

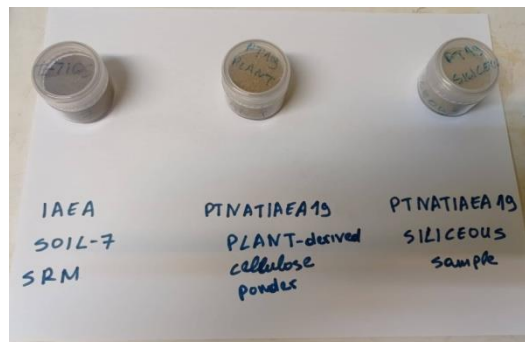


Διπλωματική εργασία

Δημητρίου Κρουσανιωτάκη

*Σπουδαστή της Σχολής Εφαρμοσμένων Μαθηματικών και Φυσικών
Επιστημών Ε.Μ.Π.*

**«Ανάλυση στερεών περιβαλλοντικών δειγμάτων με Νετρονική
Ενεργοποίηση και γ-Φασματοσκοπία»**



Επιβλέπουσα

Ρούνη Παναγιώτα, Λέκτορας ΕΜΠ

ΤΡΙΜΕΛΗΣ ΕΠΙΤΡΟΠΗ

Μάριος Αναγνωστάκης, Καθηγητής, Σχολή Μηχανολόγων Μηχανικών
Μαρία Διακάκη, Επίκουρη Καθηγήτρια Σχολής ΕΜΦΕ
Παναγιώτα Ρούνη, Λέκτορας, Σχολή Μηχανολόγων Μηχανικών

Αθήνα, Οκτώβριος 2022

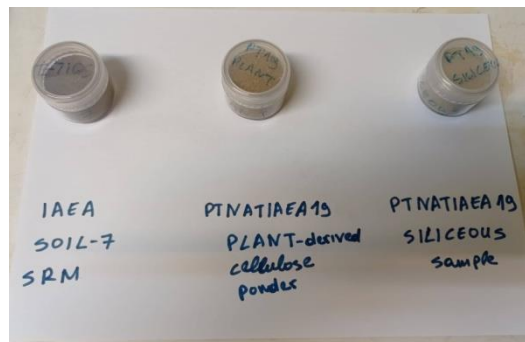


Διπλωματική εργασία

Δημητρίου Κρουσανιωτάκη

*Σπουδαστή της Σχολής Εφαρμοσμένων Μαθηματικών και Φυσικών
Επιστημών Ε.Μ.Π.*

**«Ανάλυση στερεών περιβαλλοντικών δειγμάτων με Νετρονική
Ενεργοποίηση και γ-Φασματοσκοπία»**



Επιβλέπουσα

Ρούνη Παναγιώτα, Λέκτορας ΕΜΠ

ΤΡΙΜΕΛΗΣ ΕΠΙΤΡΟΠΗ

Μάριος Αναγνωστάκης, Καθηγητής, Σχολή Μηχανολόγων Μηχανικών
Μαρία Διακάκη, Επίκουρη Καθηγήτρια Σχολής ΕΜΦΕ
Παναγιώτα Ρούνη, Λέκτορας, Σχολή Μηχανολόγων Μηχανικών

Αθήνα, Οκτώβριος 2022

ΠΡΟΛΟΓΟΣ

Η παρούσα Διπλωματική Εργασία εκπονήθηκε στο πλαίσιο της ολοκλήρωσης των σπουδών μου στην σχολή Εφαρμοσμένων Μαθηματικών και Φυσικών Επιστημών, την περίοδο 2021-2022. Ασχολείται με την τεχνική της ανάλυσης με Νετρονική Ενεργοποίηση & γ-φασματοσκοπία, μια τεχνική που υλοποιείται στο Εργαστήριο Πυρηνικής Τεχνολογίας του ΕΜΠ για τον προσδιορισμό μη ραδιενεργών ιχνοστοιχείων σε δείγματα περιβαλλοντικού ενδιαφέροντος.

Θα ήθελα να ευχαριστήσω την Λέκτορα κα. Παναγιώτα Ρούνη για την εμπιστοσύνη της κατά την ανάθεση του συγκεκριμένου θέματος και για τη συνεργασία σε όλα τα στάδια εκπόνησης της Διπλωματικής Εργασίας καθώς και τον Καθηγητή κ. Μάριο Αναγνωστάκη για τη συνδρομή του στη διεκπεραίωση των πειραμάτων και τις συμβουλές του. Ακολούθως θα ήθελα να ευχαριστήσω τον Επίκουρο Καθηγητή κ. Ν. Πετρόπουλο και όλο το προσωπικό του Τομέα Πυρηνικής Τεχνολογίας για την υποστήριξή τους όπου χρειάστηκε.

Τέλος, θα ήθελα να αναφερθώ στους γονείς μου, την αδερφή μου και όλους τους κοντινούς μου ανθρώπους που με στήριξαν κατά την διάρκεια των σπουδών μου συνολικά, όσο και κατά την διάρκεια της εκπόνησης της διπλωματικής εργασίας.

Κρουσανιωτάκης Δημήτριος

© (2022) Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο. Allrights Reserved. Απαγορεύεται η αντιγραφή, αποθήκευση και διανομή της παρούσας εργασίας, εξ ολοκλήρου ή τμήματος αυτής, για εμπορικό σκοπό. Επιτρέπεται η ανατύπωση, αποθήκευση και διανομή για σκοπό μη κερδοσκοπικό, εκπαιδευτικής ή ερευνητικής φύσης, υπό την προϋπόθεση να αναφέρεται η πηγή προέλευσης και να διατηρείται το παρόν μήνυμα. Ερωτήματα που αφορούν τη χρήση της εργασίας για κερδοσκοπικό σκοπό πρέπει να απευθύνονται προς το συγγραφέα. Οι απόψεις και τα συμπεράσματα που περιέχονται σε αυτό το έγγραφο εκφράζουν το συγγραφέα και δεν πρέπει να ερμηνευτεί ότι αντιπροσωπεύουν τις επίσημες θέσεις του Εθνικού Μετσόβιου Πολυτεχνείου.

Πίνακας περιεχομένων

ΠΕΡΙΛΗΨΗ	6
ABSTRACT.....	7
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 1 ^ο Δομή Εργασίας	8
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 2 ^ο Ανάλυση γ-Φασματοσκοπίας και Ανιχνευτές	
2.1 Ακτινοβολία-γ και γ-φασματοσκοπία	11
2.2 Ανιχνευτές ακτινοβολίας-γ	12
2.2.1 Συνεχές υπόστρωμα Compton	14
2.2.2 Ανιχνευτές με συστήματα μείωσης συνεχούς υποστρώματος	15
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 3 ^ο Ανάλυση με Νετρονική Ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία	
3.1 Κατηγορίες νετρονίων	19
3.2 Αλληλεπίδραση νετρονίων με την ύλη.....	20
3.3 Ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία	23
3.3.1 Ραδιενέργεια ενεργοποιημένων πυρήνων	25
3.3.2 Τεχνικές Ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία	27
3.4 Πηγές νετρονίων	29
3.5 Ποσοτικός προσδιορισμός με Νετρονική ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία	31
3.5.1 Βαθμονόμηση της μεθόδου ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία	32
3.6 Πλεονεκτήματα και μειονεκτήματα της ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία	37
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 4 ^ο Βαθμονόμησης της τεχνικής ανάλυσης στερεών δειγμάτων με Νετρονική ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία στο ΕΠΤ 4.1 Εισαγωγή.....	39
4.2 Πηγή Νετρονίων Am-Be του ΕΠΤ- ΕΜΠ	40
4.3 Ανιχνευτές ακτινοβολίες-γ του ΕΠΤ-ΕΜΠ.....	42
4.3.1 Ανιχνευτής Γερμανίου ευρείας κλίμακας ΧtRa του ΕΠΤ-ΕΜΠ.....	43
4.3.2 Σύστημα Compton-Suppression στον ΧtRa του ΕΠΤ-ΕΜΠ.....	45
4.4 Βαθμονόμηση της τεχνικής NAA στο ΕΠΤ-ΕΜΠ	
4.4.1 Πιστοποιημένο υλικό αναφοράς SOIL-7(ΙΑΕΑ)	48
4.4.2 Βαθμονόμηση NAA με το SOIL7 για βραχύβια ισότοπα.....	51
4.4.3 Βαθμονόμηση NAA με το SOIL7 για ισότοπα μεσαίας ημιζωής.....	53
4.5 Συμπεράσματα	58

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 5 ^ο Ανάλυση με NAA και γ-φασματοσκοπία αγνώστων στερεών περιβαλλοντικών δειγμάτων στο ΕΠΤ	60
5.1 Ανάλυση με NAA και γ-φασματοσκοπία δειγμάτων Άσκησης Διαβαθμονόμησης της ΙΑΕΑ (ΡΤΝΑΤΙΑΕΑ19)	61
5.1.1 Ανάλυση με NAA και γ-φασματοσκοπία δείγματος χώματος (Clay) της ΙΑΕΑ	61
5.1.2 Ανάλυση με NAA και γ-φασματοσκοπία δείγματος κυτταρίνης (Plant) της ΙΑΕΑ	63
5.1.3 Αξιολόγηση των αναλύσεων με NAA και γ-φασματοσκοπία των δειγμάτων της Άσκησης Διαβαθμονόμησης της ΙΑΕΑ (ΡΤΝΑΤΙΑΕΑ19)	65
5.2 Ανάλυση με NAA και γ-φασματοσκοπία ιζήματος από το Λαύριο Αττικής	69
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 6 ^ο Σύνοψη-Συμπεράσματα	72
ΒΙΒΛΙΟΓΡΑΦΙΑ	80
ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Α	
ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Β	
ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Γ	

ΠΕΡΙΛΗΨΗ

Αντικείμενο της παρούσας Διπλωματικής Εργασίας ήταν η ανάλυση στερεών δειγμάτων περιβαλλοντικής σημασίας, όπως χώμα, αποξηραμένη φυτική κυτταρίνη και ιζημα, για τον προσδιορισμό μη ραδιενεργών στοιχείων, με τη μέθοδο της Ενεργοποίησης με Νετρόνια και στη συνέχεια γ-φασματοσκοπία των 'ενεργοποιημένων' δειγμάτων. Ορισμένα από τα μη ραδιενεργά στοιχεία των δειγμάτων στη διάρκεια της τοποθέτησής τους στη δεξαμενή με την πηγή νετρονίων, ενσωματώνουν ένα νετρόνιο και μεταπίπτουν σε αντίστοιχα ραδιενεργά ισότοπα που ανιχνεύονται όταν τοποθετηθούν στον ανιχνευτή γ-ακτινοβολίας. Οι αναλύσεις πραγματοποιήθηκαν στο Εργαστήριο Πυρηνικής Τεχνολογίας του ΕΜΠ. Συγκεκριμένα η Νετρονική Ενεργοποίηση έγινε με ισοτοπική πηγή νετρονίων Am-Be, και η γ-φασματοσκοπική ανάλυση των ενεργοποιημένων δειγμάτων έγινε σε ανιχνευτή Ge εφοδιασμένο με σύστημα Compton suppression. Για τη βαθμονόμηση της τεχνικής αυτής για τον διαθέσιμο εξοπλισμό και τη γεωμετρία των δειγμάτων που επιλέχθηκε, χρησιμοποιήθηκε η συγκριτική μέθοδος με υλικό αναφοράς το SOIL-7 του ΔΟΑΕ. Για την ανάλυση των δειγμάτων ακολουθήθηκαν δύο σενάρια/συνδυασμοί νετρονικής ενεργοποίησης και γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης. Το πρώτο σενάριο (1h NA και 15min γ-φασματοσκοπία) στόχευε στον προσδιορισμό των βραχύβιων ισωτόπων. Το δεύτερο σενάριο (111h NA και γ-φασματοσκοπία από 1 ώρα ως 6 ημέρες) στόχευε σε ισότοπα μέτριου χρόνου ημιζωής. Ακολουθώντας τα σενάρια αυτά για δείγμα από το SOIL-7, προέκυψαν συντελεστές βαθμονόμησης για τα στοιχεία Al και Mg (βραχύβια) και Mn, K, Na, As (μέτριας ημιζωής). Με τους συντελεστές αυτούς και ακολουθώντας τα δύο σενάρια ακτινοβολήσης και γ-φασματοσκοπίας αναλύθηκαν δύο άγνωστα δείγματα του ΔΟΑΕ (χώμα και φυτική κυτταρίνη). Τα αποτελέσματα που προέκυψαν ήταν δυνατόν να αξιολογηθούν καθώς, πριν το πέρας της ΔΕ, αναρτήθηκε η σχετική αναφορά του ΔΟΑΕ. Τα αντίστοιχα τα U-score και Z-score ήταν ικανοποιητικά και επιβεβαίωσαν την επιλογή συγκεκριμένων σεναρίων γ-ακτινοβολήσης για κάθε ισότοπο. Στη συνέχεια τα σενάρια αυτά χρησιμοποιήθηκαν για την ανάλυση ιζήματος από την περιοχή του Λαυρίου στο οποίο προσδιορίστηκαν τα στοιχεία Al, Mg, Mn, K, Na, As.

ABSTRACT

The subject of this Diploma Thesis was the analysis of solid samples of environmental importance, such as soil, dried plant cellulose and sediment, for the determination of non-radioactive elements, by the Neutron Activation method and then gamma-spectroscopy of the 'activated' samples. Some of the non-radioactive elements of the samples during their placement in the neutron source tank incorporate a neutron and change to corresponding radioactive isotopes that are detected when placed in the gamma detector. The analyzes were carried out at the Nuclear Technology Laboratory of NTUA. Specifically, the Neutron Activation was done with an Am-Be isotopic neutron source, and the γ -spectroscopic analysis of the activated samples was done in a Ge detector equipped with a Compton suppression system. For the calibration of this technique for the available equipment and the geometry of the selected samples, the comparative method with reference material SOIL-7 of the IAEA was used. Two combinations of neutron activation and γ -spectroscopic analysis were followed for the analysis of the samples. The first scenario (1h NA and 15min γ -spectroscopy) aimed to determine short-lived isotopes. The second scenario (111h NA and γ -spectroscopy from 1 hour to 6 days) targeted medium half-life isotopes. Following these scenarios for a sample from SOIL-7, calibration factors were obtained for the elements Al and Mg (short-lived) and Mn, K, Na, As (moderate half-life). With these coefficients and following the two scenarios of radiation and γ -spectroscopy, two unknown samples of the IAEA (soil and plant cellulose) were analyzed. The results could be evaluated because, before the end of the Thesis, the relevant report of the IAEA was published. The corresponding U-score and Z-score were satisfactory and confirmed the selection of specific γ -irradiation scenarios for each isotope. Then these scenarios were used for the analysis of sediment from the area of Lavrio in which the elements Al, Mg, Mn, K, Na, As were determined.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 1^ο

Εισαγωγή

Η παρούσα διπλωματική εργασία ασχολείται με την μέθοδο της νετρονικής ενεργοποίησης δειγμάτων περιβαλλοντικής σημασίας, τα οποία στη συνέχεια αναλύονται με γ-φασματοσκοπία για τον ποσοτικό προσδιορισμό των στοιχείων και ιχνοστοιχείων τους που έγιναν ραδιενεργά ισότοπα λόγω ενσωμάτωσης νετρονίων. Οι αναλύσεις πραγματοποιήθηκαν στο Εργαστήριο Πυρηνικής Τεχνολογίας του ΕΜΠ (ΕΠΤ-ΕΜΠ στη συνέχεια). Συγκεκριμένα η Νετρονική Ενεργοποίηση έγινε με ισοτοπική πηγή νετρονίων Am-Be, και η γ-φασματοσκοπική ανάλυση των ενεργοποιημένων δειγμάτων έγινε σε ανιχνευτή Ge εφοδιασμένο με σύστημα Compton suppression. Βεβαίως προηγήθηκε εξοικείωση με τον σχετικό εξοπλισμό, τις τεχνικές και βαθμονόμηση της διαδικασίας.

