΣΗΣ ΓΙΑ ΤΗ ΓΕΩΜΕΤΡΙΑ ΤΗΣ ΠΗΓΗΣ ΚΑΙ ΤΗΝ ΕΞΑΣΘΕΝΗΣΗ ΑΚΤΙΝΩΝ γ

Κατά τη γ φασματοσκοπία δειγμάτων μεγάλου όγκου συμβαίνουν δύο φαινόμενα που μπορεί να οδηγήσουν σε εσφαλμένη εκτίμηση των φωτοκορυφών του μετρούμενου φάσματος. Οι ακτίνες γ που ανιχνεύονται έχουν ήδη υποστεί εξασθένηση μέσα στο υλικό του δείγματος με αποτέλεσμα να μεταβληθούν οι λόγοι των εντάσεων μεταξύ των διαφόρων φωτοκορυφών λόγω της εξάρτησης της εξασθένησης από την ενέργεια. Το ποσοστό των ακτίνων γ που απορροφούνται από το υλικό του δείγματος εξαρτάται από το γραμμικό συντελεστή εξασθένησης του υλικού μ και από τις διαστάσεις του δείγματος. Επιπλέον, η απόκριση του ανιχνευτή διαφέρει για φωτόνια που εκπέμπονται από διαφορετικά σημεία μέσα στον όγκο του δείγματος.

Για τη διόρθωση αυτών των φαινομένων έχουν προταθεί διάφορες μέθοδοι δεδομένου ότι η χρήση βαθμονομημένων πηγών όγκου είναι πρακτικά αδύνατη εξαιτίας του μεγάλου αριθμού των προτύπων που απαιτούνται για να καλύψουν το εύρος των αναγκών της ΕΑΝΕ μεγάλων δειγμάτων. Για την αυτο-απορρόφηση των ακτίνων γ έχουν αναπτυχθεί μέθοδοι διόρθωσης μέσω αναλυτικής επίλυσης για παράλληλη ακτινοβολία πηγής [Dixon 1951, Dickens 1972], ή με υπολογισμούς Monte Carlo για διαστάσεις πηγής μικρότερες από τις διαστάσεις του ανιχνευτή [Zikovsky 1984]. Οι μέθοδοι αυτές είναι όμως εξειδικευμένες και δεν μπορούν να εφαρμοστούν σε γενικότερη κλίμακα.

Ο Taczanowski [1977] μελέτησε την εξασθένηση νετρονίων και φωτονίων με ακτινοβόληση σε νετρόνια ενέργειας 14 MeV. Ο περιορισμός που θέτει το μοντέλο του είναι ότι τα φωτόνια εισέρχονται στον ανιχνευτή μόνο από τη μετωπική του επιφάνεια ενώ τα υλικά που περιβάλλουν τον ανιχνευτή δεν υπεισέρχονται στους υπολογισμούς. Η μέθοδος είναι εφαρμόσιμη μόνο σε πηγές με μεγαλύτερες από τον ανιχνευτή διαστάσεις, και μόνο όταν το παράθυρο του ανιχνευτή περιορίζεται με τη χρήση κατευθυντήρα. Από την άλλη μεριά οι Noguchi και συν. [1981] πρότειναν μια εμπειρική σχέση μεταξύ της απόδοσης φωτοκορυφής και των καρτεσιανών συντεταγμένων x , y , z , βασισμένοι σε πειραματικές μετρήσεις της απόδοσης γύρω από τον ανιχνευτή.



Συζήτηση

Οι Bode και συν. [1981] ανέπτυξαν μια ημι-εμπειρική μέθοδο η οποία μπορεί να χρησιμοποιηθεί στη φασματοσκοπία χαμηλών ενεργειών γ . Η μέθοδος βασίζεται στο λόγο των σχετικών εντάσεων μεταξύ ζευγών ενεργειών φωτονίων που εκπέμπονται από το ίδιο ραδιονουκλίδιο. Η μεταβολή της σχετικής έντασης των ανιχνευόμενων ακτίνων γ αποδίδεται στη διαφορετική εξασθένηση μέσα στο υλικό. Η χρήση της μεθόδου δεν ενδείκνυται για ραδιονουκλίδια που εκπέμπουν κυρίως υψηλής ενέργειας ακτίνες γ , και είναι αδύνατη στις περιπτώσεις ραδιονουκλιδίων που εκπέμπουν φωτόνια μόνο μιας ενέργειας.

Οι Jaegers και Landsberger [1990] πρότειναν μέθοδο η οποία βασίζεται σε μαθηματικούς υπολογισμούς με τη βοήθεια του υπολογιστικού κώδικα SELFABS που αναπτύχθηκε για το συγκεκριμένο σκοπό. Ο κώδικας προϋποθέτει την εισαγωγή στοιχείων που αφορούν τη γεωμετρία, τις διαστάσεις και τη μάζα του δείγματος αλλά και το ατομικό αριθμό και τις κατά βάρος περιεκτικότητες των κυριοτέρων στοιχείων του δείγματος. Η αρχική τους υπόθεση ήταν ότι οι ακτίνες γ προσπίπτουν στη επιφάνεια του ανιχνευτή με διεύθυνση κάθετη προς αυτή. Μια τέτοια υπόθεση είναι βάσιμη μόνο αν η πηγή έχει αμελητέες διαστάσεις σε σύγκριση με αυτές του ανιχνευτή ή αν η απόσταση πηγής-ανιχνευτή είναι μεγάλη σε σχέση με τις διαστάσεις της πηγής. Αντίθετα, αν οι διαστάσεις της πηγής είναι συγκρίσιμες ή μεγαλύτερες από αυτές του ανιχνευτή σημαντικά σφάλματα μπορεί να εισαχθούν στους υπολογισμούς.

Για πηγές μεγαλύτερων διατάσεων από τη διάμετρο του κρυστάλλου του ανιχνευτή ο Zikonsky [1989] υπολόγισε τη διόρθωση της εξασθένησης των ακτίνων γ στο δείγμα και της απόδοσης του ανιχνευτή γεωμετρίας Marinelli. Στην εργασία αυτή χρησιμοποιήθηκαν δύο ανεξάρτητες συναρτήσεις της απόδοσης: μία για τις ακτίνες γ που μπαίνουν στον ανιχνευτή από τη μετωπική του επιφάνεια και μία για εκείνες που εισέρχονται από το πλευρικό κυλινδρικό του τοίχωμα. Το μοντέλο του Zikonsky δίνει τη δυνατότητα επιλογής του όγκου και της πυκνότητας της πηγής αλλά όχι της σύστασης του υλικού.

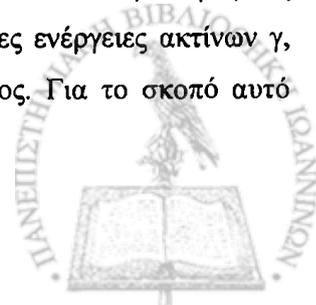
Ο Galloway [1991] πρότεινε μια ημι-εμπειρική μέθοδο υπολογισμού των διορθώσεων αυτο-απορρόφησης η οποία διορθώνει για την αυτό-εξασθένηση και για την αλλαγή της στερεάς γωνίας που ορίζεται από την επιφάνεια του κρυστάλλου και το κάθε σημείο μέσα στον όγκο της πηγής. Η μέθοδος αυτή απαιτεί η διάμετρος της πηγής να είναι μικρότερη από αυτή του ανιχνευτή και η πηγή να τοποθετείται ομοαξονικά προς τον ανιχνευτή. Για ομοαξονική γεωμετρία πηγής-ανιχνευτή και διάμετρο πηγής που δεν υπερβαίνει τη διάμετρο του ανιχνευτή έχουν γίνει υπολογισμοί των διορθώσεων αυτο-απορρόφησης σε πηγές όγκου και με τη μέθοδο Monte Carlo [Nakamura 1972, 1975, Nakamura και συν. 1983].

Οι Overwater και συν. [1993] πρότειναν τη χρήση συντελεστών διόρθωσης που προκύπτουν από τη σύγκριση της απόδοσης του ανιχνευτή για πηγή όγκου και για σημειακή πηγή. Η πηγή όγκου θεωρείται ότι συνίσταται από σειρά σημειακών πηγών και η απόδοση του ανιχνευτή για εκτεταμένη πηγή προκύπτει από την ολοκλήρωση της συνάρτησης της απόδοσης σε όλο τον όγκο του δείγματος αφού συμπεριληφθούν οι όροι που περιγράφουν την εξασθένηση των ακτίνων γ μέσα στο υλικό και την αλλαγή της στερεάς γωνίας για κάθε θέση μέσα στον όγκο της πηγής. Η προσομοίωση με τεχνική Monte Carlo καθιστά πιο ευέλικτο τον υπολογισμό της χωρικής συνάρτησης της απόδοσης φωτοκορυφής και ως εκ τούτου και τον προσδιορισμό των αντίστοιχων συντελεστών διόρθωσης αν ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης ακτίνων γ προσδιοριστεί πειραματικά με μετρήσεις διέλευσης για τις ενέργειες ενδιαφέροντος. Η μέθοδος στη συνέχεια εξελίχθηκε ώστε να επιτρέψει τη διεξαγωγή μετρήσεων σάρωσης με τη χρήση κατευθυντήρα. Στην περίπτωση αυτή προέκυψαν αποτελέσματα για κάθε ανεξάρτητο στοιχείο όγκου [Blaauw και συν. 2003].

Αντίστοιχοι υπολογισμοί διορθώσεων εξασθένησης ακτίνων γ έχουν γίνει για πολύ μεγαλύτερες πηγές όπως είναι τα βαρέλια ραδιενεργών καταλοίπων όγκου ως και 0.2 m^3 [Dung 1998, Dinescu και συν. 2002]. Ωστόσο πρέπει να τονιστεί ότι στις εφαρμογές αυτές ενδιαφέρουν μόνο συγκεκριμένα ραδιονουκλίδια και επομένως απαιτείται περιορισμένη βαθμονόμηση που αφορά τη συγκεκριμένη ενέργεια. Ο προσδιορισμός των συντελεστών εξασθένησης γίνεται συνήθως με σάρωση του βαρελιού ενώ οι διορθώσεις είναι εμπειρικής φύσεως και ως εκ τούτου μη προσαρμόσιμες στις ανάγκες της EANE.

Οι εν λόγω μέθοδοι με εξαίρεση αυτή του Overwater και συν. [1993], είναι είτε ανεπαρκείς ή περιορισμένης εφαρμογής. Στα πλαίσια της παρούσας εργασίας εξετάστηκε μια νέα προσέγγιση της διόρθωσης, της αυτό-απορρόφησης ακτίνων γ και της απόδοσης του ανιχνευτή που βασίζεται στη χρήση του κώδικα MCNP-4C. Βρέθηκε ότι το μοντέλο του ανιχνευτή προβλέπει ικανοποιητικά τη συνάρτηση της απόδοσης του ανιχνευτή για σημειακή πηγή στον άξονά του, ως προς την ενέργεια των ακτίνων γ αλλά και ως προς την απόσταση από την επιφάνειά του. Τα αποτελέσματα των υπολογισμών ελέγχθηκαν σε σχέση με πειραματικές μετρήσεις της απόδοσης του ανιχνευτή για αντιπροσωπευτικές ενέργειες ακτίνων γ που εκπέμπει σημειακή πηγή τοποθετημένη σε απόσταση έως $\pm 12 \text{ cm}$ από τον άξονα του ανιχνευτή και βρέθηκαν σε συμφωνία με αυτές εντός $\pm 3 \%$ (παράγραφος 4.2.3).

Η μέθοδος διόρθωσης για την απόδοση του ανιχνευτή και τη εξασθένηση των ακτίνων γ βασίστηκε στη σύγκριση των μετρήσεων της ίδιας ενεργότητας όταν αυτή βρίσκεται συγκεντρωμένη σε ένα σημείο και όταν κατανέμεται ομοιόμορφα σε έναν όγκο για διάφορες ενέργειες ακτίνων γ , διαστάσεις πηγής όγκου, αποστάσεις πηγής – ανιχνευτή και υλικά δείγματος. Για το σκοπό αυτό



Συζήτηση

υπολογίστηκε ο συντελεστής διόρθωσης f_r , ο οποίος ισούται με το λόγο της απόδοσης του ανιχνευτή για πηγή όγκου προς την απόδοση για σημειακή πηγή στον αέρα και τοποθετημένη στο γεωμετρικό κέντρο του μεγάλου δείγματος.

Στην περίπτωση υλικού γνωστής σύστασης, το μοντέλο του ανιχνευτή μπορεί να χρησιμοποιηθεί απευθείας για τον υπολογισμό του συντελεστή f_r . Στην περίπτωση που δεν υπάρχουν στοιχεία για τη σύσταση του υπό ανάλυση δείγματος τα αποτελέσματα των υπολογισμών χρησιμοποιήθηκαν ως βάση δεδομένων για την εξαγωγή καμπύλης βαθμονόμησης του συντελεστή f_r σε σχέση με τις διαστάσεις και το υλικό του δείγματος. Η καμπύλη βαθμονόμησης είναι διαφορετική για κάθε απόσταση πηγής – επιφάνειας ανιχνευτή και προέκυψε από τη συσχέτιση του συντελεστή διόρθωσης f_r , με μια αδιάστατη μεταβλητή $\mu \cdot r \cdot h / [(r + h)]$ η οποία εμπεριέχει τις διαστάσεις του κυλινδρικού δείγματος r και h καθώς και τον γραμμικό συντελεστή εξασθένησης $\mu(E_\gamma)$ του υλικού.

Όταν η κύρια σύσταση του δείγματος είναι γνωστή ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης του υλικού μ μπορεί να προσδιοριστεί από τιμές της βιβλιογραφίας [Hubbel και Seltzer, 1995]. Στη γενική περίπτωση όπου η σύσταση του υλικού δεν είναι γνωστή εκ των προτέρων ο προσδιορισμός του συντελεστή $\mu(E_\gamma)$ γίνεται πειραματικά με μετρήσεις διέλευσης ακτίνων γ , που εκπέμπονται μέσω κατευθυντήρα από πολύ-ενεργειακή πηγή φωτονίων (π.χ. ^{152}Eu), μέσα από το υλικό του δείγματος για την περιοχή ενεργειών ενδιαφέροντος. Ο συντελεστής f_r δεν είναι ιδιαίτερα ευαίσθητος σε σφάλματα κατά τον προσδιορισμό του μ . Το τελικό σφάλμα στην εκτίμηση του συντελεστή διόρθωσης f_r αναμένεται να είναι $< 3\%$ εάν τα στατιστικά σφάλματα των μετρήσεων των φωτοκορυφών, κατά τον πειραματικό προσδιορισμό του $\mu(E_\gamma)$, διατηρηθούν κάτω από 5% για υλικά με $\mu < 1 \text{ cm}^{-1}$ (Σχήμα 4-15).