Στο 2^ο Κεφάλαιο της παρούσας ΔΕ παρουσιάζεται η τεχνική της γ-φασματοσκοπίας που χρησιμοποιείται για τον ποιοτικό και ποσοτικό προσδιορισμό της ραδιενέργειας των δειγμάτων που αναλύονται καθώς και οι ανιχνευτές που χρησιμοποιούνται για αυτό το σκοπό. Συγκεκριμένα παρουσιάζονται οι ημιαγωγοί ανιχνευτές Ge και ιδιαίτερη έμφαση δίνεται στο σύστημα μείωσης συνεχούς υποστρώματος με το οποίο μπορούν να εξοπλιστούν και το οποίο διαθέτει ο ανιχνευτής Ge που χρησιμοποιήθηκε για τις αναλύσεις της παρούσας ΔΕ.

Το 3^ο Κεφάλαιο αφιερώνεται στη μέθοδο ανάλυσης με Νετρονική Ενεργοποίηση (Neutron Activation Analysis)-NAA στη συνέχεια- που σε συνδυασμό με τη γ-φασματοσκοπία, χρησιμοποιείται για τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης μη ραδιενεργών στοιχείων σε περιβαλλοντικά δείγματα, αφού προηγουμένως έχουν τοποθετηθεί σε ροή νετρονίων. Αρχικά γίνεται αναφορά στα νετρόνια, στην ταξινόμησή τους ανάλογα με την Ενέργειά τους καθώς και στις πηγές νετρονίων. Στη συνέχεια παρουσιάζονται οι πυρηνικές αντιδράσεις με έμφαση στην ενσωμάτωση νετρονίων σε πυρήνες. Το κυρίως μέρος του 3^{ου} Κεφαλαίου αναφέρεται στην Νετρονική Ενεργοποίηση και στις σχέσεις που τη διέπουν και χρησιμοποιούνται για να τον ποσοτικό προσδιορισμό των συγκεντρώσεων των στοιχείων που

ενεργοποιήθηκαν και έδωσαν ραδιενεργά ισότοπα. Σημαντικές είναι και οι παράγραφοι του Κεφαλαίου που αναφέρονται στις τεχνικές Βαθμονόμησης της μεθόδου αυτής για την εκάστοτε διάταξη και την εκάστοτε γεωμετρία δείγματος μιας και αυτή η διαδικασία είναι απαραίτητη και προηγείται των αναλύσεων άγνωστων δειγμάτων. Το 3^ο Κεφάλαιο κλείνει με σύντομη αναφορά στα πλεονεκτήματα και τα μειονεκτήματα που παρουσιάζει αυτή η μέθοδος ανάλυσης.

Στο 4^ο Κεφάλαιο αυτό παρουσιάζεται η διάταξη ισοτοπικής πηγής νετρονίων του ΕΠΤ-ΕΜΠ στην οποία τοποθετήθηκαν τα προς ενεργοποίηση δείγματα και ο ανιχνευτής Ge που χρησιμοποιήθηκε για τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση των ενεργοποιημένων δειγμάτων, ο οποίος διαθέτει και ταυτόχρονη λειτουργία με σύστημα Compton Suppression. Στη συνέχεια παρουσιάζεται η βαθμονόμηση της όλης διαδικασίας για τη συγκεκριμένη γεωμετρία 'πηγής –δείγματος' και 'δείγματος– ανιχνευτή' χρησιμοποιώντας δείγμα παρασκευασμένο από το Πιστοποιημένο υλικό αναφοράς SOIL-7 (International Atomic Energy Agency-IAEA). Η βαθμονόμηση έγινε για δύο σενάρια ακτινοβόλησης (1h για βραχύβια ισότοπα και 111h για μέτριας ημιζωής ισότοπα) ενώ για τη διερεύνηση του καλύτερου συνδυασμού νετρονικής ενεργοποίησης και γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης για τον ποσοτικό προσδιορισμό των ανιχνευμένων ισωτόπων, λήφθηκαν γ-φάσματα διάρκειας από 15min έως 6 ημέρες. Το 4^ο κεφάλαιο καταλήγει με τον υπολογισμό των συντελεστών βαθμονόμησης για τα ισότοπα Al, Mg, Mn, K, Na, As που ανιχνεύονται στο πιστοποιημένο δείγμα και το σενάριο ακτινοβόλησης και γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης που προτείνεται για το καθένα από αυτά.

Οι συντελεστές αυτοί χρησιμοποιούνται στο 5^ο για τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης των έξι αυτών στοιχείων, σε άγνωστα στερεά δείγματα.. Συγκεκριμένα, πρόκειται για ένα δείγμα χώματος (Silicious Clay) και ένα δείγμα φυτικής κυτταρίνης (Plant Cellulose) που έφθασαν στο ΕΠΤ-ΕΜΠ στο πλαίσιο Άσκησης Διαβαθμονόμησης του ΔΟΑΕ (IAEA), καθώς και ένα δείγμα ιζήματος από την περιοχή του Λαυρίου Αττικής που συλλέχθηκε από προσωπικό του ΕΠΤ. Αξίζει να σημειωθεί ότι πριν την ολοκλήρωση της ΔΕ κυκλοφόρησε η αναφορά της Άσκησης Διαβαθμονόμησης και έτσι έγινε δυνατόν να γίνει αξιολόγηση των

αποτελεσμάτων που έδωσε η τεχνική αυτή, για τα δύο δείγματα και να προκύψουν σημαντικά συμπεράσματα..

Στο 6^ο κεφάλαιο παρουσιάζονται τα κύρια συμπεράσματα που προέκυψαν από την εκπόνηση της ΔΕ, εστιάζοντας στους κατάλληλους συνδυασμούς νετρονικής ενεργοποίησης και γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης για τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης κάθε ενός από τα έξι στοιχεία για τα οποία υπολογίστηκαν συντελεστές βαθμονόμησης, Al, Mg, Mn, K, Na, As . Η ΔΕ κλείνει με προτάσεις για περαιτέρω έρευνα.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 2^ο

Ανάλυση γ-Φασματοσκοπίας και Ανιχνευτές

2.1 Ακτινοβολία-γ και γ-φασματοσκοπία

Η ακτινοβολία-γ είναι ακτινοβολία ηλεκτρομαγνητικής φύσεως που εκπέμπεται κατά τις αποδιεγέρσεις διεγερμένων πυρήνων. Ένας πυρήνας βρίσκεται σε κατάσταση διέγερσης όταν προέρχεται από προηγούμενη διάσπαση ενός ραδιενεργού πυρήνα (διάσπαση-α, διάσπαση-β), πρόκειται δηλαδή για τον θυγατρικό του αρχικού ραδιενεργού πυρήνα. Τα φωτόνια προκύπτουν από την αποδιέγερση του θυγατρικού πυρήνα, παρόλα αυτά έχει καθιερωθεί να αποδίδονται στον πατρικό πυρήνα.

Το φάσμα εκπομπής των ακτίνων-γ που εκπέμπεται από ένα ραδιενεργό ισότοπο δημιουργείται από φωτόνια ορισμένων ενεργειών, που αντιστοιχούν στις ενεργειακές διαφορές των αντίστοιχων σταθμών ενέργειας των αποδιεγειρόμενων πυρήνων και για αυτό είναι γραμμικό. Το φάσμα όμως που καταγράφεται με τη βοήθεια διατάξεων ανίχνευσης ακτινοβολίας-γ είναι σύνθετο φάσμα, αποτελούμενο από συνεχή και γραμμική συνιστώσα. Η γραμμική συνιστώσα (φωτοκορυφές) οφείλεται στα φωτόνια της αντίστοιχης ενέργειας που αφήνουν όλη την ενέργειά τους στον ανιχνευτή. Η συνεχής συνιστώσα οφείλεται στα φωτόνια που μερικώς αποθέτουν την ενέργειά τους στον ανιχνευτή, πχ. λόγω σκέδασης Compton, στο υπόστρωμα λόγω κοσμικής ακτινοβολίας κλπ.

Τα ύψος μιας φωτοκορυφής εξαρτάται από την ενέργεια που τα φωτόνια αποθέτουν στο υλικό του ανιχνευτή παράγοντας ηλεκτρικό παλμό τάσης αντίστοιχης προς την ενέργεια που αποτέθηκε σε αυτόν. Το εύρος των φωτοκορυφών αποδίδεται στις στατιστικές διακυμάνσεις της δημιουργίας του σήματος που προέρχεται από την αλληλεπίδραση των φωτονίων με τον ανιχνευτή.

Δοθέντος ότι, τα φωτόνια που εκπέμπονται κατά την αποδιέγερση ενός πυρήνα μετά τη διάσπασή του έχουν μία ή/και περισσότερες στάθμες ενέργειας, χαρακτηριστική(ές) του ισότοπου από την αποδιέγερση του οποίου προήλθαν, η παρουσία φωτοκορυφών συγκεκριμένων ενεργειών οδηγεί στον ποιοτικό προσδιορισμό του ισότοπου αυτού. Η δε εκτίμηση του πλήθους των φωτονίων που εκπέμπονται στη μονάδα του χρόνου, για κάθε ισότοπο με βάση την επιφάνεια της συγκεκριμένης φωτοκορυφής, οδηγεί σε εκτίμηση της ραδιενέργειας του αντίστοιχου ισότοπου στο αναλυόμενο δείγμα. Η διαδικασία αυτή που βασίζεται στους ανιχνευτές ακτινοβολίας-γ ονομάζεται γ-φασματοσκοπική ανάλυση.

2.2 Ανιχνευτές ακτινοβολίας-γ

Όσον αφορά στους ανιχνευτές που σήμερα χρησιμοποιούνται για γ-φασματοσκοπική ανάλυση η ανάπτυξη νέων τύπων ημιαγωγών ανιχνευτών Ge, έχει περιορίσει την χρήση των ανιχνευτών σπινθηρισμών που ανήκει ο ανιχνευτής NaI.

Οι παλμοί στην έξοδο των ημιαγωγών ανιχνευτών Ge υφίστανται επεξεργασία (ενίσχυση, διαχωρισμό) και καταλήγουν σε πολυκαναλικό αναλυτή στον οποίο και συλλέγεται το φάσμα. Κάθε κανάλι του πολυκαναλικού αναλυτή αντιστοιχεί σε διαφορετική ενέργεια της εκπεμπόμενης ακτινοβολίας-γ. Η διαδικασία συσχέτισης της ενέργειας των φωτονίων με τα κανάλια του πολυκαναλικού ανιχνευτή, όπου καταγράφεται η αντίστοιχη φωτοκορυφή, αποτελεί την ενεργειακή βαθμονόμηση της διάταξης.

Για τον ποσοτικό προσδιορισμό συγκεκριμένου ισότοπου σε ένα δείγμα πρέπει, η διάταξη να έχει βαθμονομηθεί και ως προς την απόδοση για τη συγκεκριμένη γεωμετρία δείγματος –ανιχνευτή (όγκος δείγματος, θέση). Η απόδοση φωτοκορυφής, eff , (full energy peak efficiency) για μια συγκεκριμένη γεωμετρία πηγής-ανιχνευτή και συγκεκριμένη ενέργεια φωτονίων, δίνεται από τη σχέση:

$$eff = \frac{area}{time \cdot gammas} \quad (2.1)$$

όπου:

area: η επιφάνεια που σχηματίζεται κάτω από την φωτοκορυφή

time: το χρονικό διάστημα συλλογής του φάσματος σε s και

gammas: ο ρυθμός εκπομπής φωτονίων της συγκεκριμένης ενέργειας από την πηγή βαθμονόμησης ανά s.

Η απόδοση φωτοκορυφής ενός ανιχνευτή είναι συνάρτηση της ενέργειάς των φωτονίων και κάθε τύπος ανιχνευτή χαρακτηρίζεται από συγκεκριμένης μορφής καμπύλη βαθμονόμησης της απόδοσης, συναρτήσει της ενέργειας των φωτονίων.

Για τη σύγκριση των ανιχνευτών ως προς την απόδοση χρησιμοποιείται ο όρος Σχετική Απόδοση που ορίζεται ως ο λόγος της απόδοσης στα 1.33MeV, ενός ανιχνευτή γερμανίου ως προς την απόδοση στην ίδια ενέργεια ενός ανιχνευτή NaI διαμέτρου "3x3" όταν και οι δύο είναι τοποθετημένοι σε απόσταση 25 από σημειακή πηγή που εκπέμπει φωτόνια αυτής της ενέργειας.

Οι ημιαγωγοί ανιχνευτές Ge πλεονεκτούν όσον αφορά στη διακριτική ικανότητα, στην ικανότητα της διάταξης να διακρίνει φωτόνια με παραπλήσιες ενέργειες, και αυτό είναι σημαντικό γιατί παρατηρείται συχνά οι ραδιενεργοί πυρήνες που περιέχονται σε ένα δείγμα να εκπέμπουν φωτόνια σε τόσο παραπλήσιες ενέργειες ώστε στο σχηματιζόμενο φάσμα οι αντίστοιχες φωτοκορυφές να επικαλύπτονται και να σχηματίζουν διπλή ή και πολλαπλή φωτοκορυφή. Σε αυτές τις περιπτώσεις η εκτίμηση των επιμέρους επιφανειών των φωτοκορυφών δεν είναι δυνατή ή συνοδεύεται από μεγάλη αβεβαιότητα με συνέπεια τα φωτόνια αυτά δύσκολα μπορούν να αξιοποιηθούν για τον ποιοτικό και ποσοτικό προσδιορισμό των ραδιοϊσοτόπων του δείγματος.

Για την αξιολόγηση της διακριτικής ικανότητας ενός ανιχνευτή γ-φασματοσκοπίας σε συγκεκριμένη ενέργεια χρησιμοποιείται το Εύρος ημίσεως Ύψους (Full Width at Half Maximum-FWHM) και το Εύρος Δεκάτου Ύψους (Full Width at Tenth Maximum-FW1.M ή FWTM) σε μονάδες keV. Το FWHM ισούται με το πλάτος της φωτοκορυφής μετρημένο στο μισό του μέγιστου ύψους της φωτοκορυφής μετά την αφαίρεση του υποστρώματος σε αυτή την ενέργεια. Αντίστοιχα το FWT.M ισούται με το πλάτος της φωτοκορυφής μετρημένο στο ένα δέκατο του μέγιστου ύψους της φωτοκορυφής αυτής φωτοκορυφής μετά την αφαίρεση του υποστρώματος σε αυτή την ενέργεια.

Σημαντική παράμετρος ενός ανιχνευτή γ-φασματοσκοπίας είναι και ο λόγος ύψους φωτοκορυφής προς υπόστρωμα (peak-to-Compton ratio), που ορίζεται ως ο λόγος μεταξύ του μέγιστου ύψους της φωτοκορυφής που αντιστοιχεί σε ενέργεια

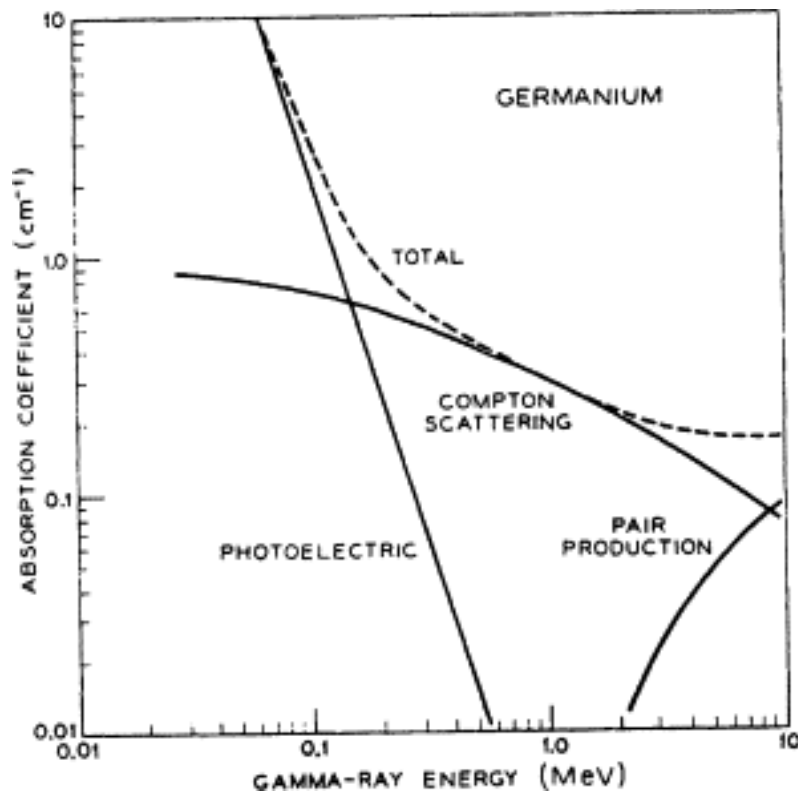
φωτονίων 1332.50keV (^{60}Co) προς το μέσο ύψος του υποστρώματος λόγω σκεδάσεως Compton των φωτονίων της ίδιας ενέργειας, στην ενεργειακή περιοχή 1040-1096keV, που συλλέγεται η φωτοκορυφή αυτή . [1]

2.2.1 Το συνεχές υπόστρωμα Compton

Όπως αναφέρθηκε και στην παράγραφο 2.1, τα φωτόνια μιας συγκεκριμένης ενέργειας που φτάνουν στον ανιχνευτή μπορούν να αποθέσουν σε αυτόν το σύνολο της ενέργειάς τους (φωτοηλεκτρικό φαινόμενο) ή μέρος αυτής (σκέδαση Compton ή δίδυμη γένεση) στον ανιχνευτή. Στην περίπτωση του φωτοηλεκτρικού φαινομένου, η καταγραφή των φωτονίων γίνεται στην αιχμή πλήρους απορρόφησης, η οποία και αξιοποιείται στη γ -φασματοσκοπική ανάλυση, καθώς αντιστοιχεί στην ενέργεια των φωτονίων. Στη περίπτωση της σκέδασης Compton ή δίδυμης γένεσης, η ενέργεια που καταγράφεται είναι τυχαία και χαμηλότερη της αρχικής ενέργειας των φωτονίων οπότε καταγράφεται στο συνεχές υπόστρωμα.

Το φωτόνιο μειωμένης ενέργειας καταγράφεται στον ανιχνευτή, είτε μετά από αλληλεπίδραση Compton με τον ανιχνευτή ενός φωτονίου που εκπέμπεται απευθείας από την πηγή, είτε μετά από αλληλεπίδραση με τον ανιχνευτή ενός φωτονίου της πηγής το οποίο έχει προηγουμένως υποστεί αλληλεπίδραση με τη θωράκιση ή μέσα στην ίδια την πηγή.

Στο Σχήμα 2.1 φαίνεται ότι στην περίπτωση ενός ανιχνευτή Ge και όσον αφορά στο στην ενεργειακή περιοχή άνω των 150 keV, η πιθανότητα να πραγματοποιηθεί φωτοηλεκτρικό φαινόμενο και κατά συνέπεια πλήρης απόθεση της ενέργειας του φωτονίου στον ανιχνευτή υστερεί σε σχέση με την πιθανότητα σκέδασης Compton. [2] .Αυτό το φαινόμενο σε συνδυασμό με τα υλικά της θωράκισης του ανιχνευτή και τις εκάστοτε διαστάσεις του ανιχνευτή, μπορεί να οδηγήσει σε σημαντικά επίπεδα συνεχούς υποστρώματος, το οποίο χαρακτηρίζεται ως συνεχές υπόστρωμα Compton, . Το συνεχές υπόστρωμα Compton επιφέρει δυσκολία ανίχνευσης ασθενών φωτοκορυφών οι οποίες σχηματίζονται σε περιοχές του φάσματος με υψηλό συνεχές υπόστρωμα, .



Σχήμα 2.1 Συντελεστές απορρόφησης για το Ge συναρτήσει της Ενέργειας των φωτονίων [2]

Συνεπώς η μείωση της επίδρασης του υποστρώματος Compton θα επέτρεπε την ανίχνευση ασθενών φωτοκορυφών ή φωτοκορυφών με κακή στατιστική και για αυτό από αρκετά παλιότερα υπήρχαν προσπάθειες προς αυτή την κατεύθυνση. Η μείωση του υποστρώματος επιτυγχάνεται με τη χρήση ειδικού συστήματος μείωσης του υποστρώματος Compton, που ονομάζονται Compton Suppression Systems.

2.2.2 Ανιχνευτές με συστήματα μείωσης συνεχούς υποστρώματος (Compton Suppression)

Σε ένα τέτοιο σύστημα, που περιγράφεται με λεπτομέρεια στη ΔΔ της Σάββα Μ., [3], το φωτόνιο που προκύπτει από αλληλεπίδραση Compton στον ανιχνευτή και διαφεύγει από αυτόν με μειωμένη ενέργεια, είναι δυνατό να ανιχνευθεί από δεύτερο μεγαλύτερο ανιχνευτή χαμηλότερου κόστους, όπως οι ανιχνευτές NaI.

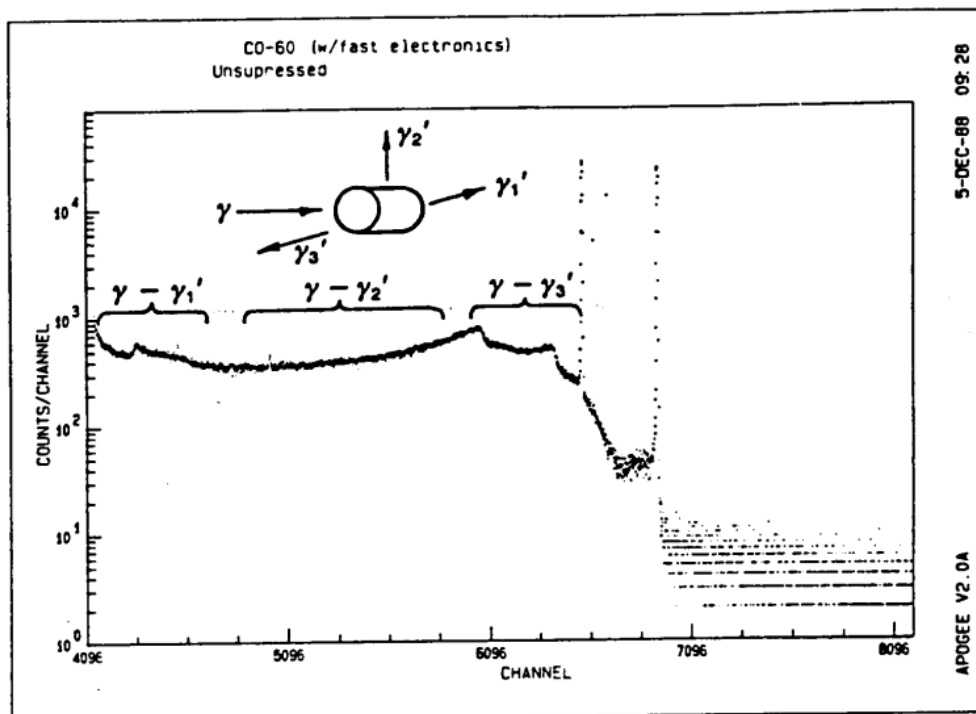
Ο πρώτος ανιχνευτής, ο οποίος ονομάζεται πρωτεύον ή κύριος ανιχνευτής, (πρόκειται για ανιχνευτή Ge), βρίσκεται εσωτερικά του δεύτερου, ο οποίος είναι γνωστός ως ενεργητική θωράκιση, δευτερεύων ανιχνευτής ή ανιχνευτής φύλακας (πρόκειται για ανιχνευτές NaI).

Η μείωση του υποστρώματος γίνεται ως εξής: σήματα που καταγράφονται και στους δύο ανιχνευτές ταυτόχρονα, θα οφείλονται σε φωτόνια που έχουν εναποθέσει στον πρωτεύοντα ανιχνευτή μόνο ένα κομμάτι της ενέργειας τους και με χρήση κατάλληλων ηλεκτρονικών 'αφαιρούνται' από το υπόστρωμα που συλλέγεται στον πρωτεύοντα ανιχνευτή και έτσι προκύπτει το αντίστοιχο φάσμα μειωμένου υποστρώματος (suppressed spectrum). Τα φάσματα αυτά που προκύπτουν μετά από αυτή την αυτόματη επεξεργασία, έχουν χαμηλότερο υπόστρωμα και διευκολύνουν την ανίχνευση πχ. ιχνοστοιχείων. Το φάσμα που έχει συλλεχθεί στον πρωτεύοντα ανιχνευτή (unsuppressed spectrum) είναι και αυτό διαθέσιμο για γ-φασματοσκοπία.

Η μείωση των γεγονότων σκέδασης Compton εξαρτάται από την ικανότητα του δευτερεύοντα ανιχνευτή να εντοπίσει τα σκεδαζόμενα φωτόνια. Για τον λόγο αυτό, κατά την κατασκευή του συστήματος, ο πρωτεύων ανιχνευτής (Ge) πρέπει να έχει πολύ καλή μεγάλη διακριτική ικανότητα ενώ ο δευτερεύων (NaI) υψηλότερη απόδοση [4]. Η αποτελεσματικότητα του δευτερεύοντα ανιχνευτή εξαρτάται κυρίως από το μέγεθός του, το σχήμα του και το υλικό κατασκευής του.

Η γωνία σκέδασης ενός φωτονίου συνδέεται με την ενέργεια που εκπέμπει μετά την σκέδαση, φαινόμενο που οδηγεί σε αύξηση του υποστρώματος σε συγκεκριμένα σημεία ενέργειας. Η δυσκολία του δευτερεύοντα ανιχνευτή να ανιχνεύσει φωτόνια που σκεδάστηκαν προς μία συγκεκριμένη κατεύθυνση επηρεάζει αρνητικά την μείωση υποστρώματος Compton στη συγκεκριμένη ενεργειακή περιοχή, γιατί ένα φωτόνιο που εισέρχεται στον ανιχνευτή κατά τον άξονά του και σκεδάζεται, μπορεί όπως φαίνεται στο Σχήμα 2.2 είτε να οπισθοσκεδαστεί, είτε να έχει πρόσθια κατεύθυνση ή κάθετη στην αρχική. Τα φωτόνια με πρόσθια σκέδαση έχουν εναποθέσει μικρό κομμάτι της ενέργειάς τους στον ανιχνευτή και συνεχίζουν με υψηλή ενέργεια. Αντιθέτως, αυτά που οπισθοσκεδάζονται έχουν χάσει το μεγαλύτερο μέρος της ενέργειάς τους στον ανιχνευτή. Αν αυτός ο ανιχνευτής είναι

ο πρωτεύων ενός συστήματος Compton Suppression θα πρέπει η ενεργητική θωράκιση πρέπει να έχει υψηλότερη απόδοση ανίχνευσης φωτονίων στην πρόσθια κατεύθυνση. [5]



Σχήμα 2.2 : Γωνίες σκέδασης φωτονίων και ενέργειες που εναποτίθενται στο συνεχές υπόστρωμα [5]

Ο παραδοσιακός τρόπος διάταξης των δύο ανιχνευτών, περιλαμβάνει ενεργητική θωράκιση δακτυλιοειδούς σχήματος με τον πρωτεύοντα ανιχνευτή να είναι τοποθετημένος στο κέντρο.

Ως πρωτεύοντες ανιχνευτές χρησιμοποιούνται αποκλειστικά ανιχνευτές υπερκαθαρού γερμανίου HPGe, λόγω του σχετικά σχετικά μεγάλου Ατομικού αριθμού του Ge ($Z=32$) και λόγω της υψηλής μεγάλης διακριτικής ικανότητας που προσφέρουν. Υπενθυμίζεται ότι οι ανιχνευτές Ge χρήζουν συνεχή ψύξη με υγρό άζωτο όσο είναι σε λειτουργία, που εκτός των άλλων έχει ως αποτέλεσμα να μειώνεται η ενεργητική θωράκιση του ανιχνευτή.

Ο κύριος ανιχνευτής περιβάλλεται από έναν δευτερεύοντα ανιχνευτή για να λειτουργεί ως ενεργητική θωράκιση. Ως υλικό κατασκευής του δευτερεύοντα ανιχνευτή, χρησιμοποιείται το NaI, λόγω και του μειωμένου κόστους του σε σχέση

με τους ανιχνευτές Ge. Για να είναι πιο αποτελεσματικό το σύστημα, το πάχος του δευτερεύοντα ανιχνευτή πρέπει να είναι αρκετά εκατοστά. Αυτό όμως στην πράξη οριοθετείται από τον διαθέσιμο χώρο μεταξύ πρωτεύοντα και δευτερεύοντα ανιχνευτή. Στο Σχήμα 2.3 παρουσιάζονται τρόποι υλοποίησης συστημάτων Compton suppression.