Στη μέθοδο που προτείνεται, δεν υπάρχουν αρχικές υποθέσεις για το μέγεθος του δείγματος, τη απόσταση πηγής – ανιχνευτή ή τη σύσταση του υλικού του δείγματος. Ο προσανατολισμός της πηγής είναι συγκεκριμένος αλλά οι υπολογισμοί μπορούν να επεκταθούν ώστε να καλύψουν και άλλες δυνατότητες προσανατολισμού αν αυτό κριθεί απαραίτητο ενώ η κατανομή της ενεργότητας θεωρείται ομογενής στον όγκο του δείγματος. Στην πράξη, κατά τη διάρκεια της μέτρησης, τα δείγματα θα περιστρέφονται.

5.5 ΣΥΝΟΛΙΚΗ ΔΙΟΡΘΩΣΗ ΓΙΑ ΤΗΝ ΑΥΤΟ-ΑΠΟΡΡΟΦΗΣΗ ΝΕΤΡΟΝΙΩΝ, ΤΗ ΓΕΩΜΕΤΡΙΑ ΤΗΣ ΠΗΓΗΣ ΚΑΙ ΤΗΝ ΕΞΑΣΘΕΝΗΣΗ ΤΩΝ ΑΚΤΙΝΩΝ γ

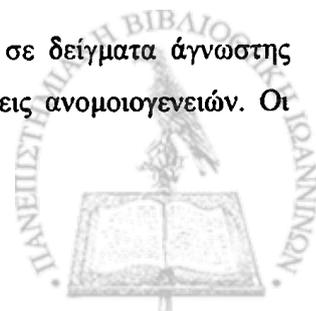
Κατά τη διαδικασία της EANE μεγάλων δειγμάτων, οι δύο διορθώσεις, της αυτο-απορρόφησης νετρονίων κατά την ακτινοβόληση του δείγματος, f_n , και της γεωμετρίας μέτρησης και της εξασθένησης των ακτίνων γ κατά την ανίχνευση των ακτίνων γ , f_γ , συνδυάζονται για να προκύψει η συνολική διόρθωση f ως γινόμενο των δύο προηγούμενων συντελεστών.

Η ορθότητα του διαχωρισμού των δύο διορθώσεων εξετάστηκε, υπό την έννοια της εισαγωγής σφάλματος στο τελικό αποτέλεσμα, χρησιμοποιώντας λογισμικό που αναπτύχθηκε στο IRI TU-Delft [Blaauw 2003] που παρέχει το συνολικό συντελεστή διόρθωσης χωρίς να διαχωρίζει τα δύο φαινόμενα. Η σύγκριση των αποτελεσμάτων για τους συνολικούς συντελεστές διόρθωσης μεταξύ των επιλογών στερεάς και υγρής φάσης, που διαθέτει το λογισμικό, αποτελεί στην πραγματικότητα και σύγκριση μεταξύ συσχετισμένου και διαχωρισμένου υπολογισμού των συντελεστών διόρθωσης της αυτο-απορρόφησης νετρονίων και της εξασθένησης ακτίνων γ . Διαπιστώθηκε ότι, παρά την αλλαγή των διαφόρων παραμέτρων του δείγματος (μήκος διάχυσης και διάμετρος), δεν υπήρχε σημαντική διαφορά στα αποτελέσματα για το διορθωτικό συντελεστή, f , μεταξύ επιλογής στερεού και υγρού δείγματος δηλαδή μεταξύ συσχετισμού και διαχωρισμού των δύο διορθώσεων (Πίνακες 4-2 και 4-3). Συνεπάγεται λοιπόν ότι παρόλο που η προτεινόμενη μέθοδος έχει θεωρητικούς περιορισμούς, (θεωρεί τη μέση τιμή αντί της χωρικής κατανομής της ροής νετρονίων μέσα στον όγκο του δείγματος, αλλά και την ολοκληρωμένη εξασθένηση των ακτίνων γ αντί της εξάρτησής της από τη θέση μέσα στην πηγή), στην πράξη δεν εισάγει σημαντικά σφάλματα.

5.6 ΕΠΙΔΡΑΣΗ ΤΩΝ ΑΝΟΜΟΙΟΓΕΝΕΙΩΝ ΣΤΗΝ ΑΚΡΙΒΕΙΑ ΤΗΣ ΜΕΘΟΔΟΥ

Η παρουσία των ανομοιογενειών στην κατανομή είτε των βασικών συστατικών είτε των ιχνοστοιχείων σε ένα μεγάλο δείγμα που αναλύεται με EANE είναι δυνατόν να οδηγήσει σε σοβαρά σφάλματα. Η επίδραση των ανομοιογενειών στη ακρίβεια της τεχνικής EANE δειγμάτων μεγάλου όγκου έχει μελετηθεί από τους Bode και συν. [1997], Overwater και Bode [1998] και Bode και συν. [1998]. Όπως επισημαίνεται από τους εν λόγω μελετητές, οι ανομοιογένειες που επηρεάζουν την απορρόφηση των ακτίνων γ έχουν μεγαλύτερη επίδραση στα αποτελέσματα από αυτές που επηρεάζουν την απορρόφηση των νετρονίων. Επιπλέον οι ανομοιογένειες των υπό ανάλυση ιχνοστοιχείων έχουν τη μεγαλύτερη επίδραση από όλες.

Στην παρούσα εργασία μελετήθηκαν τα όρια εφαρμογής της τεχνικής σε δείγματα άγνωστης σύστασης, σε μια προσπάθεια εκτίμησης σφαλμάτων σε ακραίες περιπτώσεις ανομοιογενειών. Οι



Συζήτηση

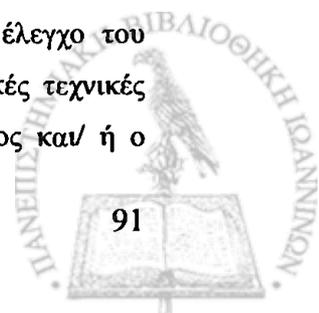
συνδυασμοί των υλικών που χρησιμοποιήθηκαν επιλέχθηκαν ώστε να διαφέρουν σημαντικά ως προς τις παραμέτρους αλληλεπίδρασής τους με θερμικά νετρόνια και/ή φωτόνια. Για το λόγο αυτό οι τιμές των παραγόντων ανομοιογένειας R_f' , που υπολογίστηκαν με εξομοίωση Monte Carlo, μπορούν να χαρακτηριστούν ως «χειρίστες περιπτώσεις» για τη διάταξη EANE μεγάλων δειγμάτων του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος». Οι ανομοιογένειες που εξετάστηκαν ήταν συμμετρικές ως προς τον κύριο άξονα του κυλινδρικού δείγματος. Οι διάφορες ανομοιογένειες μελετήθηκαν ανεξάρτητα ώστε να προκύψει η επίδρασή τους τόσο κατά την ακτινοβόληση όσο και κατά την ανίχνευση των ακτίνων γ .

5.6.1 Ανομοιογένειες σύστασης

Από τη μελέτη των ανομοιογενειών προέκυψε ότι τα αποτελέσματα της ανάλυσης δεν είναι τόσο ευαίσθητα ως προς τις ανομοιογένειες σύστασης. Αυτό συμβαίνει γιατί αν και οι ανομοιογένειες σύστασης επηρεάζουν άμεσα τις ιδιότητες εξασθένησης νετρονίων και φωτονίων του δείγματος, ταυτόχρονα επηρεάζουν και τις πειραματικά προσδιοριζόμενες τιμές της ροής στην επιφάνεια του δείγματος και του γραμμικού συντελεστή εξασθένησης του υλικού, με αποτέλεσμα να μειώνεται σημαντικά το σφάλμα της μέτρησης.

Συνδυάζοντας τα αποτελέσματα των παραγράφων 4.4.1 και 4.4.3, προκύπτει ότι το γινόμενο των παραγόντων ανομοιογένειας σύστασης $R_n^m \cdot R_\gamma^m$ αποκλίνει δραστικά από τη μονάδα, μόνο για υλικά με μεγάλο συντελεστή εξασθένησης ακτίνων γ , όπως για παράδειγμα υλικά με μεγάλη συγκέντρωση χαλκού και στις περιπτώσεις ακτίνων γ μικρής ενέργειας. Ως εκ τούτου το σφάλμα που υπεισέρχεται στην ανάλυση δειγμάτων με υψηλό συντελεστή εξασθένησης δύναται να μειωθεί αποφεύγοντας την ανάλυση των φωτοκορυφών στις χαμηλές ενέργειες (π.χ. φωτόνια με ενέργεια μικρότερη των ~ 400 keV). Για παράδειγμα, όταν ο χαλκός βρίσκεται στην κεντρική περιοχή (εσωτερικό) του δείγματος ($r_2 = 2.89$ cm) παρατηρείται αύξηση του γινομένου $R_n^m \cdot R_\gamma^m$ από 0.67 στα 500 keV σε περίπου 0.76 στα 1500 keV ενώ αντίστοιχα όταν ο γραφίτης βρίσκεται στην κεντρική περιοχή ($r_2 = 2.89$ cm) και περιβάλλεται από χαλκό, το γινόμενο $R_n^m \cdot R_\gamma^m$ μειώνεται από 0.88 στα 500 keV σε περίπου 0.82 στα 1500 keV (Σχήματα 4-17 και 4-20).

Η ύπαρξη αξονικής ανομοιογένειας σύστασης αναδεικνύεται από τις μετρήσεις διέλευσης ακτίνων γ και από τις μετρήσεις της ροής στην επιφάνεια του δείγματος που πραγματοποιούνται κατά την ακτινοβόληση. Αντίθετα, η ύπαρξη της ακτινικής ανομοιογένειας σύστασης δεν μπορεί να ανιχνευθεί από τέτοιες μετρήσεις. Όταν δεν είναι διαθέσιμες πιο προηγμένες μέθοδοι για τον έλεγχο του δείγματος ως προς τη μακροσκοπική ανομοιογένεια, όπως για παράδειγμα τομογραφικές τεχνικές ανάλυσης [Baas και συν. 1999], απλές μέθοδοι όπως η φυσική εξέταση του δείγματος και/ή ο



υπολογισμός της πυκνότητάς του μπορούν να προσφέρουν σημαντική πληροφορία. Επιπροσθέτως, ενδείξεις για την ύπαρξη ανομοιογένειας στο δείγμα μπορούν να προκύψουν και από την ανάλυση τουλάχιστον δύο φωτοκορυφών του ίδιου ισότοπου κατά την ανίχνευση ακτίνων γ .

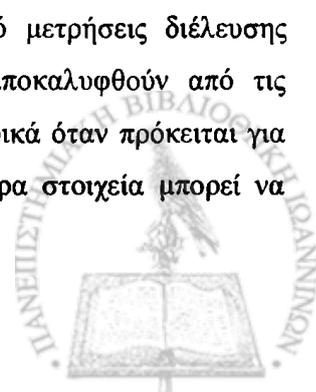
5.6.2 Ανομοιογένειες ιχνοστοιχείων

Αντίθετα προς τις ανομοιογένειες σύστασης, οι ανομοιογένειες των ιχνοστοιχείων είναι δυνατόν να οδηγήσουν σε μεγάλα σφάλματα κατά την εκτίμηση των συγκεντρώσεων στο υπό ανάλυση δείγμα όταν οι ανομοιογένειες αυτές παρουσιάζονται στα υπό ανάλυση ιχνοστοιχεία. Ο συντελεστής διόρθωσης ο οποίος κυρίως επηρεάζεται, όταν αγνοηθούν οι ανομοιογένειες ιχνοστοιχείων ενδιαφέροντος, είναι ο f_{γ} . Το σφάλμα μεγαλώνει όσο μεγαλύτερος είναι ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης του υλικού του δείγματος.

Η παρουσία ενός ισχυρού απορροφητή νετρονίων, όπως ο χρυσός σε ένα δείγμα γραφίτη, δεν επηρεάζει σημαντικά την ενεργοποίηση των στοιχείων με ομοιογενή κατανομή μέσα στον όγκο του δείγματος. Αντίθετα, όταν ο χρυσός είναι το υπό ανάλυση στοιχείο ο παράγοντας R'_n παρουσιάζει σημαντική αύξηση όταν ο χρυσός είναι κατανεμημένος σε σφαίρα στο κέντρο του δείγματος και σε κυλινδρικό όγκο ο άξονας του οποίου συμπίπτει με τον άξονα του δείγματος.

Όταν η ενεργότητα του υπό ανάλυση ιχνοστοιχείου είναι κατανεμημένη σε δίσκο στο κέντρο ή σε μία από τις κυκλικές επιφάνειες του δείγματος βρέθηκε ότι υπάρχει μια πολύ μικρή εξάρτηση του παράγοντα ανομοιογένειας R'_γ από το γραμμικό συντελεστή εξασθένησης ακτίνων γ . Ωστόσο, όταν η ενεργότητα είναι συγκεντρωμένη σε σημείο στο κέντρο του δείγματος ή αντιπροσωπεύεται από γραμμική πηγή που ταυτίζεται με τον άξονα αυτού, ο παράγοντας R'_γ αυξάνεται δραστικά με την αύξηση του μ . Για παράδειγμα, για τη γραμμική κατανομή της ενεργότητας ο R'_γ υπολογίστηκε ίσος με 6.3 και 20 για $\mu = 1 \text{ cm}^{-1}$ και δείγματα 250 και 1600 ml αντίστοιχα. Επιπλέον όταν η ενεργότητα κατανέμεται στην εξωτερική επιφάνεια του δείγματος ο παράγοντας R'_γ μειώνεται με την αύξηση του μ . Για παράδειγμα, για κατανομή ενεργότητας στην κυλινδρική επιφάνεια του δείγματος, βρέθηκε ότι ο R'_γ ήταν ίσος με 0.3 και 0.2 για $\mu = 1 \text{ cm}^{-1}$ και δείγματα 250 και 1600 ml αντίστοιχα.

Οι ανομοιογένειες ιχνοστοιχείων δεν μπορούν να αποκαλυφθούν από μετρήσεις διέλευσης ακτίνων γ . Ενδείξεις για αυτού του τύπου ανομοιογένειες μπορεί να αποκαλυφθούν από τις αποκλίσεις της αναλογίας των φωτοκορυφών από ότι αναμένεται βιβλιογραφικά όταν πρόκειται για ισότοπο που εκπέμπει ακτίνες γ σε τουλάχιστον δύο ενέργειες. Περισσότερα στοιχεία μπορεί να



Συζήτηση

προκύπτουν από την εξέταση του γ φάσματος σε σχέση με τη γωνία συλλογής του από δείγμα που δεν περιστρέφεται.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 6

ΕΦΑΡΜΟΓΕΣ

Βιο-ιατρικές Εφαρμογές της Τεχνικής Ανάλυσης με Νετρονική Ενεργοποίηση Δειγμάτων Μεγάλου Όγκου – Προσδιορισμός της συγκέντρωσης Κ και Na σε δύο βιολογικά υλικά

6.1 ΕΙΣΑΓΩΓΗ

Πιλοτική εφαρμογή της τεχνικής στον αντιδραστήρα του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος» έγινε στα πλαίσια εργασίας της Στρωματιά [2000]. Στην εργασία αυτή αναλύθηκαν δείγματα ομογενοποιημένου κρέατος και προσδιορίστηκαν οι συγκεντρώσεις καλίου και χλωρίου με τη χρήση δειγμάτων αναφοράς (standards). Τα αποτελέσματα της πιλοτικής εργασίας ήταν ιδιαίτερα ενθαρρυντικά, ως προς τις δυνατότητες ανάλυση της τεχνικής, παρά το γεγονός ότι ακόμη δεν είχαν αναπτυχθεί οι κατάλληλες μέθοδοι διόρθωσης που απαιτούνται κατά την ανάλυση μεγάλων δειγμάτων.

Στην παρούσα μελέτη πιλοτικά αναλύθηκαν δύο δείγματα βιολογικού ενδιαφέροντος, ένα δείγμα πρωτεϊνικού συμπληρώματος διατροφής αθλητών και ένα δείγμα βρεφικού γάλακτος σε σκόνη, προσδιορίστηκε η περιεκτικότητά τους σε κάλιο (Κ) και νάτριο (Na), και συγκρίθηκε με την ονομαστική τιμή που δίνουν οι κατασκευαστές.



6.2 ΥΛΙΚΑ ΚΑΙ ΜΕΘΟΔΟΣ

Αναλύθηκαν δείγματα πρωτεϊνικού συμπληρώματος (Designer Protein Whey, Glycer LEAN ehocoLAT, NEXT PROTEINSTTM) και βρεφικού γάλακτος (Frisolac[®] H, FRIESLAND COBERCO DAIRY FOODS). Τα δείγματα τοποθετήθηκαν σε κυλινδρικά δοχεία πολυαιθυλενίου με πάχος τοιχώματος 1 mm όγκου 500 ml. Η μάζα των δειγμάτων ήταν 238 g και 310 g για το πρωτεϊνικό συμπλήρωμα και το βρεφικό γάλα αντίστοιχα. Η ακτινοβόληση των δειγμάτων έγινε στη θερμική στήλη του αντιδραστήρα μεταξύ των ράβδων του γραφίτη (Σχήμα 3-2). Η ροή θερμικών νετρονίων στη θέση ακτινοβόλησης ήταν $4.5 \times 10^6 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ και ο λόγος θερμικών προς επιθερμικά νετρόνια ~ 300 . Η ισχύς του αντιδραστήρα ήταν 5 MW σε όλες τις ακτινοβολήσεις. Οι χρόνοι ακτινοβόλησης, αναμονής και μέτρησης των δειγμάτων δίνονται στον Πίνακα 6-1. Η ανίχνευση της ακτινοβολίας γ έγινε με τοποθέτηση των δειγμάτων σε απόσταση 20 cm από την επιφάνεια του ανιχνευτή. Η ανάλυση των φασμάτων έγινε με το πρόγραμμα συλλογής, ανάλυσης και καταγραφής φασμάτων GammaVision της εταιρείας EG&G ORTEC[®]. Τα χαρακτηριστικά των πυρηνικών αντιδράσεων που χρησιμοποιήθηκαν για την ανάλυση δίνονται στον Πίνακα 6-2 [Reus και Westmeier 1983].

Πίνακας 6-1: Χρόνοι ακτινοβόλησης, σε ισχύ 5 MW, αναμονής και μέτρησης των δειγμάτων

Δείγμα	t_i (min)	t_d (min)	t_c (min)
Πρωτεϊνικό συμπλήρωμα	400.58	1547.12	1015.06
Βρεφικό γάλα	421.80	1104.43	383.40

Πίνακας 6-2: Χαρακτηριστικά των πυρηνικών αντιδράσεων που χρησιμοποιήθηκαν για την ανάλυση του K και του Na

Στοιχείο	Ισοτ. περιεκτ. (%)	σ_{th} (b)	Αντίδραση	E_γ (keV)	φωτόνια/διάσπαση	$t_{1/2}$ (h)
Κάλιο	6.73	1.46	$^{41}\text{K} \xrightarrow{(n,\gamma)} ^{42}\text{K}$	1525	0.183	12.4
Νάτριο	100	0.53	$^{23}\text{Na} \xrightarrow{(n,\gamma)} ^{24}\text{Na}$	2168 1368	0.999 1.00	15.02



Εφαρμογές

Οι διορθώσεις που έχουν εισαχθεί στη μέτρηση της ραδιενέργειας των βιολογικών δειγμάτων, αφορούν: (α) τη ροή θερμικών νετρονίων στην οποία ακτινοβολήθηκαν τα δείγματα και (β) την απόδοση του ανιχνευτή για τα συγκεκριμένα δείγματα. Ο συντελεστής h_n προέκυψε από τη μέση ροή στην επιφάνεια των υπό ακτινοβολία δειγμάτων και τη ροή αναφοράς στην περιοχή που καταλάμβανε το δείγμα αλλά στο γραφίτη. Η μέση ροή στην περιοχή του δείγματος στο γραφίτη προσδιορίστηκε μέσω κανονικοποίησης της τιμής που υπολογίζεται από τον κώδικα με βάση τη ροή αναφοράς στη θέση ακτινοβολίας που προσδιορίστηκε πειραματικά πριν την ακτινοβολία. Για να υπολογιστεί η μέση τιμή της ροής στην επιφάνεια των δειγμάτων χρησιμοποιήθηκαν ελάσματα χρυσού (gold foils), τα οποία κατανεμήθηκαν στην επιφάνεια των δειγμάτων με τρόπο συμμετρικό: 3 ελάσματα καθ' ύψος σε κάθε έναν από τους τέσσερις τομείς του κυλίνδρου και από 1 έλασμα σε κάθε βάση του κυλινδρικού δοχείου. Έτσι τοποθετήθηκαν συνολικά 18 ελάσματα σε κάθε δείγμα. Η απόσταση μεταξύ των ελασμάτων σε κάθε πλευρά ήταν > 2 cm.

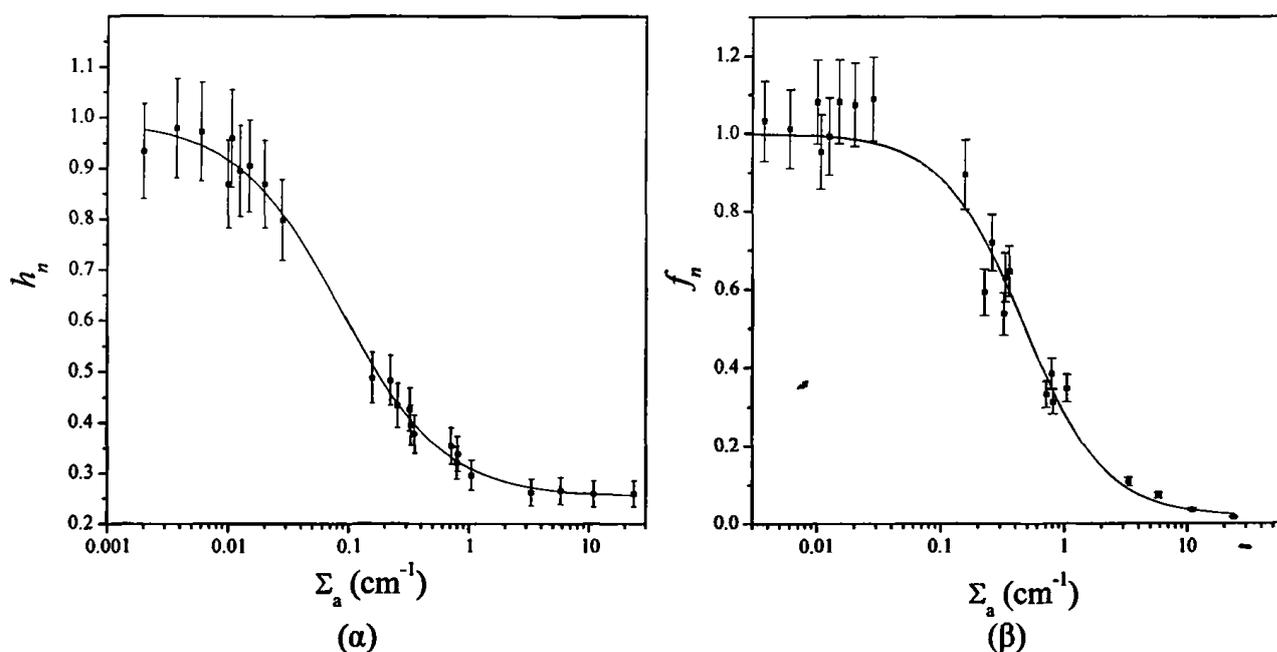
Η ροή θερμικών νετρονίων στο δείγμα προέκυψε από τις καμπύλες του Σχήματος 6-1 οι οποίες αναπαριστούν την εξάρτηση των συντελεστών διαταραχής της ροής, h_n , (Σχήμα 6-1α) και αυτό-απορρόφησης θερμικών νετρονίων, f_n , (Σχήμα 6-1β) από την ενεργό διατομή απορρόφησης θερμικών νετρονίων, Σ_a , του υλικού, και προέκυψαν από τον κώδικα για μέγεθος δειγμάτων με ακτίνα $r=4.28$ cm και ύψος $h=9$ cm. Κατά τη διαδικασία η τιμή που προσδιορίστηκε για το συντελεστή h_n οδήγησε μέσω της ενεργού διατομής Σ_a στον προσδιορισμό του συντελεστή f_n .

Η διόρθωση για την απόδοση του ανιχνευτή και την αυτό-απορρόφηση ακτίνων γ προέκυψε από την καμπύλη βαθμονόμησης που απεικονίζεται στο Σχήμα 6-2 και αναπαριστά την εξάρτηση του συντελεστή διόρθωσης f_γ από τη μεταβλητή $\mu \cdot r \cdot h / (r + h)$ του μεγάλου δείγματος για απόσταση πηγής - ανιχνευτή 20 cm. Για το μαζικό συντελεστή εξασθένησης, $\mu(E_\gamma)$, των υπό ανάλυση υλικών ελήφθησαν τυπικές τιμές από τη βιβλιογραφία [Hubbel και Seltzer 1995].

Ενδεικτικά σημειώνεται ότι, όπως προκύπτει από την καμπύλη του Σχήματος 6-2, σφάλμα της τάξεως του 20 % στον συντελεστή μ συνεπάγεται σφάλμα στον συντελεστή $f_\gamma \sim 2$ % για την περιοχή $\mu \cdot r \cdot h / (r + h) < 0.2$ όπου ανήκουν τα υπό ανάλυση δείγματα. Έτσι ακόμα κι αν κανείς θεωρήσει για παράδειγμα ότι ο συντελεστής εξασθένησης για το βρεφικό γάλα επηρεάζεται από την υψηλή του περιεκτικότητα σε ασβέστιο, η επίπτωση που θα έχει αυτή η μεταβολή στον συντελεστή f_γ θα είναι πολύ μικρή.

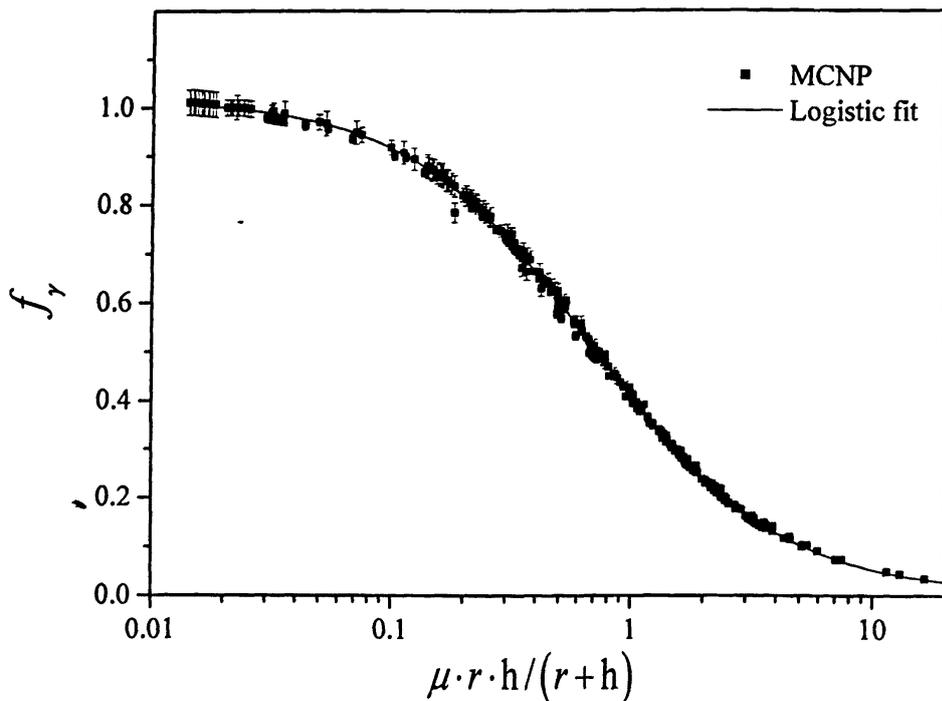
6.3 ΑΠΟΤΕΛΕΣΜΑΤΑ

Στα Σχήματα 6-3 και 6-4 δίνονται τα γ φάσματα του ανιχνευτή γερμανίου από τα ακτινοβολημένα δείγματα πρωτεϊνικού συμπληρώματος διατροφής και της σκόνης βρεφικού γάλακτος αντίστοιχα. Στον Πίνακα 6-3 δίνονται η μέση ροή θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια των δειγμάτων, οι συντελεστές διόρθωσης f_n , f_γ και, οι κατά βάρος συγκεντρώσεις του K και του Na που υπολογίστηκαν με την παραπάνω μέθοδο στα υπό ανάλυση δείγματα, C_{cal} , και οι ονομαστικές κατά βάρος συγκεντρώσεις του K και του Na, C_{nom} , οι οποίες αναγράφονται στις συσκευασίες των υλικών.