Σχήμα 2.3α Compton suppress system (όψη) [6]

Σχήμα 2.3β Compton suppress system (κάτωψη) της ORTEC /AMETEC [7]

Ένα σύστημα Compton Suppress δεν μπορεί να διακρίνει τα σήματα λόγω σκεδάσεων Compton, από τα σήματα που οφείλονται πχ. σε φωτόνια από άλλο ισότοπο παρόμοιας ενέργειας. Συνεπώς είναι δυνατόν να καταγραφούν τυχαία και στους δύο ανιχνευτές σήματα τα οποία να μην έχουν προκύψει από κλάσματα της ενέργειας του ίδιου φωτονίου, αλλά να προέρχονται από δύο διαφορετικά φωτόνια άλλων ισωτόπων, τα οποία τυχαία καταγράφηκαν εντός του χρονικού περιθωρίου που χρησιμοποιείται στο σύστημα Compton suppression.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 3^ο

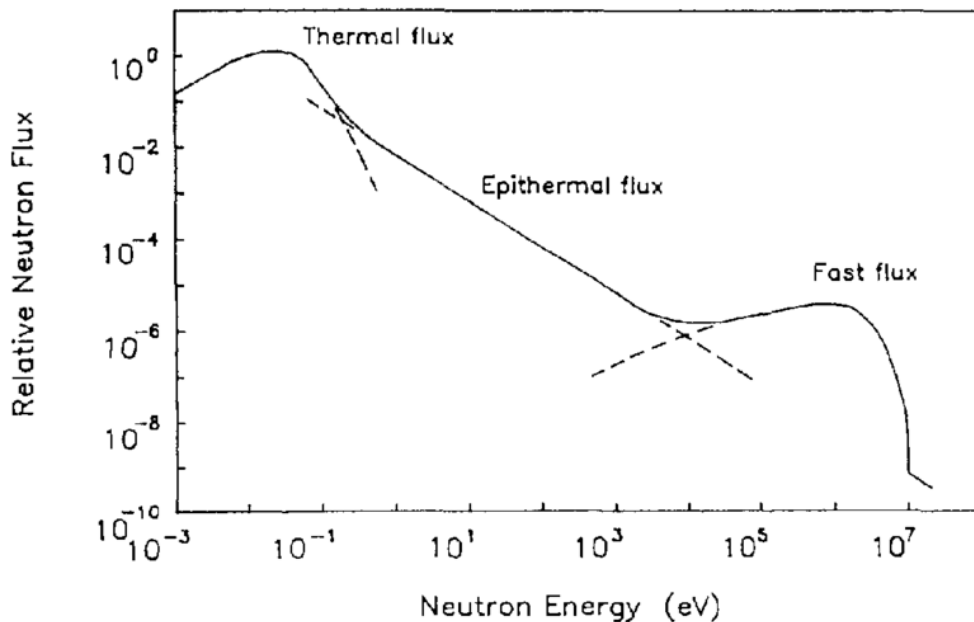
Ανάλυση με Νετρονική Ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία

3.1 Κατηγορίες Νετρονίων

Τα νετρόνια λόγω διαφορετικής φύσης από τα ηλεκτρισμένα σωματίδια (πρωτόνια, ηλεκτρόνια κα.) ή τις ακτινοβολίες φωτονίων, συμπεριφέρονται διαφορετικά και αλληλεπιδρούν με τους πυρήνες μόνο όταν βρεθούν σε απόσταση όπου δρουν οι πυρηνικές δυνάμεις, δηλαδή σε αποστάσεις της τάξης 10^{-15} m. Η πιθανότητα να πραγματοποιηθεί κάποιου είδους αντίδραση δίνεται από την μικροσκοπική ενεργό διατομή σ , για την συγκεκριμένη πυρηνική αντίδραση. Αυτό το μέγεθος εξαρτάται και από την τιμή της ενέργειας των νετρονίων, τα οποία κατατάσσονται στις παρακάτω κατηγορίες με βάση την ενέργειά τους, [8]:

- **Βραδέα νετρόνια:** Έχουν ενέργειες έως 1 keV και χωρίζονται στις παρακάτω υποκατηγορίες:
 - Θερμικά: με ενέργειες που φτάνουν έως 0,4 eV και βρίσκονται σε θερμική ισορροπία με το περιβάλλον τους. Στους πυρηνικούς αντιδραστήρες η ταχύτητα των νετρονίων χαμηλής ενέργειας έχει την ίδια κατανομή με την ταχύτητα των μορίων και των ατόμων που τα περιβάλλουν. Η κατανομή αυτή πλησιάζει την κατανομή Maxwell, η οποία για θερμοκρασία δωματίου (20°C) αντιστοιχεί σε πιο πιθανή ενέργεια 0,025eV. Στην παρούσα διπλωματική χρησιμοποιούνται θερμικά νετρόνια.
 - Επιθερμικά: των οποίων οι ενέργειες κυμαίνονται από ~0,5eV έως 1eV και τα οποία δεν είναι σε τέλεια θερμική ισορροπία με το περιβάλλον τους. Το κατώτερο όριο ενέργειας 0,5eV ορίζεται ως η ελάχιστη ενέργεια κάτω από την οποία τα νετρόνια δεν μπορούν να διαπεράσουν ένα πλακίδιο Cd πάχους 1mm και για αυτό και ονομάζεται όριο καδμίου.
 - Ισχυρά: με ενέργειες 1eV έως 1keV

- **Ενδιάμεσης ενέργειας:** δηλαδή νετρόνια που έχουν ενέργειες από 1 keV έως 0,5 MeV και για τα οποία δεν καταγράφονται σημαντικές πυρηνικές αντιδράσεις.
- **Ταχέα νετρόνια :** η περιοχή των ταχέων νετρονίων περιλαμβάνει νετρόνια με ενέργεια μεγαλύτερη από 0.5 MeV. Τα νετρόνια αυτά προέρχονται από τη σχάση, δεν έχουν όμως υποστεί σκέδαση ή έχουν χάσει μικρό μόνο μέρος από την ενέργειά τους. Όπως φαίνεται στο Σχήμα 5.1, σε έναν τυπικό αντιδραστήρα σχάσης τύπου ανοικτής δεξαμενής τα ταχέα νετρόνια αποτελούν περίπου το 5% της συνολικής ροής.



Σχήμα 3.1 1: Διάγραμμα ροής-ενέργειας νετρονίων σε τυπικό αντιδραστήρα Σχάσης [9]

3.2 Αλληλεπίδραση νετρονίων με την ύλη

Οι αλληλεπιδράσεις των νετρονίων με την ύλη είναι γνωστές ως πυρηνικές αντιδράσεις. Έχουν καταγραφεί οι παρακάτω τύποι πυρηνικών αντιδράσεων με νετρόνια, [10]:

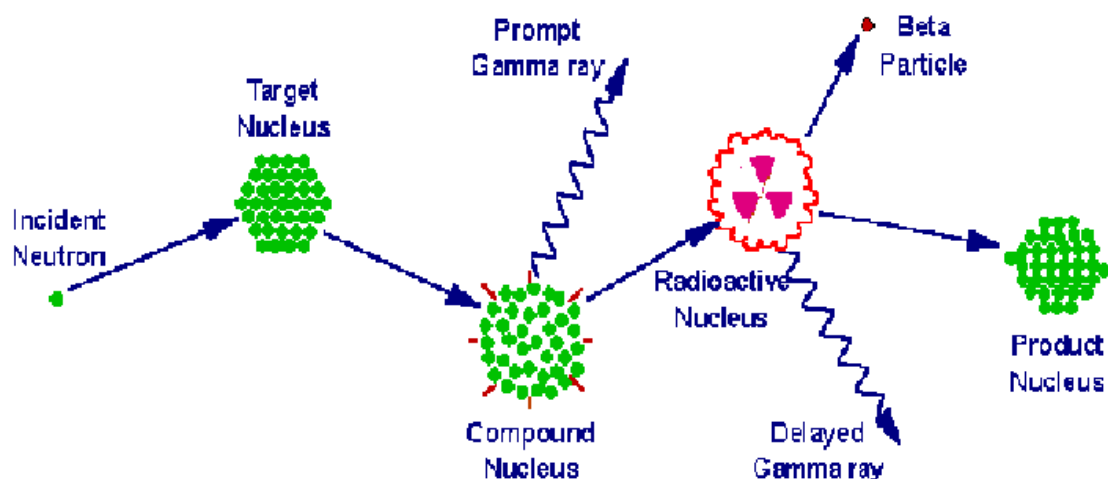
- Ελαστική σκέδαση νετρονίου-πυρήνα, (n, n).

- Μη ελαστική σκέδαση νετρονίου-πυρήνα, (n, n') .
- Ραδιενεργός ενσωμάτωση (σύλληψη νετρονίου από πυρήνα και εκπομπή ακτινοβολίας- γ), (n, γ) .
- Παραγωγή φορτισμένων σωματιδίων (n, p) και (n, α) .
- Παραγωγή νετρονίων $(n, 2n)$ και $(n, 3n)$.
- Σχάση (n, f) .

Η απορρόφηση θερμικού νετρονίου με ραδιενεργή ενσωμάτωση (n, γ) από τον πυρήνα-στόχο ενός σταθερού ισότοπου στοιχείου βρίσκει εφαρμογή στην Ανάλυση με Νετρονική Ενεργοποίηση που χρησιμοποιήθηκε και στην παρούσα ΔΕ.

Το νετρόνιο αλληλεπιδρά με τον πυρήνα-στόχο με μη-ελαστική σκέδαση, αποτέλεσμα της οποίας είναι η σύλληψή του από τον πυρήνα και ο σχηματισμός ενός «σύνθετου», διεγερμένου πυρήνα όπως φαίνεται στο Σχήμα 3.2. Η ενέργεια διέγερσης αυτού του καινούριου «σύνθετου» πυρήνα οφείλεται στην ενέργεια σύνδεσης του νετρονίου με τον πυρήνα. Ο «σύνθετος» αυτός πυρήνας που παράγεται από την νετρονική σύλληψη αποδιεγείρεται σε διάστημα της τάξης των 10^{-12} s σε μία πιο σταθερή κατάσταση. Αυτή η διαδικασία της αποδιέγερσης ακολουθείται από εκπομπή μίας ή περισσότερων ακτίνων- γ που είναι χαρακτηριστικές του πυρήνα. Συνήθως ο «σύνθετος» αυτός πυρήνας αποδιεγείρεται και σχηματίζεται ένας ραδιενεργός πυρήνας ο οποίος μετέπειτα διασπάται έχοντας ως αποτέλεσμα την εκπομπή νέων ακτίνων- γ . Αυτές οι ακτίνες- γ ονομάζονται «καθυστερημένες» ακτίνες- γ που είναι εξίσου χαρακτηριστικές του πυρήνα. [11]

Η εκπομπή αυτών των ακτίνων- γ γίνεται με ρυθμό και με χρόνο ημιζωής που είναι χαρακτηριστικός του ραδιενεργού πυρήνα. Ανάλογα με το στοιχείο, οι χρόνοι ημιζωής ποικίλουν από κλάσματα δευτερολέπτου έως αρκετά χρόνια.



Σχήμα 3.2 : Σύλληψη νετρονίου από πυρήνα στόχο [12]

Η μη ελαστική σκέδαση (n, n', γ) είναι πιθανότερη για τα ταχέα νετρόνια και είναι ένας τύπος σκέδασης όπου η κινητική ενέργεια δεν διατηρείται. Η διαφορά ενέργειας δίνεται στον πυρήνα στόχο ως ενέργεια διέγερσης. Όταν ο διεγερμένος πυρήνας αποδιεγείρεται, εκπέμπει άμεσα μία ή περισσότερες ακτίνες- γ (prompt gamma rays). Η μη ελαστική σκέδαση χρησιμοποιείται και ως μηχανισμός επιβράδυνσης των ταχέων νετρονίων.

Οι ιδιότητες σκέδασης και απορρόφησης νετρονίων εκφράζονται από τη μικροσκοπική ενεργό διατομή σκέδασης (σ_s) και τη μικροσκοπική ενεργό διατομή απορρόφησης (σ_a), αντίστοιχα. Οι μικροσκοπικές ενεργές διατομές αντιπροσωπεύουν τις πιθανότητες να έχει ένα νετρόνιο συγκεκριμένη αλληλεπίδραση με τον πυρήνα στόχο και εξαρτώνται από την ενέργεια του προσπίπτοντος νετρονίου. Η αλληλεπίδραση που μπορεί να λάβει χώρα είναι είτε σκέδαση του νετρονίου είτε απορρόφησης του (με ενσωμάτωση ή σχάση).

Ως συνάρτηση των μικροσκοπικών ενεργών διατομών σκέδασης και απορρόφησης ορίζονται και οι ανάλογες μακροσκοπικές ενεργές διατομές. Επιπλέον, η ολική μακροσκοπική ενεργός διατομή ορίζεται ως το άθροισμα των δύο επιμέρους

μακροσκοπικών διατομών, εφόσον δεν υπάρχουν σχάσιμοι πυρήνες (οπότε η μικροσκοπική διατομή σχάσης θεωρείται αμελητέα) [13]:

$$\Sigma_s = \sum (\sigma_{s,i} N_i) \quad (3.1)$$

$$\Sigma_a = \sum (\sigma_{a,i} N_i) \quad (3.2)$$

$$\Sigma_t = \Sigma_a + \Sigma_s \quad (3.3)$$

Όπου:

σ_s = μικροσκοπική ενεργός διατομή σκέδασης [m^2]

σ_a = μικροσκοπική ενεργός διατομή απορρόφησης [m^2]

Σ_s = μακροσκοπική ενεργός διατομή σκέδασης [m^{-1}]

Σ_a = μακροσκοπική ενεργός διατομή απορρόφησης [m^{-1}]

Σ_t = ολική μακροσκοπική ενεργός διατομή [m^{-1}]

N = ατομική πυκνότητα [m^{-3}]

και i : ο δείκτης για κάθε ισότοπο

3.3 Ανάλυση με Νετρονική Ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία

Νετρονική Ενεργοποίηση ή NAA (Neutron Activation Analysis) είναι η μέθοδος κατά την διάρκεια της οποίας μη ραδιενεργοί πυρήνες καθίστανται ραδιενεργοί με την πρόσληψη ενός νετρονίου και προκύπτουν τα ραδιενεργά τους ισότοπα, τα οποία είναι δυνατόν να προσδιοριστούν με μεθόδους της πυρηνικής τεχνολογίας όπως η ανάλυση με γ-φασματοσκοπία με ανιχνευτές ακτινοβολίας-γ. Είναι μια πυρηνική αναλυτική τεχνική, η οποία επιτρέπει τον ταυτόχρονο προσδιορισμό πολλών στοιχείων σε πλήθος δειγμάτων .

Οι ραδιενεργές εκπομπές και οι διαδρομές ραδιενεργού διάσπασης για κάθε στοιχείο είναι γνωστές, από τη βιβλιογραφία πχ. [14] συνεπώς μελετώντας τα φάσματα των εκπομπών του ραδιενεργού δείγματος μπορεί να ταυτοποιηθεί

ποιοτικά και ποσοτικά ο αρχικός πυρήνας-στόχος λαμβάνοντας υπόψη και τη φυσική ισοτοπική αναλογία του αρχικού πυρήνα.

Ως μέθοδος, ανακαλύφθηκε το 1936 όταν οι G. Hevesy και H. Levi παρατήρησαν ότι η έκθεση ορισμένων γεωλογικών δειγμάτων που περιείχαν σπάνιες γαίες σε πεδίο νετρονίων είχε σαν αποτέλεσμα την εκπομπή ραδιενέργειας από αυτά. Μετά από αυτή την παρατήρηση, η δυνατότητα εφαρμογής της τεχνικής για την στοιχειακή ανάλυση δειγμάτων έγινε γρήγορα αντιληπτή. Σήμερα, η ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση είναι μια καθιερωμένη πυρηνική αναλυτική τεχνική και μάλιστα θεωρείται ως η τεχνική «αναφοράς» ως προς την οποία συγκρίνονται οι άλλες στοιχειακές αναλυτικές τεχνικές . [8]

Η διαδικασία περιλαμβάνει την ακτινοβόληση του δείγματος σε πεδίο νετρονίων, όπου γίνεται η ενσωμάτωση του νετρονίου που λειτουργεί ως 'βλήμα' στο μη ραδιενεργό ισότοπο που είναι ο 'στόχος':

Βλήμα (νετρόνιο) + στόχος (μη ραδιενεργό ισότοπο) → ραδιενεργό ισότοπο

Η μέτρηση στη συνέχεια της ακτινοβολίας- γ που εκπέμπεται από το δείγμα σε κατάλληλη ανιχνευτική διάταξη και τον προσδιορισμό -ποιοτικό και ποσοτικό- των στοιχείων μέσω της επεξεργασίας των μετρήσεων. Η εφαρμογή της μεθόδου προϋποθέτει αφενός την ύπαρξη πηγής νετρονίων και κατάλληλου ανιχνευτή γ -ακτινοβολίας, αφετέρου τη λεπτομερή γνώση των πυρηνικών αντιδράσεων των νετρονίων με τα στοιχεία του υπό ανάλυση δείγματος.