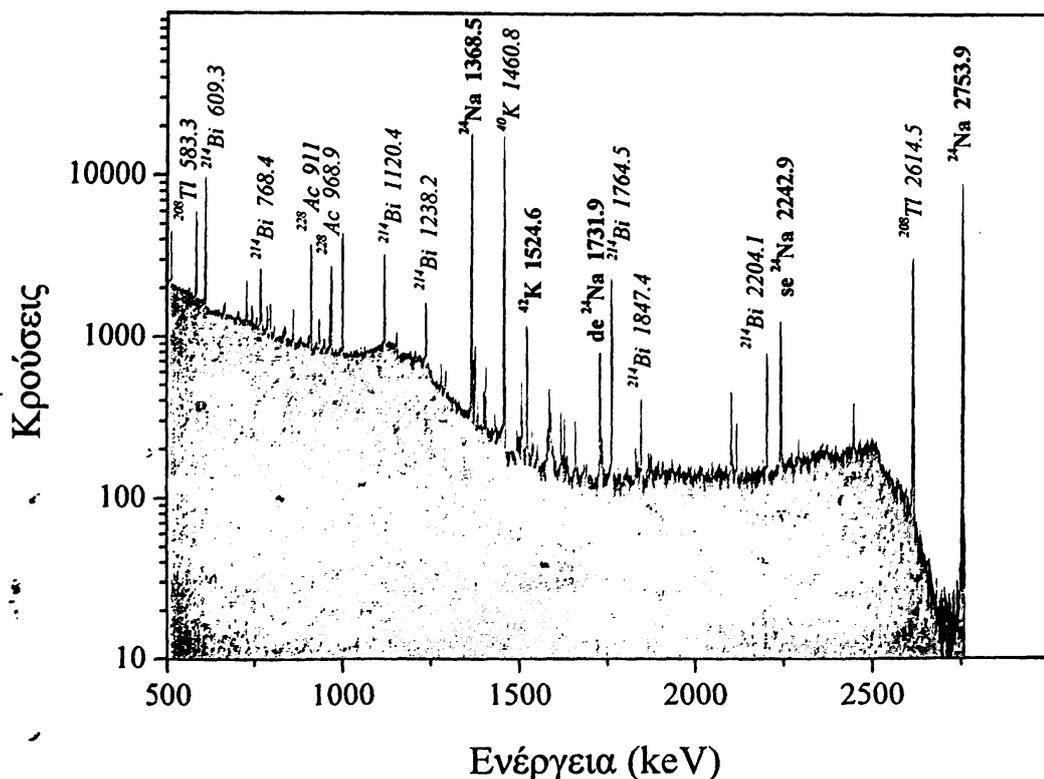


Σχήμα 6-1: Εξάρτηση των συντελεστών (α) διόρθωσης της διαταραχής του πεδίου, h_n , και (β) της αυτο-απορρόφησης θερμικών νετρονίων, f_n , από την ενεργό διατομή απορρόφησης θερμικών νετρονίων, Σ_a , για δείγματα διαστάσεων $r = 4.28$ cm και $h = 9$ cm που ακτινοβολούνται στη θερμική στήλη του αντιδραστήρα.

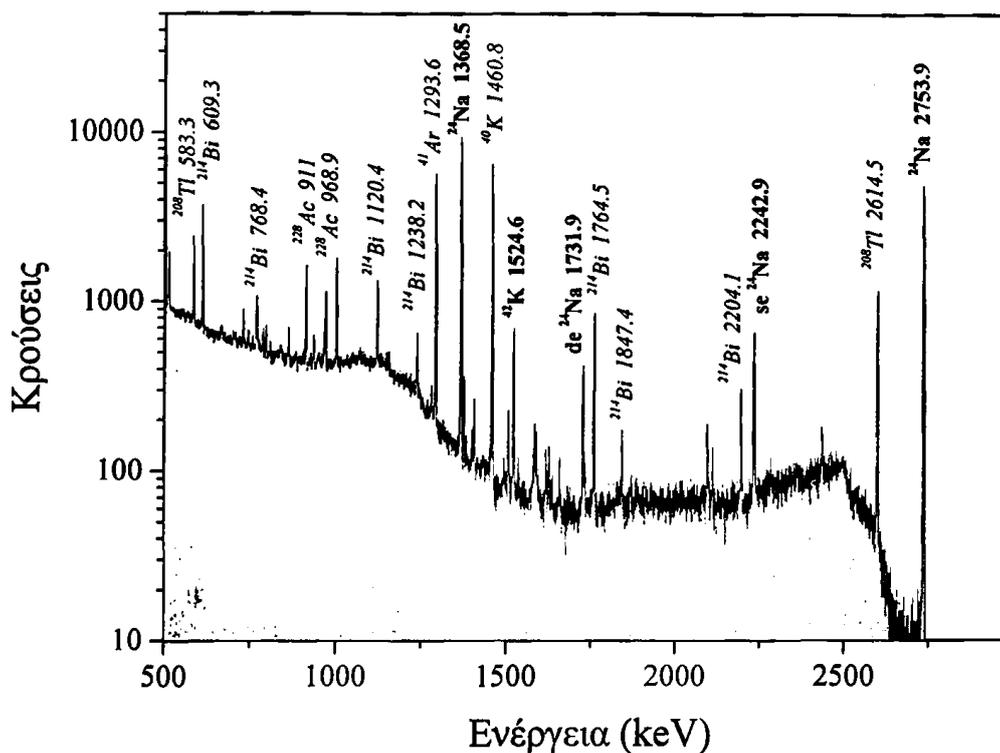
Όπως παρατηρείται από τα αποτελέσματα του Πίνακα 6-3 οι τιμές που προσδιορίστηκαν για τις κατά βάρος συγκεντρώσεις του K και του Na στα δύο υλικά βρίσκονται σε συμφωνία με τις ονομαστικές συγκεντρώσεις που αναφέρουν οι κατασκευαστές, C_{nom} , στα πλαίσια μιας μέγιστης απόκλισης 11 % η οποία περιέχεται στα όρια του σφάλματος που εκτιμάται ότι έχει εισαχθεί στην πειραματική διαδικασία.



Σχήμα 6-2: Εξάρτηση του συντελεστή διόρθωσης της απόδοσης του ανιχνευτή για ομοιογενή πηγή μεγάλου όγκου, f_γ , από την αδιάστατη μεταβλητή του δείγματος $\mu \cdot r \cdot h / (r + h)$ για απόσταση κέντρου μάζας πηγής – επιφάνειας ανιχνευτή SDD= 20 cm.



Σχήμα 6-3: Φάσμα ακτίνων γ ανιχνευτή γερμανίου από ακτινοβολημένο δείγμα πρωτεϊνικού συμπληρώματος διατροφής μάζας 238 g ($t_c = 60904$ s). Οι κορυφές που υποδεικνύονται με πλάγιους χαρακτήρες αποτελούν κορυφές του υποβάθρου.



Σχήμα 6-4: Φάσμα ακτίνων γ ανιχνευτή γερμανίου από ακτινοβολημένο δείγμα σκόνης βρεφικού γάλακτος μάζας 310 g ($t_c = 23004$ s). Οι κορυφές που υποδεικνύονται με πλάγιους χαρακτήρες αποτελούν κορυφές του υποβάθρου.

Πίνακας 6-3: Διορθωτικοί παράγοντες f_n , f_γ K και του Na σε πρωτεϊνικό συμπλήρωμα διατροφής και σκόνη βρεφικού γάλακτος

δείγμα	$\bar{\phi}_s$ ($\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)	f_n	E_γ (keV)	f_γ	στοιχείο	$NET \pm \sigma_{NET}$ (κρούσεις)	C_{nom} (mg/g)	$C_{cal} \pm \sigma_{C_{cal}}$ (mg/g)	A %
Πρωτεϊνικό συμπλήρωμα	3.61×10^6	0.95	1525	0.940	K	$6061 \pm 2.3\%$	6.25	$6.86 \pm 11\%$	10
			1368	0.934	Na	$127266 \pm 0.3\%$	2.50	$2.30 \pm 11\%$	8
Βρεφικό γάλα	3.68×10^6	0.95	1525	0.911	K	$4221 \pm 2.3\%$	5.00	$4.79 \pm 11\%$	4
			1368	0.907	Na	$68084 \pm 0.4\%$	1.55	$1.38 \pm 11\%$	11

6.4 ΣΥΖΗΤΗΣΗ

Ο στόχος των δύο εφαρμογών ήταν να εξεταστεί σε πρώτο επίπεδο τη εφαρμοσιμότητα της μεθόδου. Τα αποτελέσματα της ανάλυσης θεωρούνται ικανοποιητικά. Η μέγιστη διαφορά που παρατηρείται

μεταξύ ονομαστικών και προσδιοριζόμενων τιμών των συγκεντρώσεων του K και του Na είναι 11 % και αφορά τη συγκέντρωση νατρίου στο δείγμα γάλατος. Η διαφορά κατά 11 % σε μια από τις τέσσερις μετρήσεις μπορεί να δικαιολογηθεί λόγω του στατιστικού σφάλματος που είναι της τάξης του 11 %. Οι κύριοι παράγοντες που ευθύνονται για τη μεγάλη τιμή του σφάλματος θεωρείται ότι είναι:

1. Η θωράκιση του ανιχνευτικού συστήματος δεν είχε ολοκληρωθεί. Το γεγονός αυτό εισήγαγε πλήθος κορυφών του υποβάθρου στα φάσματα γ ακτινοβολίας που προέκυψαν και επηρέασε την ανάλυση των φωτοκορυφών του K στα 1525 keV και του Na στα 1368 keV.
2. Ο προσδιορισμός του συντελεστή εξασθένησης των υλικών δεν έγινε πειραματικά αλλά βασίστηκε σε βιβλιογραφικά δεδομένα τα οποία θεωρούνται αποδεκτά μεν για τις ανάγκες του πιλοτικού πειράματος, δεν ενθαρρύνεται όμως η χρήση τους σε μελλοντικές εφαρμογές αλλά θεωρείται απαραίτητος ο πειραματικός προσδιορισμός του $\mu(E_\gamma)$ για το συγκεκριμένο υλικό.
3. Η ροή θερμικών νετρονίων στη θέση ακτινοβόλησης προσδιορίστηκε πριν την τοποθέτηση των δειγμάτων. Το ίδιο πρόκειται να γίνεται και στο μέλλον με τη διαφορά ότι η εγκατάσταση κάθετου συστήματος ακτινοβόλησης θα επιτρέπει τη χρήση μεθόδων προσδιορισμού ροής αναφοράς κατά τη διάρκεια της ακτινοβόλησης.
4. Η διόρθωση του συντελεστή f_n για την περιεκτικότητα των δειγμάτων σε υδρογόνο δεν συμπεριλήφθηκε στους υπολογισμούς εφόσον η περιεκτικότητα σε υδρογόνο και των δύο δειγμάτων, που κατά βάση αποτελούνται από πρωτεΐνες, δεν ξεπερνά το 0.5 % και το μέγεθος των δειγμάτων είναι τέτοιο ($r=4.28$ cm και ύψος $h=9$ cm δηλαδή $l=2.89$ cm) ώστε η παρουσία του υδρογόνου δεν επηρεάζει το συντελεστή f_n περισσότερο από 5 % (βλ. Σχήμα 4-9). Ωστόσο, σε μελλοντικές εφαρμογές που απαιτούν ελαχιστοποίηση των σφαλμάτων που υπεισέρχονται στη διαδικασία, κρίνεται απαραίτητη η διόρθωση του f_n για την παρουσία του υδρογόνου.

Συμπερασματικά, η ακρίβεια της μεθόδου θα βελτιωθεί σημαντικά εάν: (α) βελτιωθεί η θωράκιση του ανιχνευτή, ώστε να ελαχιστοποιηθεί η ανιχνευόμενη ακτινοβολία υποβάθρου και η επίδρασή της στην ανάλυση, (β) ο προσδιορισμός του συντελεστή εξασθένησης του υλικού $\mu(E_\gamma)$ γίνει πειραματικά, (γ) ελαχιστοποιηθούν τα σφάλματα κατά τον υπολογισμό των συντελεστών h_n και f_n (από < 10 % να μειωθούν σε < 5 %) και (δ) εφαρμοστεί η διόρθωση για το υδρογόνο σε μελλοντικές αναλύσεις υδρογονούχων δειγμάτων μέσω της συγκέντρωσης του υδρογόνου που θα προκύπτει από συμπληρωματική τεχνική (π.χ. PGNA).

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 7

ΓΕΝΙΚΗ ΣΥΖΗΤΗΣΗ & ΣΥΜΠΕΡΑΣΜΑΤΑ

Σκοπός της παρούσας εργασίας ήταν ο σχεδιασμός και η ανάπτυξη μιας διάταξης ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση δειγμάτων μεγάλου όγκου στη θερμική στήλη του ερευνητικού αντιδραστήρα του Ινστιτούτου Πυρηνικής Τεχνολογίας και Ακτινοπροστασίας του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος». Για το σκοπό αυτό σχεδιάστηκαν και αναπτύχθηκαν ειδικές πειραματικές διατάξεις ακτινοβολήσης, ανίχνευσης και μετρήσεων διέλευσης ακτίνων γ , καθώς και μέθοδοι διόρθωσης για τα φαινόμενα (α) της διαταραχής του πεδίου νετρονίων και της αυτο-απορρόφηση των νετρονίων σε μεγάλα δείγματα και (β) της εξασθένησης των ακτίνων γ στο μεγάλο δείγμα και της χωρικής κατανομής της ενεργότητας σε σχέση με τη γεωμετρία σημειακής πηγής. Για την παραγωγή αξιόπιστων αποτελεσμάτων αναπτύχθηκαν ειδικοί αλγόριθμοι που επιτρέπουν τη διόρθωση για κάθε μέγεθος και σύσταση του προς ανάλυση δείγματος, όταν η σύσταση του δείγματος δεν είναι γνωστή εκ των προτέρων.

Η μελέτη του πεδίου θερμικών νετρονίων στη θέση ακτινοβολήσης και ο υπολογισμός του συντελεστή διόρθωσης της αυτο-απορρόφησης νετρονίων έγινε μέσω λεπτομερούς εξομοίωσης της πειραματικής διάταξης με τη μέθοδο Monte Carlo. Οι υπολογισμοί της κατανομής της ροής θερμικών νετρονίων στα δείγματα χρησιμοποιήθηκαν ως βάση δεδομένων για την εξαγωγή ημι-εμπειρικής



καμπύλης βαθμονόμησης του συντελεστή διόρθωσης της εξασθένησης νετρονίων f_n σε συνάρτηση με μια αδιάστατη μεταβλητή x_0 η οποία εμπεριέχει τις διαστάσεις του κυλινδρικού δείγματος r και h καθώς και το μήκος διάχυσης του υλικού του δείγματος L . Για τη γενική περίπτωση άγνωστης σύστασης, αναπτύχθηκε μια ημι-εμπειρική μέθοδος προσδιορισμού του συντελεστή f_n από καμπύλες βαθμονόμησης που προκύπτουν υπολογιστικά για κάθε μέγεθος δείγματος, η οποία βασίζεται σε μετρήσεις με ανιχνευτές ελασμάτων χρυσού της ροής θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος και σε σημείο αναφοράς στο γραφίτη κατά την ακτινοβολήση, καθώς και της ροής αναφοράς στην περιοχή του δείγματος πριν την ακτινοβολήση. Οι υπολογισμοί έγιναν για κυλινδρικά και μακροσκοπικά ομοιογενή δείγματα.