Τόσο τα θερμικά όσο και τα επιθερμικά νετρόνια μπορούν να προκαλέσουν αντιδράσεις τύπου (n,γ) , άρα και να χρησιμοποιηθούν για αναλύσεις με νετρονική ενεργοποίηση. Τα ταχεία νετρόνια, αν και έχουν πολύ μικρή πιθανότητα να προκαλέσουν αντιδράσεις τύπου (n,γ) , μπορούν -λόγω της κινητικής τους ενέργειας να προκαλέσουν πυρηνικές αντιδράσεις κατά τις οποίες ένα ή περισσότερα σωματάρια αποσπώνται από τον πυρήνα $[(n,\alpha), (n,p), (n,n'), (n,2n)]$. Σε πολλές περιπτώσεις, ο πυρήνας που σχηματίζεται είναι ραδιενεργός. Επομένως και τα ταχεία νετρόνια μπορούν να αξιοποιηθούν για την ακτινοβόληση δειγμάτων στα πλαίσια της ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση. Και για τις τρεις κατηγορίες νετρονίων έχουν αναπτυχθεί ειδικές τεχνικές ώστε να μπορεί η ανάλυση με

νετρονική ενεργοποίηση να εφαρμοστεί σε όλο το ενεργειακό φάσμα των νετρονίων.

3.3.1 Ραδιενέργεια ενεργοποιημένων πυρήνων

Η ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση βασίζεται στην τεχνική της ανίχνευσης ακτινοβολίας-γ που εκπέμπεται από υλικά τα οποία βομβαρδίζονται με νετρόνια. Πυρηνικές αντιδράσεις που λαμβάνουν χώρα στο υπό ανάλυση δείγμα έχουν σαν αποτέλεσμα την παραγωγή ραδιενεργών ισοτόπων τους που εκπέμπουν ακτίνες-γ οι οποίες ανιχνεύονται από ανιχνευτές γ-ακτινοβολίας και προκύπτει το αντίστοιχο φάσμα. Η επεξεργασία του φάσματος της εκπεμπόμενης ακτινοβολίας-γ από το ραδιενεργό δείγμα δίνει πληροφορίες για τα αντιδρώντα στοιχεία καθώς και για την ποσότητα των στοιχείων αυτών στο δείγμα.

Το προϊόν της αντίδρασης ενεργοποίησης για τον εκάστοτε πυρήνα-στόχο εξαρτάται από την ενέργεια των νετρονίων που τον βομβαρδίζουν, ενώ το πλήθος των πυρήνων που ενεργοποιούνται εξαρτάται από τη ροή των νετρονίων και το πλήθος των πυρήνων-στόχων.

Από τη στιγμή που οι πυρήνες-στόχοι βομβαρδιστούν με νετρόνια και δημιουργήσουν ραδιενεργά ισότοπα, αυτά θα διασπώνται, ενώ συγχρόνως θα παράγονται νέα όσο οι πυρήνες-στόχοι βρίσκονται μέσα στη ροή νετρονίων. Οπότε η ραδιενέργεια ενός ραδιενεργού ισοτόπου κατά τη διάρκεια της ακτινοβόλησής του με νετρόνια (για μονό-ενεργειακές δέσμες νετρονίων με σταθερή πυκνότητα ροής και λεπτούς στόχους- ισότοπα), δίνεται από τη σχέση:

$$A = \sigma \cdot \Phi \cdot N \cdot (1 - e^{-\lambda t_{irr}}) \quad (3.4)$$

όπου

Φ : η πυκνότητα ροής των νετρονίων που βομβαρδίζουν το στόχο σε νετρόνια/(m²·s),

N : ο αριθμός των στόχων πυρήνων στο δείγμα,

σ : η ενεργός διατομή της πυρηνικής αντίδρασης

λ : η σταθερά διασπάσεως του ραδιενεργού προϊόντος της ενεργοποίησης και

t_{irr} : η διάρκεια της ακτινοβόλησης.

Από αυτή τη σχέση φαίνεται ότι υπάρχει μια μέγιστη τιμή για τη ραδιενέργεια, που ονομάζεται ραδιενέργεια κορεσμού και ισούται με:

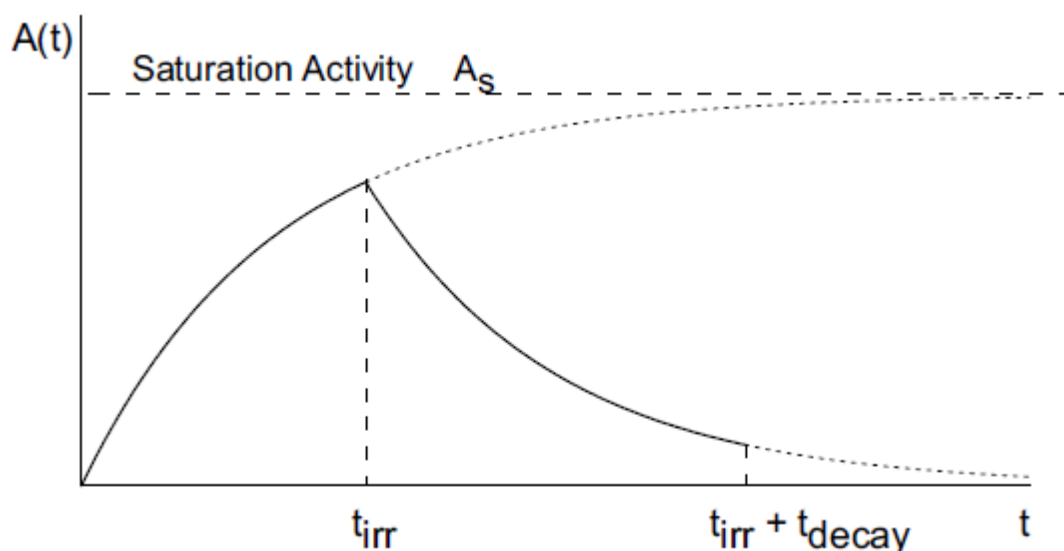
$$A_S = A_{(t_{irr} \rightarrow \infty)} = \sigma \cdot \Phi \cdot N \quad (3.5)$$

Όταν επιτυγχάνεται ο κορεσμός, ο ρυθμός παραγωγής των πυρήνων είναι ίσος με τον ρυθμό της διάσπασής τους. Μετά από χρόνο ακτινοβολήσης ίσο με τρεις ημιζωές ($3T/2$) του ραδιενεργού ισότοπου ενεργοποίησης, η ραδιενέργειά του μεταβάλλεται πολύ λίγο, ενώ μετά από πέντε ημιζωές ($5T/2$), αντιστοιχεί ήδη στο 97% της ραδιενέργειας κορεσμού και γι' αυτό δεν είναι χρήσιμο να επεκταθεί η ακτινοβολήση πέραν αυτής της διάρκειας.

Όταν το ραδιενεργό ισότοπο παύσει να ακτινοβολείται η ραδιενέργειά του προκύπτει πλέον από τη σχέση:

$$A = \sigma \cdot \Phi \cdot N \cdot (1 - e^{-\lambda t_{irr}}) e^{-\lambda t_{decay}} \quad (3.6)$$

όπου t_{decay} ο χρόνος που μεσολαβεί από το τέλος της ακτινοβολήσης έως και την μέτρηση. Η ραδιενέργεια του ισότοπου κατά τη διαδικασία ενεργοποίησης αλλά και μετά το τέλος της παρουσιάζεται στο Σχήμα 3.3 :



Σχήμα 3.3: Ρυθμός διάσπασης ραδιενεργού προϊόντος συναρτήσει του χρόνου κατά τη διάρκεια και μετά το τέλος της ενεργοποίησης [15]

Πολλές φορές τα προϊόντα τέτοιων αντιδράσεων (νετρόνιο + πυρήνας-στόχος) μπορεί να είναι και σταθερά (μη ραδιενεργά) ισότοπα. Αν ο παραγόμενος πυρήνας είναι σταθερός ή όχι εξαρτάται από την αναλογία που υπάρχει μεταξύ νετρονίων και πρωτονίων σε αυτόν. Στα σταθερά ισότοπα η αναλογία νετρονίων και πρωτονίων είναι της τάξης 1.0 για τα ελαφρά στοιχεία και αυξάνεται στο περίπου 1.5 για τα βαρέα στοιχεία. Αν ο λόγος αυτός διαφέρει από την κλίμακα λόγων τότε ο πυρήνας είναι ασταθής και μεταπίπτει σε σταθερή κατάσταση με ραδιενεργή διάσπαση. Αυτό σημαίνει ότι ένας πυρήνας μπορεί να γίνει ραδιενεργός με την απορρόφηση ενός επιπλέον νετρονίου, ωστόσο αυτή η διαδικασία μπορεί να δώσει έναν δεύτερο σταθερό πυρήνα. Ένα στοιχείο μπορεί να έχει αρκετά ισότοπα σε μια σειρά ατομικών αριθμών [8]. Συνεπώς το κατά πόσον ο παραγόμενος πυρήνας θα είναι σταθερός ή ραδιενεργός εξαρτάται από τον αρχικό πυρήνα που ενεργοποιείται, αλλά και την αντίδραση ενεργοποίησης.

3.3.2 Τεχνικές ανάλυσης με Νετρονική Ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία

Τα πρώτα πειράματα νετρονικής ενεργοποίησης αναφέρονται στη δεκαετία 1940. Με την παράλληλη ανάπτυξη της φασματοσκοπίας των ακτινών-γ, η μέθοδος εξελίχθηκε γρήγορα, με αποτέλεσμα σήμερα να είναι καθιερωμένη μέθοδος ανάλυσης γνωστή ως Ανάλυση με Νετρονική Ενεργοποίηση. Η NAA εφαρμόζεται επιτυχώς για την ανίχνευση ιχνοστοιχείων σε ένα μεγάλο εύρος τύπων δειγμάτων όπως: περιβαλλοντικά δείγματα (Bem, Gallorini, Rizzio, & Krzeminska, 2003), γεωλογικά δείγματα (π.χ. ορυκτά, πετρώματα, μέταλλα, λάβα ηφαιστειών) (Sroor, 2003), δείγματα χλωρίδας (όπως η κυτταρίνη φυτού στην παρούσα εργασία) (Djingona, Wagner, & Kuleff, 1999), τρόφιμα, βιολογικά δείγματα (π.χ. αίμα, ιστοί, τρίχες, δόντια, κόκαλα) (Pazirandeh, Brati, & Ghannadi Marageh, 1998), βιομηχανικά προϊόντα (π.χ. κράματα, κεραμικά, ύαλοι, οργανικά υλικά) (Killick & Morris, 1962), αρχαιολογικά ευρήματα (Zamudio-Zamudio, Garrido-Alfonseca, Tenorio, & Jimenez-Reyes, 2003), στην ιατροδικαστική έρευνα (forensic) κλπ. Λεπτομερής

βιβλιογραφική ανασκόπηση της μεθόδου αναφέρεται στη διδακτορική διατριβή της δρ. Παναγιώτας Ρούνη[13].

Υπάρχουν δύο τεχνικές ανάλυσης νετρονικής ενεργοποίησης εξαρτώμενες από τον χρόνο που γίνεται η γ-φασματοσκοπική ανάλυση των ενεργοποιημένων δειγμάτων:

- **Ανάλυση της άμεσης ακτινοβολίας-γ** όπου η ακτινοβολία-γ μετράται άμεσα από τον διεγερμένο πυρήνα-στόχο παράλληλα με την ακτινοβόλησή του. Χρησιμοποιείται για τον προσδιορισμό χημικών στοιχείων τα οποία δεν σχηματίζουν ραδιενεργά παράγωγα μετά την ακτινοβόλησή τους ή για στοιχεία με πολύ μικρούς χρόνους ημιζωής.
- **Ανάλυση της καθυστερημένης ακτινοβολίας-γ** όπου μετράται η ακτινοβολία-γ που προέρχεται από τις διασπάσεις των ραδιενεργών ισοτόπων αφού έχει παύσει η νετρονική ενεργοποίηση και το δείγμα έχει απομακρυνθεί από την πηγή νετρονίων. Αυτή η μέθοδος ακολουθείται στην παρούσα ΔΕ και στο εξής θα αναφέρεται απλά ως Ανάλυση με Νετρονική Ενεργοποίηση (NAA). [16] ,[17].

Ανάλογα με την προετοιμασία των προς ακτινοβόληση δειγμάτων διακρίνονται δύο τεχνικές [18]:

- **Ραδιοχημική ανάλυση** με νετρονική ενεργοποίηση στην οποία τα δείγματα πρώτα υποβάλλονται σε χημική επεξεργασία και μετά σε νετρονική ενεργοποίηση. Κατά την επεξεργασία αυτή απομακρύνονται τα στοιχεία που δεν ενδιαφέρουν και δυσκολεύουν την ανίχνευση των ζητούμενων.
- **Ενόργανος ανάλυση** με νετρονική ενεργοποίηση στην οποία δεν πραγματοποιείται κάποια χημική επεξεργασία των δειγμάτων πριν υποβληθούν σε νετρονική ενεργοποίηση. Αυτή η μέθοδος ακολουθείται στην παρούσα ΔΕ και στο εξής θα αναφέρεται απλά ως Ανάλυση με Νετρονική Ενεργοποίηση (NAA).

Στην παρούσα εργασία ακολουθήθηκε η μέθοδος ανάλυσης των «καθυστερημένων» ακτίνων-γ, ενώ δεν προηγήθηκε χημική επεξεργασία των δειγμάτων.

Οι δυνατότητες πυρηνικής ανάλυσης δεν περιορίζονται στις αντιδράσεις σύλληψης νετρονίων. Ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση μπορεί επίσης να

πραγματοποιηθεί χρησιμοποιώντας νετρόνια και μεγαλύτερων ενεργειών. Συνεπώς, η τεχνική της νετρονικής ενεργοποίησης μπορεί να χρησιμοποιηθεί για όλα τα είδη των νετρονίων, δηλαδή, θερμικά, επιθερμικά και ταχέα.

Η γ-φασματοσκοπία επιτρέπει τον ταυτόχρονο προσδιορισμό της συγκέντρωσης πολλών στοιχείων με επίπεδα ανιχνευσιμότητας της τάξης των $\mu\text{g}/\text{kg}$. Η επιλογή της διάρκειας νετρονικής ενεργοποίησης και της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης, δηλαδή του σεναρίου ανάλυσης όπως θα αναφέρεται στη συνέχεια, είναι τις περισσότερες φορές καθοριστικής σημασίας για την αύξηση της ευαισθησίας του προσδιορισμού των συστατικών στοιχείων ενός δείγματος [19].