Η μελέτη της απόδοσης του ανιχνευτή για πηγή όγκου και της εξασθένησης των ακτίνων γ έγινε με πλήρη εξομοίωση της ανιχνευτικής διάταξης και της πηγής με τον κώδικα MCNP. Η μέθοδος διόρθωσης βασίζεται στον προσδιορισμό του αντίστοιχου συντελεστή διόρθωσης f_γ από τις διαστάσεις του δείγματος και τον γραμμικό συντελεστή εξασθένησης του υλικού. Για δείγματα γνωστής μακροσκοπικής σύστασης, το μοντέλο του ανιχνευτή μπορεί να χρησιμοποιηθεί απευθείας για τον υπολογισμό του συντελεστή f_γ . Για την περίπτωση όπου δεν υπάρχουν στοιχεία για τη σύσταση του υπό ανάλυση δείγματος τα αποτελέσματα των υπολογισμών για τους συντελεστές f_γ χρησιμοποιήθηκαν ως βάση δεδομένων για την εξαγωγή καμπύλης βαθμονόμησης του συντελεστή f_γ σε συνάρτηση με την αδιάστατη μεταβλητή $\mu \cdot r \cdot h / [(r + h)]$, η οποία εμπεριέχει τις διαστάσεις του κυλινδρικού δείγματος r και h καθώς και τον γραμμικό συντελεστή εξασθένησης $\mu(E_\gamma)$ του υλικού. Ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης του υλικού μπορεί να προσδιοριστεί πειραματικά, πριν από την ακτινοβολήση του δείγματος με πειραματική μέτρηση της διέλευσης ακτίνων γ χρησιμοποιώντας κατευθυνόμενη δέσμη πηγής φωτονίων από πολύ-ενεργειακή πηγή φωτονίων (π.χ. ^{152}Eu). Η μέθοδος κατέστησε δυνατή τη βαθμονόμηση του ανιχνευτή για το εύρος των ενεργειών, υλικών, διαστάσεων των δειγμάτων που ενδιαφέρουν την EANE.

Κατά την ανάπτυξη των μεθόδων διόρθωσης, τα δείγματα θεωρήθηκαν ομογενή ως προς την κατανομή των κυρίαρχων στοιχείων αλλά και των ιχνοστοιχείων μέσα στον όγκο τους. Η εγκυρότητα του ποσοτικού προσδιορισμού της στοιχειακής σύστασης μεγάλων δειγμάτων εξετάστηκε υπό την έννοια της επίδρασης των ανομοιογενειών του δείγματος στην ακρίβεια της τεχνικής για ειδικές περιπτώσεις ανομοιογένειας. Διαπιστώθηκε ότι τα αποτελέσματα της ανάλυσης δεν είναι τόσο ευαίσθητα ως προς τις ανομοιογένειες σύστασης οι οποίες εν μέρει διορθώνονται από την ίδια τη μέθοδο. Αντίθετα η ανομοιογενής κατανομή στα ιχνοστοιχεία ενδιαφέροντος του υπό ανάλυση



δείγματος είναι δυνατόν να εισάγει σφάλματα στους υπολογισμούς κατά την ακτινοβόληση και κυρίως κατά την ανίχνευση των ακτίνων γ . Όταν το υπό ανάλυση ισότοπο, που παρουσιάζει ανομοιογένεια στην κατανομή του, εκπέμπει ακτίνες γ σε τουλάχιστον δύο ενέργειες η ανομοιογένεια ανιχνεύεται από την αναλογία των αντίστοιχων κορυφών του φάσματος. Ωστόσο, το ζητούμενο μιας ανάλυσης δεν είναι η ανάλυση όλων των στοιχείων που αυτό περιέχει αλλά η αναγνώριση και εξαγωγή μόνο των αξιόπιστων αποτελεσμάτων. Συνάγεται λοιπόν ότι η μέθοδος της EANE δειγμάτων μεγάλου όγκου δύναται να εφαρμοστεί σε δείγματα που διαθέτουν περιορισμένη ανομοιογένεια (ή θα λέγαμε ότι χαρακτηρίζονται από μακροσκοπική ομοιογένεια).

Η μέθοδοι διόρθωσης επαληθεύτηκαν μέσω πειραματικών μετρήσεων, ενώ η ανεξάρτητη εφαρμογή τους εξετάστηκε σε σχέση με το συνδυασμό τους. Οι μέθοδοι διόρθωσης δύναται να εφαρμοστούν σε συνθήκες όπου η σύσταση του υλικού του δείγματος είναι άγνωστη ώστε να μην απαιτούν επέμβαση στο δείγμα. Τα χαρακτηριστικά του υλικού του δείγματος που απαιτούνται για την εφαρμογή των μεθόδων προσδιορίζονται μέσω εξωτερικών πειραματικών μετρήσεων, όπως της ροής νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος κατά την ακτινοβόληση και του γραμμικού συντελεστή εξασθένησης του υλικού με μετρήσεις διέλευσης ακτίνων γ από το μη ακτινοβολημένο δείγμα. Τα κυλινδρικά δείγματα που μελετήθηκαν είχαν ακτίνα $r \leq 7.5$ cm και ύψος $h \leq 30$ cm ή αντίστοιχο όγκο $V \leq 5.3$ L. Η πυκνότητα των δειγμάτων ήταν $\rho \leq 11.5$ g/cm³. Η μακροσκοπική ενεργός διατομή απορρόφησης νετρονίων Σ_a , κάλυψε το εύρος μεταξύ 0.002 cm⁻¹ και 24 cm⁻¹ ενώ ο λόγος διατομής σκέδασης νετρονίων προς την αντίστοιχη συνολική διατομή, Σ_s/Σ_t , κυμάνθηκε μεταξύ 0.01 και 0.98 . Η ενέργεια των ακτίνων γ ήταν > 300 keV, ενώ ο μαζικός συντελεστής εξασθένησης ήταν μικρότερος των 4 cm²/g. Επομένως, για τα παραπάνω δείγματα οι περιορισμοί των μεθόδων διόρθωσης ήταν $x_0 > 15$, $\mu \cdot r \cdot h / (r + h) \leq 20$ για αποστάσεις πηγής ανιχνευτή $SDD \geq 20$ cm γεγονός που σημαίνει ότι οι μέθοδοι διόρθωσης μπορούν να εφαρμοστούν σε ένα ευρύ φάσμα όσον αφορά τα μεγέθη και τη σύσταση των δειγμάτων που ενδιαφέρουν την EANE μεγάλων δειγμάτων.

Η δυνατότητα επίτευξης της ανάλυσης επιδείχθηκε με τον προσδιορισμό στοιχείων σε δείγματα βρεφικού γάλακτος και πρωτεϊνικού παρασκευάσματος σε μορφή σκόνης. Τα αποτελέσματα οδηγούν στο συμπέρασμα ότι μέσα στα πλαίσια των περιορισμών και των βελτιώσεων που προτείνονται για τη μέθοδο, θα είναι εφικτή συνολική ακρίβεια της ανάλυσης καλύτερη από 10% .

Συμπερασματικά, η ακρίβεια της μεθόδου θα βελτιωθεί σημαντικά εάν: (α) ολοκληρωθεί η κατασκευή της διάταξης ακτινοβόλησης, η οποία προβλέπει κάθετη πρόσβαση στη θέση ακτινοβόλησης κατά τη διάρκεια λειτουργίας του αντιδραστήρα και εγκατασταθεί ανιχνευτής θερμικών νετρονίων (π.χ. θάλαμος BF3) για τη συνεχή καταγραφή της ροής αναφοράς κατά τη

διάρκεια της ακτινοβολήσης, (β) βελτιωθεί η θωράκιση του ανιχνευτή ώστε να ελαχιστοποιηθεί η ανιχνευόμενη ακτινοβολία υποβάθρου και η επίδρασή της στην ανάλυση, (γ) μειωθούν τα σφάλματα κατά τον υπολογισμό των συντελεστών h_n και f_n (από $< 10\%$ να μειωθούν σε $< 5\%$) και (δ) χρησιμοποιηθεί η διάταξη ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση των άμεσα εκπεμπόμενων ακτίνων γ για τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης του υδρογόνου και την εφαρμογή της κατάλληλης διόρθωσης του συντελεστή f_n .

Το μοντέλο του ανιχνευτή που αναπτύχθηκε, στα πλαίσια της παρούσας εργασίας, χρησιμοποιήθηκε για να μελετήσει την απόδοση του ανιχνευτή για σημειακές και κυλινδρικές πηγές. Ωστόσο, είναι δυνατόν να χρησιμοποιηθεί και για κάθε πηγή όγκου, της οποίας η γεωμετρία μπορεί να περιγραφεί από τον κώδικα MCNP. Το μοντέλο έχει ήδη χρησιμοποιηθεί για μετρήσεις χαρακτηρισμού καταλοίπων (ρητινών) στο εργαστήριο διαχείρισης ραδιενεργών καταλοίπων του πυρηνικού αντιδραστήρα του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος».

Η ΕΑΝΕ δειγμάτων μεγάλου όγκου προσφέρει επιπλέον δυνατότητες ανάλυσης σε δείγματα που είναι δύσκολο να ομογενοποιηθούν, ή υλικά υψηλής καθαρότητας των οποίων η άμεση ανάλυση θα έλυνε προβλήματα απώλειας στοιχείων ή ρύπανσης του δείγματος κατά την προετοιμασία του. Επιπλέον είναι μία μοναδική τεχνική η οποία δύναται να πραγματοποιήσει πολύ-στοιχειακή ανάλυση στο ίδιο δείγμα χωρίς να προϋποθέτει καταστροφή του δείγματος. Αξίζει ακόμη να σημειωθεί ότι αρχική συνθήκη στο σχεδιασμό της διάταξης ΕΑΝΕ δειγμάτων μεγάλου όγκου, αποτελεί το γεγονός ότι η προκύπτουσα ενεργότητα στο ακτινοβολημένο δείγμα πρέπει να είναι της ίδιας τάξης με αυτή της συμβατικής ΕΑΝΕ. Η αύξηση στη μάζα του δείγματος συνεπάγεται μικρότερη απαιτούμενη ροή θερμικών νετρονίων για ένα συγκεκριμένο χρόνο ακτινοβολήσης. Συνέπεια αυτής της συνθήκης είναι η μειωμένη ειδική ενεργότητα του δείγματος κατά το πέρας της ανάλυσης άρα και η σημαντική μείωση των ραδιενεργών καταλοίπων.

Η τεχνική της ΕΑΝΕ μεγάλων δειγμάτων συμπληρώνει και επεκτείνει τις πυρηνικές αναλυτικές δυνατότητες του Ινστιτούτου Πυρηνικής Τεχνολογίας & Ακτινοπροστασίας του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος» αφού πρόκειται για μία μοναδική μέθοδο που επιτρέπει πολύ-στοιχειακή ανάλυση σε δείγματα μεγάλου όγκου. Σημαντική προοπτική της διάταξης αποτελεί η δυνατότητα ανάλυσης καταλοίπων (waste), ρυπασμένου εδάφους (contaminated soil), ιζημάτων (sediment), ανακυκλώσιμων υλικών (recycling material). Στο πεδίο της βιο-ιατρικής, προσφέρει τη μοναδική δυνατότητα της ανάλυσης ολόκληρων οργάνων, βιολογικών ιστών καθώς και του σώματος μικρών ζώων με προοπτική εφαρμογής σε τοξικολογικές και διαιτολογικές έρευνες καθώς και σε μελέτες μεταβολισμού. Η εφαρμογή της μεθόδου θα λύσει σημαντικά προβλήματα στις περιπτώσεις που η

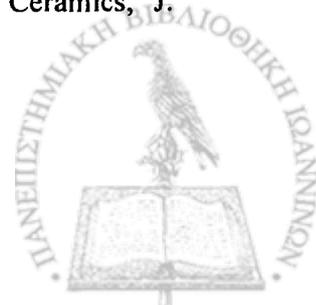


Γενική συζήτηση & συμπεράσματα

καταστροφή του δείγματος δεν είναι επιθυμητή (π.χ. ιατροδικαστική, παλαιοανθρωπολογία, αρχαιολογία).

BIBΛΙΟΓΡΑΦΙΑ

1. Alhashimi A, Krishnan S. S., Jervis R. E., Human Hair As A Pollutant Dosimeter, *J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar.*, 161 (1) (1992) 171-180
2. ANSI N42.14, American National Standard for Calibration and Use of Germanium Spectrometers for the Measurement of Gamma-Ray Emission Rates of Radionuclides, Institute of Electrical and Electronics Engineers, Inc., New York, USA (1999)
3. Baas H. W., Blaauw M., Bode P., De Goeij J. J. M., Collimated scanning towards 3D-INAA of inhomogeneous large samples, *Fres. J. Anal. Chem.*, 363 (1999) 753-759
4. Benedik I., Byrne A. R., Simultaneous Determination of Trace Uranium and Thorium by Neutron Activation Analysis, *J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar.*, 189 (1995) 325-331
5. Blaauw M., Baas H. W., Donze M., Height-Resolved Large-Sample INAA of a 1 M Long, 13 cm Diameter Ditch-Bottom Sample, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.-A*, 505 (2003) 512-516
6. Blaauw M., Mackey E. A. M., Neutron Self-shielding in Hydrogenous Samples, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 216 (1997) 65-68
7. Blaauw M., Private Communication, (2003)
8. Blum P. Z., Fingerprinting the Stone at Saint-Denis: A Pilot Study, *The International Center of Medieval Art*, 33 (1994) 19-28
9. Bode P., 'Analysis of large samples by NAA: QA aspects', *Proceed. IAEA-International Symposium on Harmonization of Health-related Environmental Measurements using Nuclear and Isotopic Techniques*, Hyderabad, India, November 4 - 7 1996, IAEA-SM-344/25 (1997) 279-289
10. Bode P., De Bruin M., Korthoven P. J. M., A Method for the Correction of Self-absorption of Low Energy Photons for Use in Routine INAA, *J. Radioanal. Chem.*, 64 (1981) 153-166
11. Bode P., De Kok J., Trends in Trace Element Determination in Blood, Serum, and Urine of the Dutch Population, and the Role of Neutron Activation Analysis, *Biol. Trace Elem. Res.*, 71 (1999) 15-20
12. Bode P., Lakmaker O., Van Aller P., Blaauw M., 'Feasibility studies of neutron activation analysis with kilogram-size samples', *Fres. J. Anal. Chem.*, 360 (1998) 10-17
13. Bode P., Overwater R. M. W., DeGoeij J. J. M., Large-sample neutron activation analysis: Present status and prospects, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 216 (1) (1997) 5-11
14. Bode P., Van Meerten Th. G., Challenges for INAA in Studies of Materials from Advanced Material Research including Rare Earth Concentrates and Carbon Based Ceramics, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 244 (2000) 497-500