3.4 Πηγές Νετρονίων

Στις περισσότερες εφαρμογές η νετρονική ενεργοποίηση πραγματοποιείται σε ροές θερμικών νετρονίων, με τις μεγαλύτερες τιμές αυτών να παρατηρούνται σε πυρηνικούς αντιδραστήρες. Όσο μεγαλύτερη είναι η ροή νετρονίων, τόσο μεγαλύτερη είναι η τιμή της ραδιενέργειας των προϊόντων που παράγονται από την διαδικασία της νετρονικής ενεργοποίησης, γεγονός που τα καθιστά πιο εύκολα ανιχνεύσιμα. Για τις περιπτώσεις που απαιτούνται ταχέα νετρόνια χρησιμοποιούνται οι γεννήτριες νετρονίων (D-T) καθώς και επιταχυντές ηλεκτρονίων, όπως το βήτατρο, το σύγχροτρο ή οι γραμμικοί επιταχυντές. Υπάρχουν όμως και μικρότερες πηγές νετρονίων όπως οι ισοτοπικές πηγές νετρονίων ^{252}Cf ή Am-Be, Pu-Be, οι οποίες χρησιμοποιούνται περισσότερο σε ειδικές εφαρμογές. Πιο αναλυτικά τα τρία βασικά είδη πηγών νετρονίων είναι :

Ισοτοπικές πηγές: Διακρίνονται στις εξής επιμέρους κατηγορίες:

- Ισοτοπικές πηγές (α , n): Τα νετρόνια παράγονται με την εξής πυρηνική αντίδραση: $^9\text{Be} + ^4\text{He} \rightarrow ^{12}\text{C} + n + 5,704 \text{ MeV}$

Πρόκειται για διμερείς πηγές αποτελούμενες από ^9Be και ένα φυσικό ραδιενεργό ή υπερουράνιο στοιχείο (^{210}Po , ^{226}Ra , ^{239}Pu , ^{241}Am , ^{242}Cm) που είναι πηγή σωματιδίων- α . Οι συνήθεις ροές νετρονίων είναι της τάξης των 10^6 nps/Ci.

- Ισοτοπικές πηγές (γ , n): Πραγματοποιούνται λόγω τη διάσπασης πυρήνων ύστερα από απορρόφηση φωτονίων ενέργειας μεγαλύτερης του ενεργειακού κατωφλίου. Ως πυρήνας στόχος χρησιμοποιείται Be ή D (δευτέριο), ενώ τα φωτόνια επαρκούς ενέργειας παρέχονται από ισότοπα όπως ^{24}Na , ^{56}Mn , ^{72}Ga , ^{88}Y , ^{124}Sb , ^{140}La . Η χρήση τους είναι περιορισμένη λόγω των χαμηλών ροών νετρονίων της τάξης των 10^4 nps/Ci.
- Αυτό-διασπώμενες ισοτοπικές πηγές : Κυρίως υπερουράνια στοιχεία με υψηλή πιθανότητα πραγματοποίησης αυθόρμητης σχάσης. Χαρακτηριστικό παράδειγμα αποτελεί το ισότοπο ^{252}Cf με ικανότητα παραγωγής 2.34×10^{12} nps/gr.

Πυρηνικοί αντιδραστήρες: Οι περισσότεροι είναι αντιδραστήρες θερμικών νετρονίων που λειτουργούν με εμπλουτισμένο ουράνιο. Έχουν ισχύ από μερικά kW ως MW ανάλογα με τον τύπο του αντιδραστήρα, δηλαδή αν πρόκειται για πειραματικό ή για πυρηνικό αντιδραστήρα ισχύος. Το κυριότερο πλεονέκτημα τους σε σχέση με τις ισοτοπικές πηγές, είναι οι υψηλές ροές νετρονίων που μπορούν να παράγουν και φτάνουν σε τιμές έως και $10^{18} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Οι ροές αυτές μεταβάλλονται χρονικά και από θέση σε θέση, γι' αυτό δεν είναι εύκολη η εκτίμησή τους. Ως εκ τούτου ακτινοβολούνται μαζί με το δείγμα και πρότυπα μεταλλικά φύλλα (foil) γνωστής σύστασης. [13]

Άλλες πηγές νετρονίων: Άλλες πηγές νετρονίων είναι οι γεννήτριες νετρονίων με πιο γνωστές την γεννήτρια D-T, το κύκλοτρο, τον επιταχυντή Van de Graff, τους γραμμικούς επιταχυντές και το βήτατρο.

Η μέθοδος της νετρονικής ενεργοποίησης, χρησιμοποιείται κυρίως σε επιστημονικά ινστιτούτα και εργαστήρια που έχουν στη διάθεσή τους πυρηνικό αντιδραστήρα ή γεννήτριες νετρονίων, κύκλοτρα τα οποία μπορούν παράγουν ισχυρές ροές νετρονίων. Όταν πραγματοποιείται ενεργοποίηση σε πυρηνικούς αντιδραστήρες, η μεγάλη ροή νετρονίων είναι το κύριο πλεονέκτημα. Οι τιμές της ροής είναι της τάξης των $10^{14} - 10^{18} \text{ n/(cm}^2\text{-sec)}$, έναντι των ισοτοπικών πηγών νετρονίων, που έχουν περιορισμένες δυνατότητες εκπέμποντας ροή της τάξης των $10^6 - 10^7 \text{ n/(sec-Ci)}$. Όσο μεγαλύτερη είναι η ροή νετρονίων, τόσο υψηλότερα θα είναι τα επίπεδα

ραδιενέργειας των προϊόντων που θα προκύψουν, άρα θα είναι και πιο μεγάλη η δυνατότητα ανίχνευσης και η ευαισθησία της μέτρησης.

Ωστόσο η χρησιμοποίηση ισοτοπικών πηγών νετρονίων μας δίνει την δυνατότητα να έχουμε σταθερή ροή. Ένα ακόμα πλεονέκτημα τους είναι ότι δεν υπάρχει κίνδυνος καταστροφής του δείγματος λόγω υψηλής θερμοκρασίας, ενώ μπορεί η μέθοδος να πραγματοποιηθεί και σε εγκαταστάσεις με μικρότερες δυνατότητες, χωρίς την ύπαρξη ακριβών διατάξεων για διατήρηση της σταθερής έντασης της δέσμης νετρονίων ή κατάλληλης θωράκισης. Η χρήση πηγής νετρονίων για ενεργοποίηση παρέχει, λόγω χαμηλής ενεργότητας του ενεργοποιημένου δείγματος, τη δυνατότητα τοποθέτησης του σε ανιχνευτική διάταξη, αμέσως μετά την απομάκρυνσή του από την πηγή, οπότε διευκολύνεται ο εντοπισμός των βραχύβιων ισοτόπων. Επίσης είναι πιο εύκολο να κατασκευαστεί μια διάταξη για γ-φασματοσκοπική ανάλυση του δείγματος ενώ αυτό ενεργοποιείται από πηγή νετρονίων δηλαδή για ανάλυση της άμεσα εκπεμπόμενης γ-ακτινοβολίας.

Το ΕΠΤ-ΕΜΠ δεν έχει τη δυνατότητα των μεγάλων μονάδων παραγωγής νετρονίων όπως οι πυρηνικοί αντιδραστήρες και οι επιταχυντές, διαθέτει όμως ισοτοπικές πηγές νετρονίων.

3.5 Ποσοτικός προσδιορισμός με Νετρονική Ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία

Για τον προσδιορισμό της μάζας των ιχνοστοιχείων έχουν δοθεί αναλυτικά οι νόμοι και οι χρήσιμες σχέσεις [13] που διέπουν την νετρονική ενεργοποίηση των πυρήνων. Η ραδιενέργεια που παράγει το ενεργοποιημένο ισότοπο, του οποιοδήποτε στοιχείου, είναι εύκολο να προσδιοριστεί, αν είναι γνωστές οι πυρηνικές σταθερές και η ροή νετρονίων. Μέσω της ραδιενέργειας αυτής μπορούμε να υπολογίσουμε την μάζα από τη σχέση :

$$A_0 = \lambda \cdot N^* = \sigma \cdot \phi \cdot N_i \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \quad (3.7)$$

$$\text{Άρα,} \quad A_0 = \sigma \cdot \phi \cdot m \cdot N_A \cdot \theta \cdot \frac{(1 - e^{-\lambda t})}{AB} \quad (3.8)$$

όπου

A_0 : η ραδιενέργεια

N_A : ο αριθμός Avogadro,

ϕ : η ροή νετρονίων, σε νετρόνια ανά m^2 ανά sec

σ : η μικροσκοπική ενεργός διατομή σε μονάδες επιφάνειας m^2

AB : το ατομικό βάρος του στοιχείου

θ : η φυσική ισοτοπική αναλογία και

m : η μάζα

Εφόσον η ραδιενέργεια είναι γνωστή ή μπορεί να προσδιορισθεί πειραματικά, η μάζα υπολογίζεται από τη σχέση:

$$m = A_0 \cdot \frac{AB}{NA \cdot \phi \cdot \sigma \cdot \theta \cdot (1 - e^{-\lambda t})} \quad (3.9)$$

3.5.1 Βαθμονόμηση της μεθόδου ανάλυσης με Νετρονική Ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία

Με όποιο τρόπο και αν γίνει η ενεργοποίηση του δείγματος μας και η γ-φασματοσκοπική ανάλυση, για να έχουμε και τον ποσοτικό προσδιορισμό των στοιχείων, πέρα από τον ποιοτικό, πρέπει η μέθοδος ανάλυσης να είναι σωστά βαθμονομημένη. Με βάση την βιβλιογραφία υπάρχουν τρεις κύριες μέθοδοι βαθμονόμησης [8].

- Απόλυτη Τεχνική
- Μέθοδος Συντελεστή “k”
- Με πρότυπα υλικά αναφοράς

Βαθμονόμηση με την Απόλυτη τεχνική : Όπως αναφέρθηκε και στην προηγούμενη παράγραφο, γνωρίζοντας την ραδιενέργεια του ισότοπου, μπορούμε να υπολογίσουμε και την μάζα του με την χρήση του τύπου 3.9 . Η ραδιενέργεια A_0 προκύπτει από την φασματοσκοπία σε ανιχνευτή γερμανίου γ-ακτινοβολίας, που

είναι βαθμονομημένος ως προς την απόδοση λαμβάνοντας υπόψη το ποσοστό εκπομπής της αντίστοιχης ακτινοβολίας σύμφωνα με τη σχέση 3.10:

$$A_0 = \frac{\text{ρυθμός εκπομπής}}{\text{eff} \cdot \text{yield} \cdot e^{-\lambda t}} \quad (3.10)$$

όπου,

A_0 : η ραδιενέργεια, εξαιτίας ακτινοβολίας-γ συγκεκριμένης ενέργειας E,

ρυθμός εκπομπής: ο ρυθμός εκπομπής ακτινοβολίας-γ για τη συγκεκριμένη ενέργεια

eff: η απόδοση του ανιχνευτή γερμανίου για τη συγκεκριμένη ενέργεια E,

yield: το ποσοστό εκπομπής ακτινοβολίας-γ στη συγκεκριμένη ενέργεια, E,

λ : είναι η σταθερά διάσπασης,

t: το χρονικό διάστημα που μεσολαβεί πριν την γ-φασματοσκοπική ανάλυση

Οπότε η μάζα δίνεται από την σχέση:

$$m = \frac{\text{ρυθμός εκπομπής}}{\text{eff} \cdot \text{yield} \cdot e^{-\lambda t}} \cdot \frac{AB}{N_A \cdot \varphi \cdot \sigma \cdot \theta \cdot (1 - e^{-\lambda t})} \quad (3.11)$$

Τα μεγέθη που χρειάζονται στον υπολογισμό της μάζας, ατομικό βάρος AB, ο αριθμός Avogadro, N_A , και η ισοτοπική αναλογία θ , είναι γνωστά. Η ενεργός διατομή σ , μπορεί να εκτιμηθεί αν χρησιμοποιήσουμε μετρήσεις γνωστής μάζας στοιχείου και την σχέση 3.11. Οι αβεβαιότητες μπορεί να είναι αρκετά υψηλές, ειδικά για βραχύβια ισότοπα. Η σταθερά διάσπασης και το ποσοστό εκπομπής ακτινοβολίας-γ στη συγκεκριμένη ενέργεια είναι γνωστά με ακρίβεια, ενώ για τα βραχύβια ισότοπα υπάρχει μεγαλύτερη αβεβαιότητα. Η απόδοση του ανιχνευτή εκτιμάται για την συγκεκριμένη γεωμετρία δείγματος-ανιχνευτή. Ο μόνος παράγοντας που δεν μπορεί εύκολα να εκτιμηθεί είναι η ροή νετρονίων, επειδή ποικίλλει όχι μόνο ανάλογα με την πηγή, αλλά και μέσα στην ίδια πηγή. Η ακριβής μέτρηση της ροής των νετρονίων υπολογίζεται μέσω της ραδιενέργειας ενός ενεργοποιημένου δισκίου (foil) χρησιμοποιώντας την εξίσωση ενεργοποίησης. Σε έναν τέτοιο υπολογισμό πρέπει το δισκίο να επιλέγεται έτσι ώστε να παρέχει πληροφορίες για την θερμική αλλά και την επιθερμική συνιστώσα της ροής των νετρονίων και μάλιστα με κατάλληλη γεωμετρία. Όσον αφορά τώρα τους χρόνους

ενεργοποίησης, αναμονής μετά την ενεργοποίησης και ανάλυσης, αυτοί μπορούν να καταμετρηθούν με ακρίβεια.

Βαθμονόμηση με την τεχνική του συντελεστή “k” : Επειδή τα σφάλματα και οι αβεβαιότητες στην Απόλυτη τεχνική δεν είναι εύκολο να περιοριστούν τις περισσότερες φορές, μπορεί να ακολουθηθεί η συγκριτική τεχνική που συνίσταται στη σύγκριση της εξίσωσης ενεργοποίησης για το foil και για το στοιχείο που ενδιαφέρει και η απαλοιφή των κοινών μεγεθών, στα οποία εκτός από τη σταθερά Avogadro περιλαμβάνεται και η ροή νετρονίων. Οπότε σύμφωνα με τη σχέση 3.11 προκύπτει ο λόγος :

$$\frac{m}{m^*} = \frac{\frac{cps \cdot AB}{\theta \cdot \sigma \cdot eff \cdot yield \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \cdot e^{-\lambda t d}}}{\frac{cps^* \cdot AB^*}{\theta^* \cdot \sigma^* \cdot eff^* \cdot yield^* \cdot (1 - e^{-\lambda^* t}) \cdot e^{-\lambda^* t d}}} \quad (3.12)$$

όπου:

m : η ζητούμενη μάζα του στοιχείου, ενώ m* : η γνωστή μάζα του foil,

AB, AB* : το ατομικό βάρος του μελετώμενου στοιχείου και του στοιχείου του foil αντίστοιχα,

cps, cps* : ο ρυθμός εκπομπής ακτινοβολίας -γ για τη συγκεκριμένη ενέργεια του δείγματος και του foil αντίστοιχα,

σ, σ* : η ενεργός διατομή στο σημείο του δείγματος και του foil αντίστοιχα, σε m²,

λ, λ* : είναι η σταθερά διάσπασης του μελετώμενου ισότοπου και του ισότοπου του foil αντίστοιχα,

t: το χρονικό διάστημα ακτινοβολήσης,

θ, θ* : η φυσική ισοτοπική αναλογία του μελετώμενου ισότοπου και του ισότοπου του foil αντίστοιχα,

eff, eff* : η απόδοση των ανιχνευτών που αναλύθηκαν το δείγμα και το foil αντίστοιχα για τη συγκεκριμένη ενέργεια E,

yield, yield* : το ποσοστό εκπομπής ακτινοβολίας -γ του μελετώμενου ισότοπου και του ισότοπου του foil αντίστοιχα, στη συγκεκριμένη ενέργεια E

και

td: το χρονικό διάστημα που μεσολαβεί πριν την γ-φασματοσκοπική ανάλυση.

Η ειδική ραδιενέργεια A_{sp} ορίζεται από την εξής σχέση:

$$A_{sp} = \frac{cps}{m \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \cdot e^{-\lambda t_d}} \quad (3.13)$$

όπου:

cps: ο ρυθμός εκπομπής ακτινοβολίας -γ για τη συγκεκριμένη ενέργεια

m : η μάζα του στοιχείου,

λ: είναι η σταθερά διάσπασης του μελετώμενου ισοτόπου

t: το χρονικό διάστημα ακτινοβολήσης,

td: το χρονικό διάστημα που μεσολαβεί πριν την γ-φασματοσκοπική ανάλυση

Έτσι λοιπόν , παίρνοντας τον αντίστοιχο λόγο για την ειδική ραδιενέργεια foil , και διαιρώντας τα δύο αυτά μεγέθη, απαλείφονται οι κοινοί όροι και καταλήγουμε στην παρακάτω σχέση η οποία αποτελεί και τον συντελεστή **k**.

$$k = \frac{A_{sp}}{A^*_{sp}} = \frac{AB^* \cdot \theta \cdot \sigma \cdot eff \cdot yield}{AB \cdot \theta^* \cdot \sigma^* \cdot eff^* \cdot yield^*} \quad (3.14)$$

όπου

AB, AB*: το ατομικό βάρος του μελετώμενου στοιχείου και του στοιχείου του foil αντίστοιχα,

σ, σ*: η ενεργός διατομή στο σημείο του δείγματος και του foil αντίστοιχα, σε m²,

θ, θ*: η φυσική ισοτοπική αναλογία του μελετώμενου ισοτόπου και του ισοτόπου του foil αντίστοιχα,

eff, eff*: η απόδοση των ανιχνευτών όπου αναλύθηκαν το δείγμα και το foil αντίστοιχα για τη συγκεκριμένη ενέργεια, E,

yield, yield*: το ποσοστό εκπομπής ακτινοβολίας -γ του μελετώμενου ισοτόπου και του ισοτόπου του foil αντίστοιχα, στη συγκεκριμένη ενέργεια, E.

Απαραίτητη προϋπόθεση για να είναι σωστός ο υπολογισμός του λόγου **k** είναι η γεωμετρία της ενεργοποίησης και στις δύο περιπτώσεις να είναι ίδια, ειδάλως απαιτούνται διορθωτικοί όροι.

Άρα η τελική τιμή που παίρνει η σχέση με την χρήση του όρου, **k**, είναι:

$$A_{sp} = k \cdot A_{sp}^* \quad (3.15)$$

Όπου A_{sp} η ειδική ραδιενέργεια του στοιχείου που μελετάται και A_{sp}^* η ειδική ραδιενέργεια του foil.

Βαθμονόμηση με Πρότυπα υλικά αναφοράς : Στη μέθοδο αυτή, η οποία ακολουθήθηκε και στην παρούσα διπλωματική εργασία, αντί για δισκία (foil), παρασκευάζονται πρότυπα δείγματα από πιστοποιημένα υλικά γνωστής σύστασης, τα οποία ενεργοποιούνται με ίδιες συνθήκες (με την ίδια πηγή, στην ίδια θέση, για τον ίδιο χρόνο) με τα άγνωστα δείγματα, ώστε να γίνει η σωστή βαθμονόμηση της μεθόδου και στη συνέχεια αναλύονται με γ-φασματοσκοπία στον ίδιο ανιχνευτή και για το ίδιο χρονικό διάστημα. Απολύτως απαραίτητο είναι η γεωμετρία του πρότυπου δείγματος να είναι ίδια με αυτή των αγνώστων δειγμάτων, τόσο για την ενεργοποίηση όσο και για την γ-φασματοσκοπία. Επίσης, για να περιοριστεί η αβεβαιότητα προτιμάται το είδος των πρότυπων υλικών να είναι αντίστοιχο με αυτό των δειγμάτων που θα αναλυθούν με νετρονική ενεργοποίηση. Διεθνείς φορείς και ινστιτούτα διαθέτουν διάφορα πιστοποιημένα υλικά, πχ. χώματα, ιζήματα, ιπτάμενη τέφρα κα., ώστε να επιλεγεί το πιο παρόμοιο με το εκάστοτε άγνωστο δείγμα προς ανάλυση.

Χρησιμοποιώντας την σχέση 3.11 τόσο για το πρότυπο δείγμα όσο και για το άγνωστο, και απαλείφοντας τις ίδιες παραμέτρους, καταλήγουμε στην παρακάτω σχέση από την οποία προκύπτει ο συντελεστής βαθμονόμησης λ , της διαδικασίας:

$$\lambda = \frac{m}{cps} = \frac{m^*}{cps^*} \quad (3.16)$$

όπου

m : η μάζα του συγκεκριμένου στοιχείου στο μελετώμενο δείγμα

cps : ο ρυθμός εκπομπής ακτινοβολίας-γ για τη συγκεκριμένη ενέργεια κατά την ανάλυση του μελετώμενου δείγματος και

m^* : η μάζα του συγκεκριμένου στοιχείου στο δείγμα αναφοράς

cps^* : ο ρυθμός εκπομπής ακτινοβολίας-γ για τη συγκεκριμένη ενέργεια κατά την ανάλυση του προτύπου δείγματος αναφοράς.

Για να γίνει η απαλοιφή των όρων όπως προαναφέραμε, απαραίτητη προϋπόθεση αποτελεί το να έχουμε ίδια γεωμετρία στις ενεργοποιήσεις και των δύο υλικών καθώς και στην πηγή νετρονίων.[13].

3.6 Πλεονεκτήματα και μειονεκτήματα της Ανάλυσης με Νετρονική Ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία

Η ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση είναι μια μέθοδος με σημαντικά πλεονεκτήματα. Απαιτείται ελάχιστη προετοιμασία του δείγματος, μειώνοντας έτσι την πιθανότητα να αλλοιωθεί κατά την παραμονή του στο εργαστήριο. Παρουσιάζει πολύ υψηλή ακρίβεια, αξιοπιστία και επαναληψιμότητα. Αξίζει επίσης να σημειωθεί ότι περίπου το 70 % των στοιχείων του περιοδικού πίνακα έχουν ιδιότητες που επιτρέπουν την ανίχνευσή τους με χρήση της τεχνικής της NAA [8].

Τα ποικίλα πλεονεκτήματά της ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση ευθύνονται και για το πλήθος των εφαρμογών της. Η τεχνική έχει βρει εφαρμογές στη γεωλογία, την αρχαιολογία, τον έλεγχο για παρουσία βαρέων μετάλλων και τοξικών στοιχείων όπως το Αρσενικό κα. στο περιβάλλον και το νερό, αλλά και στη βιομηχανία, την τεχνολογία νέων υλικών, κεραμικών, ημιαγωγών. Έχει ακόμα χρησιμοποιηθεί στη βιολογία, την ιατροδικαστική, τη βιοϊατρική, σε βιοχημικές και τοξικολογικές μελέτες. Εκτεταμένα επίσης εφαρμόζεται και στην πιστοποίηση προτύπων υλικών αναφοράς (Standard Reference Materials – SRM).

Ανάλογα με το υλικό στο οποίο γίνεται η μέτρηση, η ευαισθησία της τεχνικής μπορεί να φτάσει και την τάξη των parts per billion (ppb), [8], θεωρώντας βέβαια ακτινοβόληση σε πεδίο νετρονίων με ροή $10^{13} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$, όπως συμβαίνει στους πυρηνικούς αντιδραστήρες που χρησιμοποιούνται ως επί το πλείστον για τέτοιες αναλύσεις.

Παρόλα αυτά, η χρήση της NAA σε πυρηνικούς αντιδραστήρες έχει και κάποιους περιορισμούς καθώς μπορούν να αναλυθούν δείγματα με μάζα που κυμαίνεται από λίγα χιλιοστά του γραμμαρίου (milligrams) έως μερικά γραμμάρια (grams) ή

αντίστοιχα με όγκο που κυμαίνεται από μερικά εκατομμυριοστά (μl) έως μερικά χιλιοστά του λίτρου (ml). Αυτός ο περιορισμός στη μάζα του υλικού δεν επιτρέπει την αξιοποίησή της στην περίπτωση δειγμάτων με μεγαλύτερο όγκο, π.χ. της τάξης των μερικών λίτρων, αποκλείοντας επομένως τη χρήση της τεχνικής από μια σειρά εφαρμογών. Στα πλαίσια, για παράδειγμα, μελετών της πολιτιστικής κληρονομιάς και ερευνών για την προέλευση και αυθεντικότητα αρχαιολογικών ευρημάτων ή κειμηλίων τέχνης, τα υπό ανάλυση αντικείμενα χρειάζεται οπωσδήποτε να διατηρηθούν ακέραια, χωρίς να επιτρέπεται ο τεμαχισμός τους ή ο -με οποιοδήποτε τρόπο- τραυματισμός ή καταστροφή τους, προκειμένου να αποσπαστεί μια μικρή ποσότητα υλικού η οποία στη συνέχεια θα αναλυθεί. Όμως, ακόμα κι αν κάτι τέτοιο υποθετικά επιτρεπόταν, η μικρή αυτή ποσότητα υλικού θα αντιστοιχούσε σε ένα ελάχιστο –και ενδεχομένως όχι αντιπροσωπευτικό- μέρος της συνολικής μάζας του αντικειμένου. Επιπλέον, υπάρχει πληθώρα υλικών, όπως είναι τα ιζήματα ή τα ηλεκτρονικά κατάλοιπα, στα οποία η ανομοιογένεια καθιστά εξαιρετικά δύσκολη έως και αδύνατη την αντιπροσωπευτική δειγματοληψία ή την ομογενοποίησή του δείγματος. Σε πολλές συνεπώς μελέτες και εφαρμογές, είναι αναγκαία η ανάλυση ολόκληρων αντικειμένων μεγάλου όγκου. Αυτή ακριβώς η απαίτηση για μια μη-καταστροφική πυρηνική τεχνική, ικανή να αναλύει ολόκληρα δείγματα με όγκο έως και αρκετά λίτρα, είναι που οδήγησε στην ανάπτυξη της τεχνικής της ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση μεγάλου όγκου σε ερευνητικούς αντιδραστήρες.

Κεφάλαιο 4^ο

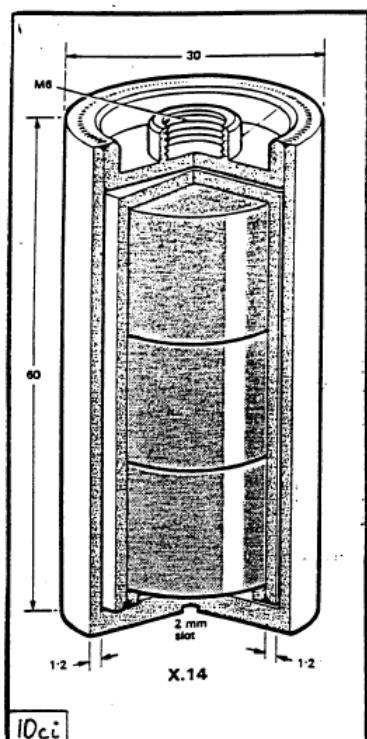
Βαθμονόμησης της τεχνικής ανάλυσης στερεών δειγμάτων με Νετρονική ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία στο ΕΠΤ

4.1 Εισαγωγή

Στο Εργαστήριο του Τομέα Πυρηνικής Τεχνολογίας του ΕΜΠ χρησιμοποιείται η τεχνική της Ανάλυσης με Νετρονική Ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία για τον προσδιορισμό μη ραδιενεργών ιχνοστοιχείων σε διάφορα δείγματα. Αντικείμενο της παρούσας Διπλωματικής Εργασίας είναι η ανάλυση με NAA στερεών περιβαλλοντικών δειγμάτων με NAA. Στο κεφάλαιο αυτό παρουσιάζεται η διάταξη ιστοπικής πηγής νετρονίων του ΕΠΤ-ΕΜΠ στην οποία τοποθετήθηκαν τα προς ενεργοποίηση δείγματα και ο ανιχνευτής Ge που χρησιμοποιήθηκε για τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση των ενεργοποιημένων δειγμάτων, ο οποίος διαθέτει και ταυτόχρονη λειτουργία με σύστημα Compton Suppression. Στη συνέχεια παρουσιάζεται η βαθμονόμηση της όλης διαδικασίας για τη συγκεκριμένη γεωμετρία 'πηγής –δείγματος' και 'δείγματος –ανιχνευτή' χρησιμοποιώντας δείγμα παρασκευασμένο από το Πιστοποιημένο υλικό SOIL-7 που το ΕΠΤ-ΕΜΠ έχει προμηθευτεί από τον Διεθνή Οργανισμό Ατομικής Ενέργειας (International Atomic Energy Agency). Η βαθμονόμηση έγινε για δύο σενάρια ακτινοβόλησης (1h για βραχύβια ισότοπα και 111h για μέτριας ημιζωής ισότοπα) ενώ για τη διερεύνηση του καλύτερου συνδυασμού νετρονικής ενεργοποίησης και γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης για τον ποσοτικό προσδιορισμό των ανιχνευμένων ισότοπων, λήφθηκαν γ-φάσματα διάρκειας από 15min έως 6 ημέρες. Το κεφάλαιο αυτό καταλήγει με τον υπολογισμό των συντελεστών βαθμονόμησης για τα ισότοπα που ανιχνεύονται στο πιστοποιημένο δείγμα και το σενάριο ακτινοβόλησης και γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης που προτείνεται για το καθένα από αυτά.

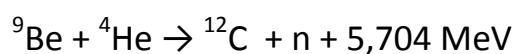
4.2 Πηγή Νετρονίων Am-Be του ΕΠΤ- ΕΜΠ

Για την παραγωγή νετρονίων για την νετρονική ενεργοποίηση δειγμάτων στο ΕΠΤ-ΕΜΠ χρησιμοποιείται η διμερής ισοτοπική πηγή $^{241}\text{Am-Be}$, Ραδιενέργειας (ενεργότητας) $10\text{ Ci } (=10^7\text{KBq})$ που κατά την προμήθειά της παρείχε ροή νετρονίων ($2,2 \times 10^7\text{ n/s} \pm 10\%$). Την πηγή αυτή προμηθεύτηκε το εργαστήριο από την εταιρία Amersham International Limited την δεκαετία του 1970. Στο Σχήμα 4.1 φαίνεται η κάψουλα που περιέχει την πηγή, ενώ στο Παράρτημα Α περιλαμβάνεται το Πιστοποιητικό της πηγής αυτής με τα τυπικά φάσματα νετρονίων που παράγει, όπως τα δίνει η κατασκευάστρια εταιρία.[20].



Σχήμα 4.1 Διμερής ισοτοπική πηγή σε κάψουλα.