15. Borsaru M., Holmes R. J., Mathew P. J., Bulk analysis using Nuclear Techniques, *Int. J. Appl. Radiat. Isotop.*, 34 (1983) 397-405
16. Briesmeister J. F., (ED.) (2000) MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code', Version 4C, LA-13709-M Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico, (2000)
17. Bronson F., Wang L., Validation of the MCNP Monte Carlo Code for Germanium Detector Gamma Efficiency Calibrations, *Proceedings of the Waste Management '96*, Tuscon, AZ, USA, February 28, (1996)
18. Cabrera M. E. M., Hernandez H. H., Peraza E. H., Martinez N. R., Reyes M. C., Instrumental Neutron Activation Analysis of Rocks from Cayajabos Petroleum Ore, *Appl. Radiat. Isotop.*, 52 (2000) 143-146
19. Chettle D. R., Fremlin J. H., Techniques of In Vivo Neutron Activation Analysis, *Phys. Med. Biol.*, 29 (9) (1984) 1011-1043
20. Clouvas A., Xanthos S., Antonopoulos-Domis M., Silva J., Monte Carlo based Method for Conversion of In-Situ Gamma Ray Spectra obtained with a portable Ge Detector to an Incident Photon Flux Energy Distribution, *Health Phys.*, 74, (1998), 216-230
21. Cohn S. H., In Vivo Neutron Activation Analysis: State of the Art and Future Prospects, *Med. Phys.*, 8 (2) (1981) 145-154
22. Collecchi P., Esposito M., Meloni S., Oddone M., Rare-earth Element Abundance in Tissues and Plasma of Healthy Subjects and Patients by neutron Activation Analysis, *J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar.*, 112 (1987) 473-479
23. Copley J. R. D., Stone C. A., Neutron Scattering and its Effect on Reaction Rates in Neutron Absorption Experiments, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.-A*, 281 (1989) 593-604
24. Cornelis R., Sabbioni E., Van der Venne M. T., Trace Element Reference Values in Tissues from Inhabitants of the European Community. VII. Review of Trace Elements in Blood, Plasma and Urine of the Belgian Population and a Critical Evaluation of their Possible Use as Reference Values, *The Sc. Tot. Envir.*, 158 (1994) 191-226
25. De Bruin M., *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 169 (1993) 5-12
26. De Corte F., k_0 Comparator NAA: Influences and Interactions, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 245 (2000) 157-161
27. De Corte F., Problems and Solutions in the Standardization of Reactor Neutron Activation Analysis, *J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar.*, 160 (1992) 63-75
28. De Corte F., Simonits A., Bellemans F., Freitas C., Recent Advances in the k_0 -Standardization of Neutron Activation Analysis: Extensions, Applications, Prospects, *J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar.*, 169 (1993) 125-158



Βιβλιογραφία

29. De Corte F., Van Sluijs R., Simonits A., Kucera J., Smodis B., Byrne A., De Wispelaere H. M. J., Bossus D., Frana J., Horak Z., Jacimovic R., Installation and Calibration of Kayzero-assisted NAA in Three Central European Countries via a Copernicus Project, *Appl. Radiat. Isotop.*, 55 (2001) 347-354
30. Dede K. M., Demeny A., Kuti Darai J., An Empirical Neutron Scattering Kernel for Plexiglas, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.-A*, 359 (1995) 542-546
31. Dickens J. K., Self-absorption of Gamma Rays Produced in Large Cylindrical Samples, *Nucl. Instr. and Meth.*, 98 (1972) 451-454
32. Dinescu L., Vata I., Cazan I. L., Macrin R., Carageorgheopol Gh., Rotarescu Gh., On the Efficiency Calibration of a Drum Waste Assay System, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.-A*, 487 (2002) 661-666
33. Dixon W. R., Self-Absorption Corrections for Large Gamma-Ray Sources, *Nucleonics*, 8-4 (1951) 68-72
34. Drozdowicz K., A Method to Calculate Thermal Neutron Diffusion Parameters for Hydrogenous Mixtures, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.-A*, 411 (1998) 121-129
35. Dung T. Q., New Measuring Technique for Assay of Radioactive Materials in Waste Drums, *Progress in Nuclear Energy*, 33 (1998) 403-420
36. Edel J., Sabbioni E., Pietra R., Rossi A., Torre M., Rizzato G., Fraioli P., Trace-Metal Lung-Disease - Invitro Interaction of Hard Metals with Human Lung and Plasma Components, *Sc. Tot. Environ.*, 95 (1990) 107-117
37. Ehmman W. D., Robertson J. D., Yates W., Nuclear and Radiochemical analysis, *Anal. Chem.*, 66 (1994) 229-251
38. Ehmman W. D., Robertson J. D., Yates W., Nuclear and Radiochemical analysis, *Anal. Chem.*, 64, (1992) 1-22
39. Ehmman W. D., Vance D. E., Studies of trace Element Involvement in Human Disease by in Vitro Activation Analysis, *J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar.*, 203 (1996) 429-445
40. Ellis K.J., Human Body Composition: In Vivo Methods, *Physiol. Rev.*, 80 (2) (2000) 649-680
41. Evans R. D., *The Atomic Nucleus*, McGraw-Hill Book Company, INC, New York - Toronto - London, (1955)
42. Evans G. J., Jervis R. E., Hair as a Bio-indicator: Limitations and Complications in the Interpretation of Results, *J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar.*, 110 (1987) 613-625
43. Fernandes E. A. N., Tagliaferro F. S., Bode P., Bacchi M. A., Sarries G. A., Characterization of Components of Waste Rock Piles of Future Uranium Mining Activities in Brazil using INAA and Statistical Data Treatment, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 244 (2000) 595-598



44. Fillieres D., Harbottle G., Sayre E. V., Neutron-Activation Study of Figurines, Pottery, and Workshop Materials from the Athenian Agora, Greece, *J. of Field Archaeology*, 10 (1983) 57-69
45. Fleming R. F., Neutron Self-shielding Factors for Simple Geometries, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 33 (1982) 1263-1268
46. Forsyth I. H., Five Sculptures from a Single Limestone Formation: The Case of Savigny, *The International Center of Medieval Art*, 33 (1994) 47- 51
47. Gilat J., Gurfinkel Y., Self-shielding in Activation Analysis, *Nucleonics*, 21 (8) (1963) 143-144
48. Girardi F., Guzzi G., Pauli J., Reactor Neutron Activation Analysis by the Single Comparator Method, *Anal. Chem.*, 37 (1965) 1085-1092
49. Glaros D., Kalef-Ezra J., Xatzikonstantinou Y., LoMonte A., Yasumura S., A facility for the in vivo measurement of Ca and P content in the human hand, *In vivo Body Composition Studies: Recent advances* (editor S. Yasumura et al) (1990) pp 121-123 Plenum Press, New York
50. Glasstone S., Edlund M. C., *The Elements of Nuclear Reactor Theory*, D. Van Nostrand Company, Inc., (1952)
51. Grass F., Bichler M., Dorner J., Holzner H., Ritschel A., Ramadan A., Westphal G. P., Gwozdz R., Application of short-lived radionuclides, in neutron activation analysis of biological and environmental samples, *Biol. Trace Elem. Res.*, 43-45 (1994) 33-46
52. Grasserbauer M., Zolotov Y. A., Morrison G. H., Stinger G., Karpov Y. A., Gimelfarb F. A., *General-Aspects of Trace Analytical Methods .A. Trace Analysis of Semiconductor-Materials .B. Distribution Analysis*, *Pure Appl. Chem.*, 57 (8) (1985) 1153-1170
53. Grimani A. P., Kalogeropoulos N., Kilikoglou V., Vassilaki-Grimani M. Use of NAA in Marine Environment and in Archaeology in Greece, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 219 (1997) 177-185
54. Hamilton E. I., Sabbioni E., Van der Venne M. T., Trace Element Reference Values in Tissues from Inhabitants of the European Community. VI. Review of Elements in Blood, Plasma and Urine and a Critical Evaluation of Reference Values for the United Kingdom Population, *Sc. Tot. Environ.*, 158 (1994) 165-190
55. Holmes L. L., Harbottle G., Compositional Fingerprinting: New Directions in the Study of the Provenance of Limestone, *The International Center of Medieval Art*, 33 (1994) 10-18
56. Hubbel, J. H., Seltzer S.M., *Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients 1 keV to 20 MeV for Elements Z=1 to 92 and 48 Additional Substances of Dosimetric Interest*, NISTIR 5632 (1995)



Βιβλιογραφία

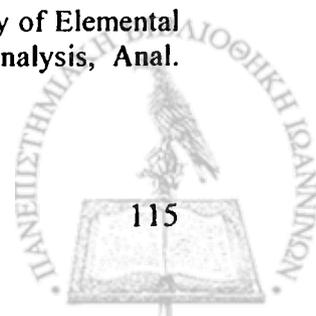
57. ICRU Report 44, Tissue Substitutes in Radiation Dosimetry and Measurement, International Commission on Radiation Units and Measurements (1989)
58. Ilnat M., Performance of NAA Methods in an International Interlaboratory Reference Material Characterization Campaign, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 245 (2000) 73-80
59. International Atomic Energy Agency, Neutron Fluence Measurements, Technical Reports Series No. 107, IAEA, Vienna (1970)
60. Irigaray J. L., Elmir H., Pepin D., Communal P. Y., Study of Arsenic Reabsorption in the Body by the Neutron Activation Analysis after Thermal Springs Treatment, *J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar.*, 113 (1987) 469-476
61. Jaegers P. Landsberger S., SELFABS: a PC Computer Code for the Determination of the Self-absorption Fractions of Gamma-Rays for Neutron Activation Analysis, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.-B*, 44 (1990) 479-483
62. Jervis R. E., Hairs, Criminals, Moonrocks, Metals, Diseases, Polluters! Where Next for Nuclear Analytical Chemistry?, *J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar.*, 160 (1992) 21-30
63. Kalef-Ezra J., Glaros D., Klouvas G., Hatzikonstantinou J., Karantanas A., Siamopoulos K., Pavlidis N., New evidence that tamoxifen does not induce osteoporosis: A nuclear activation analysis and absorptiometry, *Brit. J. Radiol.*, 65 (1992) 417-420
64. Kasviki K., Stamatelatos I. E., Kalef-Ezra J., Evaluation of Spatial Sensitivity of a Prompt-Gamma Neutron Activation Analysis Facility for the in Vivo Determination of Nitrogen in Small Animals, 11th International Conference in 'Modern Trends in Activation Analysis', University of Surrey, Guildford, U.K., 20-25 June (2004)
65. Kew M. C. ,and Mallett R. C., Hepatic Zinc Concentrations in Primary Cancer of the Liver, *Br. J. Cancer*, 29 (1974) 80-83
66. Kitamura K., Imazawa Y., Morimoto T., Sato K., Higuchi H., Imai K., Watari K., Determination of Thorium in the Organs of Diseased Thorotrast Patients, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 217 (1997) 175-178
67. Knoll G. F., Radiation Detection and Measurement, 3rd ed., John Wiley & Sons, Inc., (2000)
68. Kopel J. U., Houston D. H., Reference Manual for ENDF Thermal Neutron Scattering Data, General Atomics Report GA-8744, Revised (ENDF269), (1978)
69. Kucera J., Bencko V., Sabbioni E., Van der Venne M. T., Review of Trace Elements in Blood, Serum and Urine for the Czech and Slovak Populations and Critical Evaluation of their Possible Use as Reference Values, *Sc. Tot. Environ.*, 166 (1995) 211-234
70. Kucera J., Horakova J., Soukal L., Use of INAA in the Preparation of a Set of Soil Reference Materials with Certified Values of Total Element Contents, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 215 (1997) 147-155

71. Kucera J., Soukal L., Cadmium Losses on Wet and Dry Ashing of Plant Materials, *J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar.*, 193 (1995) 33-38
72. Lins J. P., Saiki M., Determination of Hafnium and Zirconium in Geological Materials by Neutron Activation Analysis, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 216 (1997) 199-201
73. Majewska U., Braziewicz J., Banas D., Kubala-Kukus A., Gozdz S., Pajek M., Zadrozna M., Jaskola M., Czyzewski T., Some Aspects of Statistical Distribution of Trace Element Concentrations in Biomedical Samples, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, 150 (1999) 254-259
74. Markesbery W. R., Ehmann W. D., Candy J. M., Ince P. G., Shaw P. J., Tandon L., Deibel M. A., Neutron Activation Analysis of Trace Elements in Motor Neuron Disease Spinal Cord, *Neurodegeneration*, 4 (1995) 383-390
75. Marques M. J., Salvador A., Morales-Rubio A. E., De la Guardia M., Trace Element Determination in Sediments: A Comparative Study between Neutron Activation Analysis (NAA) and Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry (ICP-MS), *Microchem. J.*, 65 (2000) 177-187
76. Marshall III J. H., Zumberge J. F., *Nucl. Geophys.*, 3-4 (1989) 445-459
77. Meghreblian R. V. and Holmes D. K., *Reactor Analysis*, McGraw-Hill Book Company, INC., New York (1960)
78. Meredith J., Romancing the Stone: Resolving Some Provenance Mysteries of the Brummer Collection at Duke University, *The International Center of Medieval Art*, 33 (1994), 38-46
79. Minoia C., Sabbioni E., Ronchi A., Gatti A., Pietra R., Nicolotti A., Fortaner S., Balducci C., Fonte A., Roggi C., Trace Element Reference Values in Tissues from Inhabitants of the European Community: IV. Influence of Dietary Factors, *Sc. Tot. Environ.*, 141 (1994) 181-195
80. Moens I. De Donder J., Lin Xi-lei, De Corte F., De Wispelaere A., Simonits A. and Hoste J., Calculation of the Photopeak Efficiency of Gamma Ray Detectors for Different Counting Geometries, *Nucl. Instr. Meth.*, 187 (1981) 451-472
81. Muramatsu Y., Yoshida S., Determination of I-129 and I-127 in Environmental Samples by Neutron Activation Analysis (NAA) and Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (ICP-MS), *J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar.*, 197 (1995) 149-159
82. Nakamura T., Monte Carlo Calculation of Efficiencies and Response Functions of Nai(Tl) Crystals for Thick Disk Gamma-Ray Sources and its Application to Ge(Li) Detectors, *Nucl. Instr. Meth.*, 105-1 (1972) 77-89
83. Nakamura T., Monte Carlo Calculation of Peak Efficiencies and Response Functions of Coaxial-Type Ge(Li) Detectors for Disk Gamma-Ray Sources, *Nucl. Instr. Meth.*, 131-3 (1975) 521-527

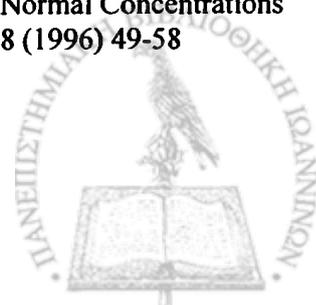


Βιβλιογραφία

84. Nakamura T., Suzuki T., Monte Carlo Calculation of the Peak Efficiencies of Ge(Li) and Pure Ge Detectors to Voluminal Sources and Comparison with Environmental Radioactivity Measurement, *Nucl. Instr. Meth.*, 205 (1983) 211-218
85. Navarro M., Lopez H., Perez V., Lopez M. C., Serum Selenium Levels during Normal Pregnancy in Healthy Spanish Women, *Sc. Tot. Environ.*, 186 (1996) 237-242
86. Ng KH, Ong SH, Bradley DA, Looi LM., Discriminant analysis of normal and malignant breast tissue based upon INAA investigation of elemental concentration, *Appl. Radiat. Isotop.*, 48 (1) (1997) 105-109
87. Nicholson J. K., Wilson I. D., High resolution proton magnetic resonance spectroscopy of biological fluids, *Prog. Nucl. Mag. Res. Sp.*, 21 (1989) 449-501
88. Noguchi M., Takeda K., Higuchi H., Semi-empirical γ -ray peak-efficiency Determination including self-absorption correction based on numerical integration, *Radioisotopes*, 32 (1981) 17-22
89. Ohmori S., Hashimoto K., Neutron Activation Analysis of Trace Metals in the Hair and Organs of Small Animals Treated Chronically with Hg and Mn, *J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar.*, 89 (1985) 277-285
90. Oliveira C., Salgado J., Analysis of Thermal-Neutron Flux Distributions in Bulk Coal by Monte-Carlo Simulation Studies, *Nucl. Geophys.*, 5-3 (1991) 329-337
91. Oliveira C., Salgado J., Elemental Composition of Coal by Using Prompt Gamma-Neutron Activation Analysis, *J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar.*, 167 (1993) 153-160
92. Orvini E., Pirico R., Mass Balance Evaluation in Power Plants Using Neutron Activation Analysis (NAA), *Microchem. J.*, 51 (1995) 159-165
93. Orvini E. Speziali M., Applicability and Limits of Instrumental Neutron Activation Analysis: State of the Art in the Year 2000, *Microchem. J.*, 59 (1998) 160-172
94. Orvini E., Speziali M., Salvini A., Herborg C., Rare Earth Elements Determination in Enviromental Matrices by INAA, *Microchem. J.*, 67, (2000) 97-104
95. Overwater R. M. W., The physics of big sample neutron activation analysis, PhD thesis, (1994)
96. Overwater R. M. W., Bode P., Computer simulations of the effects of inhomogeneities on the accuracy of large sample INAA, *Int. J. Appl. Radiat. Isotop.* 49 (1998) 967-976
97. Overwater R. M. W. Hoogenboom J. E., Accounting for the Thermal Neutron Flux Depression in Voluminous Samples for Instrumental Neutron Activation Analysis, *Nucl. Sc. Engineer.*, 117 (1994) 141-157
98. Overwater R. M. W., Bode P., De Goeij J. J. M., Hoogenboom J. E., Feasibility of Elemental Analysis of Kilogram-Size Samples by Instrumental Neutron Activation Analysis, *Anal. Chem.*, 68 (2) (1996) 341-348



99. Overwater R. M. W., Bode P., Goeij J., Gamma-ray Spectroscopy of Voluminous Sources, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.-A, 324 (1993) 209-218
100. Parr R.M., Zeisler R., Programs of the IAEA utilizing nuclear analytical techniques in the life sciences, Biol. Trace. Elem. Res., Review, 43-45 (1994) 651-61
101. Pomme S., Hardeman F., Etxebarria N., Robouch P., Performance Optimization of k_0 -INAA, J. Radioanal. Nucl. Chem., 215 (1997) 295-303
102. Pomme S., Hardeman F., Robouch P., Etxebarria N., De Corte F. A., De Wispelaere H.M. J., Van Sluijs R., Simonits A. P., General Activation and Decay Formulas and their Application in Neutron Activation Analysis with k_0 Standardization, Anal. Chem., 68 (1996) 4326-4334
103. Potts P. J., Webb P. C., X-ray Fluorescence Spectrometry, J. Geochem. Explor., 44 (1-3) (1992) 251-296
104. Rauf A. A., Jervis R. E., INAA of Human Scalp Hair for Environmental Monitoring of Indonesian and Canadian Population Groups, J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar., 161 (1) (1992) 201-213
105. Reus U., Westmeier W., Catalog of gamma-rays from radioactive decay, Part 1, Atomic Data and Nuclear Data Tables 29 (1983) 1-192
106. Reus U., Westmeier W., Catalog of gamma-rays from radioactive decay, Part 2, (Atomic Data and Nuclear Data Tables 29 (1983) 193-406
107. Rodenas J., Martinavarro A., Rius V., 'Validation of the MCNP code for the simulation of Ge-detector calibration', Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.-A, 450 (2000) 88-97
108. Rodenas J., Pasqual A., Zarza I., Serradell V., Ortiz J., Ballesteros L., Analysis of the influence of germanium dead layer on detector calibration simulation for environmental radioactive samples using the Monte Carlo method, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.-A, 496 (2003) 390-399
109. Roggi C., Sabbioni E., Minoia C., Ronchi A., Gatti A., Hansen B., Silva S., Maccarini L., Trace Element Reference Values in Tissues from Inhabitants of the European Community: IX. Harmonization of Statistical Treatment: Blood Cadmium in Italian Subjects, Sc. Tot. Environ., 166 (1995) 235-243
110. Rousset M., Fedoroff M., Multielement Instrumental Neutron Activation Analysis of Silver-Copper Coins, J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar., 92 (1985) 159-170
111. Rulon L. L., Robertson J. D., Lovell M. A., Deibel M. A., Ehmann W. D., Markesbery W. R., Serum Zinc Levels and Alzheimer's Disease, Biol. Trace Elem. Res., 75 (2000) 79-85
112. Sabbioni E., Kucera J., Pietra R., Vesterberg O., A Critical Review on Normal Concentrations of Vanadium in Human Blood, Serum, and Urine, Sc. Tot. Environ., 188 (1996) 49-58

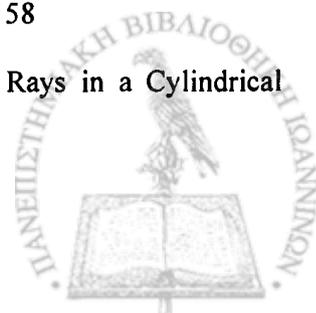


Βιβλιογραφία

113. Sabbioni E., Minoia C., Ronchi A., Hansen B. G., Pietra R., Balducci C., Trace Element Reference Values in Tissues for Inhabitants of the European Union: VIII Thallium in the Italian Population, *Sc. Tot. Environ.*, 158 (1994) 227-236
114. Sabbioni E., Mosconi G., Minoia C., Seghizzi P., The European Congress on Cobalt and Hard Metal Disease, *Sc. Tot. Environ.*, 150 (1994) 263-270
115. Saiki M, Saldiva PHN, Alice SH, Evaluation of trace elements in lung samples from coal miners using neutron activation analysis, *Biol. Trace Elem. Res.*, 71-2 (1999) 291-297
116. Schuhmacher M., Domingo J. L., Corbella J., Zinc and Cooper Levels in Serum and Urine: Relationship to Biological, Habitual and Environmental Factors, *Sc. Tot. Environ.*, 148 (1994) 67-72
117. Schulz D., Heller W., Ulrich H., Kupsch H. and Segebale C., The Instrumental Analysis of Inactive Tracers by Photon-Activation, *J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar.*, 168 (2) (1993) 385-392
118. Scott M. C., Chettle D. R., In Vivo Elemental Analysis in Occupational Medicine, *Scand. J. Work. Environ. Health*, 12 (2) (1986) 81-96
119. Segebade C., Weise H. -P., Lutz G. J., Adams F., Photon activation analysis, De Gruyter, Berlin (1988) ISBN 3-11-007250-5
120. Simonits A., De Corte F., Hoste J., Single Comparator Methods in Reactor Neutron Activation Analysis, *J. Radioanal. Chem.*, 24 (1975) 31-46
121. Simonits A., De Corte F., Moens L., Hoste J., Status and Recent Developments in the k_0 -Standardization Method, *J. Radioanal. Chem.*, 72 (1982) 209-230
122. Smodis B., Bleise A., Neutron Activation Analysis in the IAEA Projects on Air Pollution, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 244 (2000) 97-102
123. Stamatelatos I.E., Kasviki K., Green St., Gainey M., Kalef-Ezra J., Beddoe A., Prompt-Gamma Neutron Activation Facility for in Vivo Body Composition Studies in Small Animal, *Anal. Bioanal. Chem.*, 379(2) (2004) 192-197
124. Stamatelatos I.E., Katopodis K., Bersos Y., Kalef-Ezra J., Lefkopoulos G., Siamopoulos K., Serum aluminum determination by instrumental neutron activation analysis in long term haemodialysis patients, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 241 (1999) 483-486
125. Steinnes E., Neutron Activation Techniques in Environmental Studies, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 243 (2000) 235-239
126. Stone S. F., Bernasconi G., Haselberger N., Makarewicz M., Ogris R., Wobrauschek P., Zeisler R., Detection and Determination of Selenoproteins by Nuclear Techniques, *Biol. Trace Elem. Res.*, 43-5 (1994) 299-307
127. Sutcliffe J. F., A Review of In Vivo Experimental Methods to Determine the Composition of the Human Body, *Phys. Med. Biol.*, 41 (5) (1996) 791-833



128. Taczanowski S., Correction for the Neutron and Gamma Attenuation Effects in 14MeV Neutron Activation Analysis, Nucl. Instr. Meth., 144 (1977) 299-309
129. Takeuchi T., Nakano Y., Aoki A., Ohmori S., Tsukatani T., Comparisons of Elemental Concentrations in Hair of the Inhabitants of Heavy Metal Polluted Areas with those of Normal Japanese, J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar., 112 (1987) 259-272
130. Tian W., Ni B., Wang P., Nie H., Suitability of NAA for Certification of Reference Materials for Multielements, J. Radioanal. Nucl. Chem., 245 (2000) 51-66
131. Trubert D., Duplatre G., Abbe J.C., Hydrogen Effects in Neutron-Activation Analysis, Appl. Radiat. Isotop., 42 8 (1991) 699-705
132. United States Atomic Energy Commission, Reactor Physics Constants, Argonne National Laboratory, Report ANL-5800 (1963)
133. Vartsky D., Goldberg M. B., Bar D., Goldschmidt A., Feldman G., Sayag E., Katz D., Stronach I. M. Stark J. W., Prestwich W. V., McNeill F. E., Chettle D. R., Gamma Ray Nuclear Resonance Absorption: An Alternative Method for *in Vivo* Body Composition Studies, Ann. NY Acad. Sc., 904 (2000) 236-246
134. Vartsky D., Wielopolski L., Ellis K. J., Cohn S. H., The Use of Nuclear Resonant Scattering of Gamma Rays for *in Vivo* Measurement of Iron, Nucl. Instr. Meth., 193 (1982) 359-364
135. Wielopolski L., Vartsky D., Pierson R., Goldberg M., Heymsfield S., Yasumura S., Melnychuk S. T., Sredniawsky J., Gamma Resonance Absorption New Approach in Human Body Composition Studies, Ann. NY Acad. Sc., 904 (2000) 229-235
136. Xiao L., Zhang Y. H., Li Q. G., Zhang Q. X., Wang K., INAA of Elemental Contents in Fingernails of Esophageal Cancer Patients, J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar., 195 (1995) 43-49
137. Zaichick V., Tsyb A. F., Bagirov S., Neutron Activation Analysis of Saliva: Application in Clinical Chemistry, Environmental and Occupational Toxicology, J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar., 195 (1995) 123-132
138. Zaichick V. Y., Tsyb A. F., Vtyurin B. M., Trace Elements and Thyroid Cancer, Analyst, 120 (1995) 817-821
139. Zhuk L. I., Kist A. A., Mikholskaya I. N., Osinskaya N. S., Tillayev T., Tursunbayev S. L., Agzamova S. V., Elemental Blood Composition of the Inhabitants of Uzbekistan, J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar., 120 (1988) 369-377
140. Zikovskiy L., A Computer-Program for Calculating Ge(Li) Detector Counting Efficiencies for Marinelli Beakers, J. Radioanal. Nucl. Chem.-Ar., 132 (1) (1989) 153-158
141. Zikovskiy L., Correction Factors for the Self-absorption of Gamma Rays in a Cylindrical Sample, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.-B, 4 (1984) 421-423



Βιβλιογραφία

142. Στρωματιά Φ., Ανάλυση με Νετρονική Ενεργοποίηση Μεγάλων Βιολογικών Δειγμάτων, Διπλωματική Εργασία Msc, Ιωάννινα (2000)



ΔΗΜΟΣΙΕΥΣΕΙΣ ΣΧΕΤΙΚΕΣ ΜΕ ΤΗ ΔΙΔΑΚΤΟΡΙΚΗ ΔΙΑΤΡΙΒΗ

Από την παρούσα μελέτη προέκυψαν μέχρι την ημερομηνία κατάθεσης οι ακόλουθες ξενόγλωσσες δημοσιεύσεις:

Tzika F., Stamatelatos I.E., Kalef-Ezra J., Neutron Activation Analysis of Large Volume Samples: The Influence of Inhomogeneity, Proceedings 11th International Conference in 'Modern Trends in Activation Analysis', University of Surrey, Guildford, U.K., 20-25 June 2004

Tzika F., Stamatelatos I.E., Kalef-Ezra J., Bode P., Large Sample Neutron Activation Analysis: Correction for Neutron and Gamma Attenuation, Nukleonika, 49 (3) (2004) 115-121

Tzika F., Stamatelatos I.E., Thermal Neutron Self-Shielding Correction Factors for Large Sample Instrumental Neutron Activation Analysis Using the MCNP Code, Nucl. Instrum. Meth. B, 213 (2004) 177-181

Tzika F., Stamatelatos I.E., Kalef-Ezra J., Bode P., Large Sample Neutron Activation Analysis Facility at GRR-1, Proceedings International Conference on Isotopic and Nuclear Analytical Techniques for Health and Environment, IAEA-CN-103, Vienna, Austria, 10-13 June 2003

Stamatelatos I. E., Tzika F., Fakinos E., Green St., Large Sample Neutron Activation Analysis Facilities Design Using the MCNP Code, 7th MCNEG Monte Carlo User Group Meeting, The Royal Marsden Hospital, London, UK, 9-10 April 2001

Tzika F., Stamatelatos I. E., Lefcopoulos G., Kalef-Ezra J. K., Instrumental Neutron Activation Analysis of Biological Materials via Short-lived Radio-nuclides, Second European Symposium and Third TEMPERE Workshop on Biomedical Engineering and Medical Physics, Department of Medical Physics, University of Patras, Greece, October 2000



ΠΕΡΙΛΗΨΗ ΣΤΗΝ ΕΛΛΗΝΙΚΗ

Ανάπτυξη και βιοϊατρικές εφαρμογές τεχνικής ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση δειγμάτων μεγάλου όγκου

Σκοπός της παρούσας μελέτης ήταν ο σχεδιασμός και η ανάπτυξη μιας διάταξης ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση δειγμάτων μεγάλου όγκου (έως και 5 L) στη θερμική στήλη του ερευνητικού αντιδραστήρα του Ινστιτούτου Πυρηνικής Τεχνολογίας και Ακτινοπροστασίας του ΕΚΕΦΕ «Δημόκριτος». Στα πλαίσια αυτής της εργασίας αναπτύχθηκαν ειδικές πειραματικές διατάξεις ακτινοβολήσης σε πεδίο νετρονίων και ανίχνευσης ακτίνων γ καθώς και μέθοδοι διόρθωσης για τα φαινόμενα (α) της διαταραχής του πεδίου νετρονίων και της αυτο-απορρόφησής τους στο μεγάλο δείγμα και (β) της εξασθένησης των ακτίνων γ στο υλικό του δείγματος και της απόδοσης του ανιχνευτή για χωρική κατανομή ενεργότητας.

Οι αλγόριθμοι που αναπτύχθηκαν βασίζονται στην εξομοίωση των διατάξεων ακτινοβολήσης και ανίχνευσης ακτίνων γ μέσω του κώδικα MCNP, και δίνουν τη διόρθωση για κάθε μέγεθος του προς ανάλυση δείγματος ακόμη και όταν τα κύρια συστατικά του δεν είναι γνωστά εκ των προτέρων.

Εκτιμήθηκε η κατανομή της ροής θερμικών νετρονίων σε δείγματα με εύρος μακροσκοπικής ενεργού διατομής απορρόφησης νετρονίων, Σ_a , από 0.002 cm^{-1} έως 24 cm^{-1} , και λόγου διατομής σκέδασης προς συνολική διατομή, Σ_s/Σ_t , από 0.01 έως 0.98. Τα αποτελέσματα των υπολογισμών χρησιμοποιήθηκαν ως βάση δεδομένων για την εξαγωγή ημι-εμπειρικής καμπύλης βαθμονόμησης του συντελεστή διόρθωσης της εξασθένησης νετρονίων f_n σε συνάρτηση με μια αδιάστατη μεταβλητή x_0 η οποία εμπεριέχει τις διαστάσεις του κυλινδρικού δείγματος r και h καθώς και το μήκος διάχυσης του υλικού του δείγματος L . Για τη γενική περίπτωση άγνωστης σύστασης δείγματος, αναπτύχθηκε μια ημι-εμπειρική μέθοδος προσδιορισμού του συντελεστή f_n από καμπύλες βαθμονόμησης που προκύπτουν υπολογιστικά για κάθε μέγεθος δείγματος. Η μέθοδος βασίζεται σε μετρήσεις της ροής θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος και σε σημείο αναφοράς στο γραφίτη κατά την ακτινοβολήση, καθώς και της ροής αναφοράς στην περιοχή του δείγματος πριν την ακτινοβολήση με ανιχνευτές ελασμάτων χρυσού. Ειδική περίπτωση απετέλεσαν τα υδρογονούχα δείγματα για τα οποία διαπιστώθηκε η ανάγκη επιπλέον διόρθωσης του συντελεστή f_n η οποία εξαρτάται από τη συγκέντρωση του υδρογόνου στο δείγμα.

Πραγματοποιήθηκαν υπολογισμοί του συντελεστή διόρθωσης της απόδοσης του ανιχνευτή και της εξασθένησης των ακτίνων γ στο υλικό του δείγματος, f_γ , για δείγματα πυκνότητας $\rho \leq 11.5 \text{ g/cm}^3$ με μαζικούς συντελεστές εξασθένησης $\mu/\rho \leq 4 \text{ cm}^2/\text{g}$. Για δείγματα γνωστής



μακροσκοπικής σύστασης, το μοντέλο του ανιχνευτή μπορεί να χρησιμοποιηθεί απευθείας για τον υπολογισμό του συντελεστή f_γ . Για τη γενική περίπτωση άγνωστης σύστασης δείγματος τα αποτελέσματα των υπολογισμών για τον συντελεστή f_γ , χρησιμοποιήθηκαν ως βάση δεδομένων για την εξαγωγή καμπύλης βαθμονόμησης του συντελεστή f_γ σε συνάρτηση με την αδιάστατη μεταβλητή $\mu \cdot r \cdot h / [(r + h)]$ η οποία εμπεριέχει τις διαστάσεις του κυλινδρικού δείγματος r και h καθώς και τον γραμμικό συντελεστή εξασθένησης $\mu(E_\gamma)$ του υλικού. Ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης του υλικού προσδιορίζεται πειραματικά, πριν από την ακτινοβολήση του δείγματος με μετρήσεις διέλευσης ακτίνων γ από κατευθυνόμενη δέσμη πολύ-ενεργειακής πηγής φωτονίων (π.χ. ^{152}Eu).

Τα κυλινδρικά δείγματα που μελετήθηκαν είχαν ακτίνα $r \leq 7.5 \text{ cm}$ και ύψος $h \leq 30 \text{ cm}$ (αντίστοιχο όγκο $V \leq 5.3 \text{ L}$) και θεωρήθηκαν ομογενή ως προς την κατανομή των κυρίαρχων στοιχείων και των ιχνοστοιχείων μέσα στον όγκο τους. Οι περιορισμοί εφαρμογής των μεθόδων διόρθωσης ήταν $x_0 > 15$, $\mu \cdot r \cdot h / (r + h) \leq 20$ για αποστάσεις πηγής ανιχνευτή $SDD \geq 20 \text{ cm}$. Οι υπολογισμοί είναι δυνατόν να επεκταθούν ώστε να καλύψουν επιπλέον ανάγκες εφαρμογών ως προς το σχήμα και το μέγεθος των δειγμάτων.

Τα όρια εφαρμογής της τεχνικής, σε δείγματα άγνωστης σύστασης, προσδιορίστηκαν υπό την έννοια της εκτίμησης σφαλμάτων στα αποτελέσματα για ακραίες ειδικές περιπτώσεις ανομοιογένειας. Διαπιστώθηκε ότι τα αποτελέσματα της ανάλυσης δεν είναι τόσο ευαίσθητα ως προς τις ανομοιογένειες σύστασης. Αντίθετα η ανομοιογενής κατανομή στα ιχνοστοιχεία ενδιαφέροντος είναι δυνατόν να εισάγει σφάλματα στους υπολογισμούς κατά την ακτινοβολήση και ιδιαίτερα κατά την ανίχνευση των ακτίνων γ . Στην τελευταία περίπτωση το σφάλμα αυξάνεται όσο μειώνεται η ενέργεια των ακτίνων γ .

Η δυνατότητα εφαρμογής της μεθοδολογίας επιδείχθηκε πιλοτικά με τη στοιχειακή ανάλυση δειγμάτων βρεφικού γάλακτος και πρωτεϊνικού παρασκευάσματος σε μορφή σκόνης. Τα αποτελέσματα της ανάλυσης οδηγούν στο συμπέρασμα ότι συνολική ακρίβεια της ανάλυσης καλύτερη από 10 % είναι εφικτή.

Συμπερασματικά, η EANE δειγμάτων μεγάλου όγκου προσφέρει δυνατότητες ανάλυσης σε δείγματα που είναι δύσκολο να ομογενοποιηθούν, ή υλικά υψηλής καθαρότητας των οποίων η άμεση ανάλυση θα έλυνε προβλήματα απώλειας στοιχείων ή ρύπανσης του δείγματος κατά την προετοιμασία του. Επιπλέον είναι μία τεχνική η οποία μπορεί να χρησιμοποιηθεί στις περιπτώσεις που η καταστροφή του δείγματος δεν είναι επιθυμητή (π.χ. ιατροδικαστική, παλαιοανθρωπολογία,



Περίληψη στην ελληνική

αρχαιολογία). Ειδικότερα, στο πεδίο της βιο-ιατρικής, προσφέρει τη μοναδική δυνατότητα της ανάλυσης ολόκληρων οργάνων, βιολογικών ιστών καθώς και του σώματος μικρών ζώων με προοπτική εφαρμογής σε τοξικολογικές και διαιτολογικές έρευνες καθώς και σε μελέτες μεταβολισμού.

SUMMARY

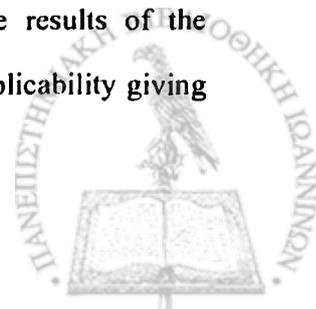
Development and biomedical applications of a large sample neutron activation analysis facility

The aim of the present study was the design development of a neutron activation analysis facility for large volume samples (up to 5 L) at the research reactor's thermal neutron column at the Institute of Nuclear Technology and Radiation Protection of NCSR 'Demokritos'. Special experimental facilities were developed for neutron irradiation and gamma ray detection as well as methods to correct for the effects of (a) neutron field perturbation and neutron self-absorption within the sample and (b) gamma ray attenuation within the sample material and volume source detection efficiency.

The derivation of correction algorithms was based on modeling in detail both the irradiation and counting facilities using the MCNP code. The proposed methodology derives the correction for each sample size based on no prior knowledge of the sample matrix composition.

Neutron flux distribution calculations were performed in samples of macroscopic neutron absorption cross section, Σ_a , ranging between 0.002 cm^{-1} to 24 cm^{-1} and scattering to total cross section ratio, Σ_s/Σ_t , ranging between, 0.01 to 0.98. The results of the computations were used to derive a semi-empirical calibration curve of universal applicability giving the neutron self-shielding correction factor, f_n , as a function of the non-dimensional quantity x_0 which combines the cylindrical sample dimensions, r and h , with the neutron diffusion length of the sample material L . In the general case of unknown matrix composition, the factor f_n is determined from appropriate MCNP derived calibration curves depending on the sample size. The correction method is based on experimental measurements of the thermal neutron flux on the surface of the sample and a reference point in graphite during irradiation, as well as the reference flux at the sample position before the insertion of the sample, using activation foils. Hydrogenous materials were studied separately and the results showed that further correction of factor f_n is required depending on the hydrogen concentration of the sample material.

Calculations were performed to estimate the volume source efficiency and gamma attenuation correction factor, f_γ , for samples of density $\rho \leq 11.5 \text{ g/cm}^3$ and mass attenuation coefficient $\mu/\rho \leq 4 \text{ cm}^2/\text{g}$. The detector model can be directly applied on samples of known matrix to derive the correction factor f_γ . For the general case of unknown matrix composition, the results of the computations were used to derive a semi-empirical calibration curve of universal applicability giving



the correction factor f_γ as a function of the non-dimensional variable $\mu \cdot r \cdot h / [(r + h)]$ which combines the cylindrical sample dimensions, r and h , with the linear attenuation coefficient of the sample material $\mu(E_\gamma)$. The linear attenuation coefficient is experimentally derived prior to irradiation via gamma ray transmission measurements employing a multi-energy collimated gamma ray source (e.g. ^{152}Eu).

The cylindrical samples studied were of radius $r \leq 7.5$ cm and height $h \leq 30$ cm (corresponding to a volume of $V \leq 5.3$ L). Both major and trace elements were considered to be homogeneously distributed in the sample material. The requirements for the technique's applicability are fulfilled as long as $x_0 > 15$ and $\mu \cdot r \cdot h / (r + h) \leq 20$, for source to detector distance $SDD \geq 20$ cm. The computations can be easily extended to other sample sizes and shapes of interest.

The limits of the proposed methodology were examined in terms of error assessment in the analysis of macroscopically non-uniform samples for selected extreme inhomogeneity cases. Limited sensitivity of the technique's overall accuracy was observed towards matrix inhomogeneities. Inhomogeneities on the distribution of trace elements of interest however, may lead to severe errors in the analysis. These errors become significant during gamma ray detection and the effect increases with decreasing gamma ray energy.

The applicability of the method was verified by analyzing samples of baby milk and protein supplement in powder form. The analysis results indicate that an overall accuracy of 10 % can be achieved for the analysis of large volume samples.

LSNAA facility will provide new analytical possibilities for samples with homogenization difficulties or high purity materials. The direct analysis of these samples would solve problems associated with elemental loss or contamination during sample preparation procedures. Moreover, the LSNAA technique can be used whenever non destructive methods are required (e.g. forensic medicine, human paleontology, and archaeology). In the field of biomedical applications in particular, the facility provides a unique analytical capability of whole organs, biological tissues and small animal bodies for application in toxicological, dietary and metabolic studies.



ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Α

ACCEPTANCE TESTS DATA SHEET

GEM Series HPGe (High-Purity Germanium) Coaxial Detector System

Model and Serial Numbers

Reference Data

Detector Model No	GEM 80	Ship Date	6/4/02
Cryostat Configuration	SH-GEM		
Dewar Model	DWR-30		
Preamplifier Model	257P		
H.V. Filter Model	138		

High Voltage Bias

Recommended Operation Bias, POSITIVE 2500 V.

Performance Specifications

	Warranted		Measured by ORTEC		Measured after Installation	
Resolution (FWHM) at 1.33 MeV, ⁶⁰ Co	2.00	keV	1.67	keV	1.66	keV
Peak-to-Compton Ratio, ⁶⁰ Co	77:1		93:1		89:1	
Relative Efficiency at 1.33 MeV, ⁶⁰ Co	80	%	85	%	85	%
Peak Shape (FWTM/FWHM), ⁶⁰ Co	2.0		1.9		1.9	
Peak Shape (FWFM/FWHM), ⁶⁰ Co			2.5		2.5	
Resolution (FWHM) at 122 keV, ⁵⁷ Co	1.10	keV	0.67	keV	0.74	keV

Other: All measurements were made according to American National Standard for Calibration and Use of Germanium Spectrometers for the Measurement of Gamma-Ray Emission Rates of Radionuclides, ANSI N42.14-1999 except the Relative Efficiency Measurement which was adjusted to the manufacturer's (ORTEC) procedure.

The tests took place after the installation of the total spectrometry system including the DSPEC-plus unit.

Date: 12/09/02