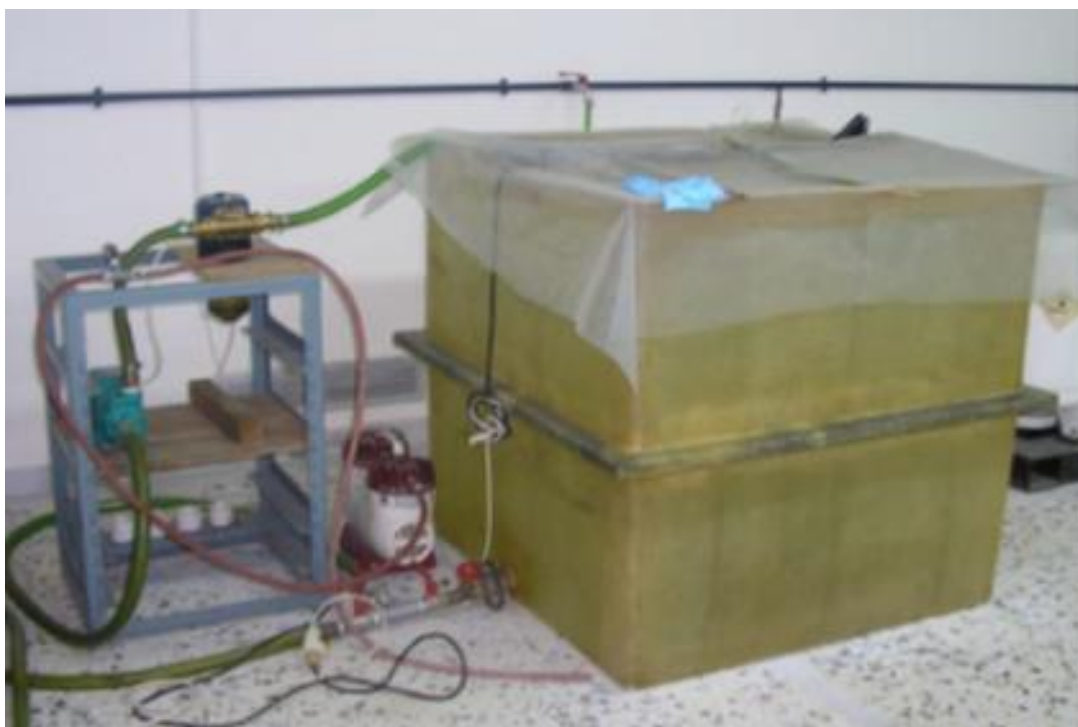
Η πηγή νετρονίων $^{241}\text{Am-Be}$ λειτουργεί με βάση την αντίδραση :



Από το ^{241}Am εκπέμπονται σωματίδια- α , δηλαδή πυρήνες Ηλίου ^4He , τα οποία αντιδρούν με τους πυρήνες ^9Be , με αποτέλεσμα να παράγονται πυρήνες ^{12}C , νετρόνια και να απελευθερώνεται ενέργεια με τη μορφή γ -ακτινοβολίας.

Με βάση την κατασκευάστρια εταιρία αυτή η πηγή είναι κατάλληλη για εφαρμογές νετρονικής ενεργοποίησης τόσο με ταχέα όσο και με θερμικά νετρόνια. Για τα ταχέα νετρόνια μέσω των αντιδράσεων (n,γ) , (n,α) , (n,p) και (n,n',γ) ενώ για τα θερμικά νετρόνια μέσω των αντιδράσεων (n,γ) . Για εφαρμογές νετρονικής ενεργοποίησης με θερμικά νετρόνια η εταιρία προτείνει πηγή 1-100 Ci, που μπορεί να έχει ανιχνευτική ικανότητα της τάξης του 1 ppm, ενώ για εφαρμογές με ταχέα νετρόνια, πηγή 10-100 Ci, με ανιχνευτική ικανότητα 100 ppm. Πηγές της τάξης 1-10 Ci προτείνονται για χονδρικούς ελέγχους ή για ενεργοποίηση ανθρώπινων ζωτικών οργάνων, για την ανίχνευση αζώτου και ασβεστίου [20].

Η πηγή του ΕΠΤ-ΕΜΠ βρίσκεται στο κέντρο δεξαμενής 1m^3 , (βλ. Σχήμα 4.2), τοποθετημένη σε ειδικά σχεδιασμένη βάση από πλεξιγκλάς. Η δεξαμενή που είναι γεμάτη με νερό για λόγους θωράκισης είναι κατασκευασμένη από πολυεστέρα.



Σχήμα 4.2 Δεξαμενή 1m^3 Νετρονικής ενεργοποίησης ΕΠΤ-ΕΜΠ

Το δείγμα που ακτινοβολείται τοποθετείται στο κυλινδρικό δοχείο όγκου 24ml που φαίνεται στο Σχήμα 4.3. Στο ίδιο σχήμα φαίνεται και ο δειγματοφορέας στον οποίο τοποθετείται το δοχείο για προστασία από το νερό της δεξαμενής. Ο δειγματοφορέας φέρει επιμήκη λαβή από πλεξιγκλάς για να είναι δυνατή η τοποθέτησή του σε απόσταση 41,5mm από την πηγή νετρονίων και αφαιρείται όταν ολοκληρώνεται η ενεργοποίηση.



Σχήμα 4.3. Δοχείο δείγματος και δειγματοφορέας Νετρονικής ενεργοποίησης

4.3 Ανιχνευτές ακτινοβολίας-γ του ΕΠΤ- ΕΜΠ

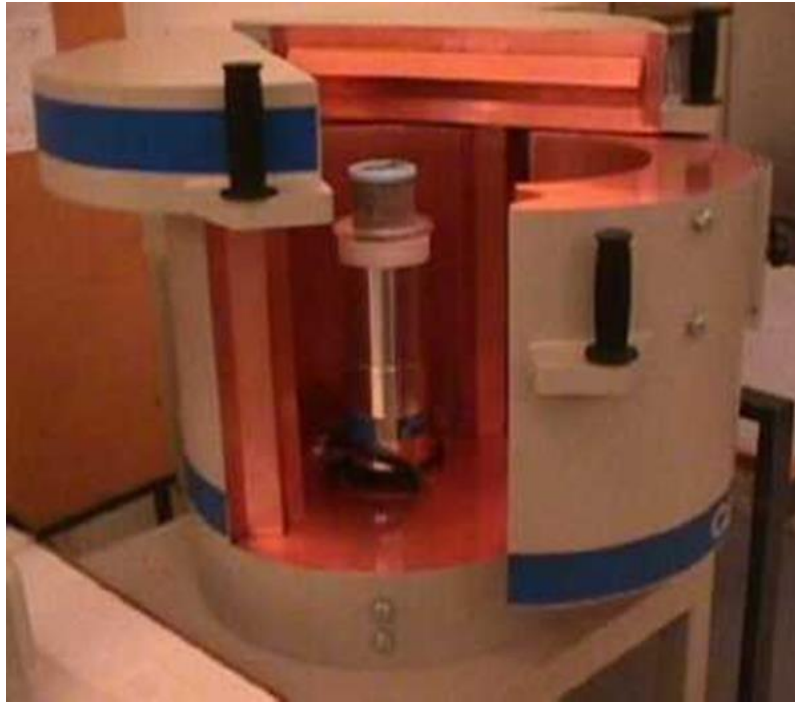
Στο εργαστήριο Πυρηνικής Τεχνολογίας του ΕΜΠ, όπου πραγματοποιήθηκαν όλα τα πειράματα της παρούσας διπλωματικής εργασίας, η γ-φασματοσκοπική ανάλυση εφαρμόζεται από την δεκαετία του 1970 και έχουν αναλυθεί εκατοντάδες δείγματα για τις συγκεντρώσεις φυσικών και ανθρωπογενών ραδιενεργών ισοτόπων σε διάφορα δείγματα, όπως χώματα, νερό, οικοδομικά υλικά, ιπτάμενη τέφρα, ιζήματα, τρόφιμα. Επίσης, πραγματοποιούνται αναλύσεις φίλτρων από αντλίες ατμοσφαιρικού αέρα για την ανίχνευση ραδιενεργών ισοτόπων στην ατμόσφαιρα. Εργαλεία για τις αναλύσεις αυτές αποτελούν οι ανιχνευτές ακτινοβολίας-γ. Στην παρούσα ΔΕ χρησιμοποιήθηκε ο ανιχνευτής Ge ευρείας κλίμακας (XTRA) που είναι πλέον εφοδιασμένος με σύστημα Compton Suppression που δίνει τη δυνατότητα να συλλέγονται ταυτόχρονα δύο τύποι φασμάτων, όπως περιγράφηκε στις παραγράφους 2.2.1 και 2.2.2.

4.3.1 Ανιχνευτής Γερμανίου ευρείας κλίμακας XtRa του ΕΠΤ-ΕΜΠ

Ο ανιχνευτής XtRa είναι ομοαξονικός ανιχνευτής Γερμανίου, με μεγάλο εύρος περιοχής ανίχνευσης ενεργειών (Extra Range Germanium Detector - XtRa), τύπου GX10021, που έχει κατασκευασθεί από την εταιρεία Canberra Industries (CI) και τέθηκε σε λειτουργία στο ΕΠΤ-ΕΜΠ το 1999. Η θωράκισή του είναι ένας κυλινδρικός θάλαμος τύπου front open split top (μοντέλο 767) της Canberra Industries και περιβάλλει τον ανιχνευτή εδραζόμενος σε ειδική βάση επιτρέποντας την τοποθέτηση και δειγμάτων μεγάλου όγκου (βλ. Σχήμα 4.4). Για την λειτουργία του ανιχνευτή απαιτείται συνεχής ψύξη σε θερμοκρασία υγρού αζώτου που παρέχεται από δοχείο Dewar χωρητικότητας 30lt. Η διάταξη συμπληρώνεται με τα απαραίτητα ηλεκτρονικά για τη συλλογή και την επεξεργασία του σήματος. Η διάταξη του ανιχνευτή XtRa συγκροτείται από :

- Ομοαξονικό ανιχνευτή γερμανίου εκτεταμένου εύρους (XtRa), της CI
- Τροφοδοτικό υψηλής τάσης, τύπου 3106D της CI
- Προ-ενισχυτής τύπου 2002CSL της CI, ενσωματωμένος στον κρουστάτη
- Ενισχυτής ύψους παλμών, τύπου 2026 της CI
- Αναλογοψηφιακός μετατροπέας, τύπου 8701 της CI
- Πολυκαναλικός αναλυτής, AIM-556A της CI
- Ελεγκτής στάθμης υγρού αζώτου (LN₂), τύπου 1786A της CI
- Θωράκιση, τύπου 767 της CI

Ο ανιχνευτής XtRa του ΕΠΤ-ΕΜΠ έχει διάμετρο 80mm, ύψος 78mm και βρίσκεται τοποθετημένος σε κρουστάτη τύπου 7500SL της εταιρείας Canberra Industries. Η απόσταση του κρυστάλλου από τον κρουστάτη είναι 5mm και το παράθυρο του κρουστάτη είναι κατασκευασμένο από ανθρακονήματα πάχους 0.5mm, γεγονός που τον καθιστά κατάλληλο για ανίχνευση φωτονίων χαμηλών ενεργειών. Λόγω των διαστάσεων του κρυστάλλου και των χαρακτηριστικών του παραθύρου του κρουστάτη, ο ανιχνευτής εμφανίζει υψηλή απόδοση σε μεγάλο ενεργειακό εύρος.



Σχήμα 4.4 Ο ανιχνευτής XtRa του ΕΠΤ-ΕΜΠ

Σύμφωνα με το πιστοποιητικό του κατασκευαστή (Βλ. παράρτημα Α), ο ανιχνευτής ΧtRa παρέχει (για σταθερά χρόνου ενισχυτή 6 μ s):

- FWHM = 1.03 keV για φωτόνια ενέργειας 122.06 keV
- FWHM = 2.04 keV για φωτόνια ενέργειας 1332.5 keV
- Peak/Compton = 82.2:1 για φωτόνια ενέργειας 1332.5 keV
- Σχετική απόδοση = 104.5% για φωτόνια ενέργειας 1332.5 keV

Η καταγραφή του φάσματος γίνεται σε προσωπικό Η/Υ με την βοήθεια της πλατφόρμας Genie 2000, της Canberra Industries.

4.3.2 Σύστημα Compton Suppression στον Χtra του ΕΠΤ-ΕΜΠ

Το 2011 ο ανιχνευτής ΧtRa του Εργαστηρίου Πυρηνικής Τεχνολογίας του ΕΜΠ αναβαθμίστηκε με την εγκατάσταση συστήματος Compton Suppression (ΧtCSS) με στόχο να βελτιωθούν οι ανιχνευτικές ικανότητες της διάταξης σε χαμηλές συγκεντρώσεις ραδιοϊσοτόπων τόσο σε περιβαλλοντικά δείγματα όσο και σε δείγματα Νετρονικής ενεργοποίησης.

Το Σύστημα Compton Suppression (ΧtCSS) που τοποθετήθηκε στον ανιχνευτή ΧtRa του ΕΠΤ-ΕΜΠ συγκροτείται ως εξής: Ο κύριος –πρωτεύοντας ανιχνευτής είναι ο ανιχνευτής ΧtRa. Η ενεργητική του θωράκιση αποτελείται από ένα δακτυλιοειδές τμήμα (annulus) και έναν επιπλέον ανιχνευτή (plug) ο οποίος αφαιρείται για την τοποθέτηση του δείγματος που θέλουμε να αναλύσουμε. Το σύστημα αυτό παρουσιάζεται στη ΔΔ Μ. Σάββα [3] από όπου και τα παρακάτω στοιχεία.

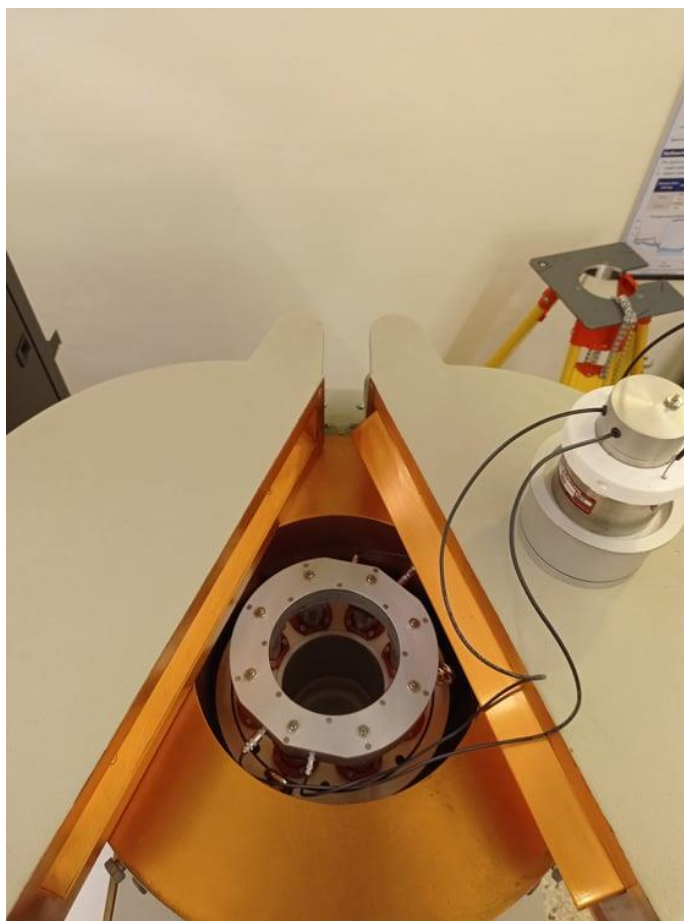
Η κατασκευή του δευτερεύοντος ανιχνευτή επιλέχθηκε να γίνει από NaI, λόγω του χαμηλού κόστους και της ικανοποιητικής απόδοσης του φωτοπολλαπλασιαστή, [21].

Οι διαστάσεις του δακτυλιοειδούς τμήματος επιλέχθηκαν έτσι ώστε ο πρωτεύων ανιχνευτής να περιβάλλεται πλήρως από τον δευτερεύοντα και είναι :

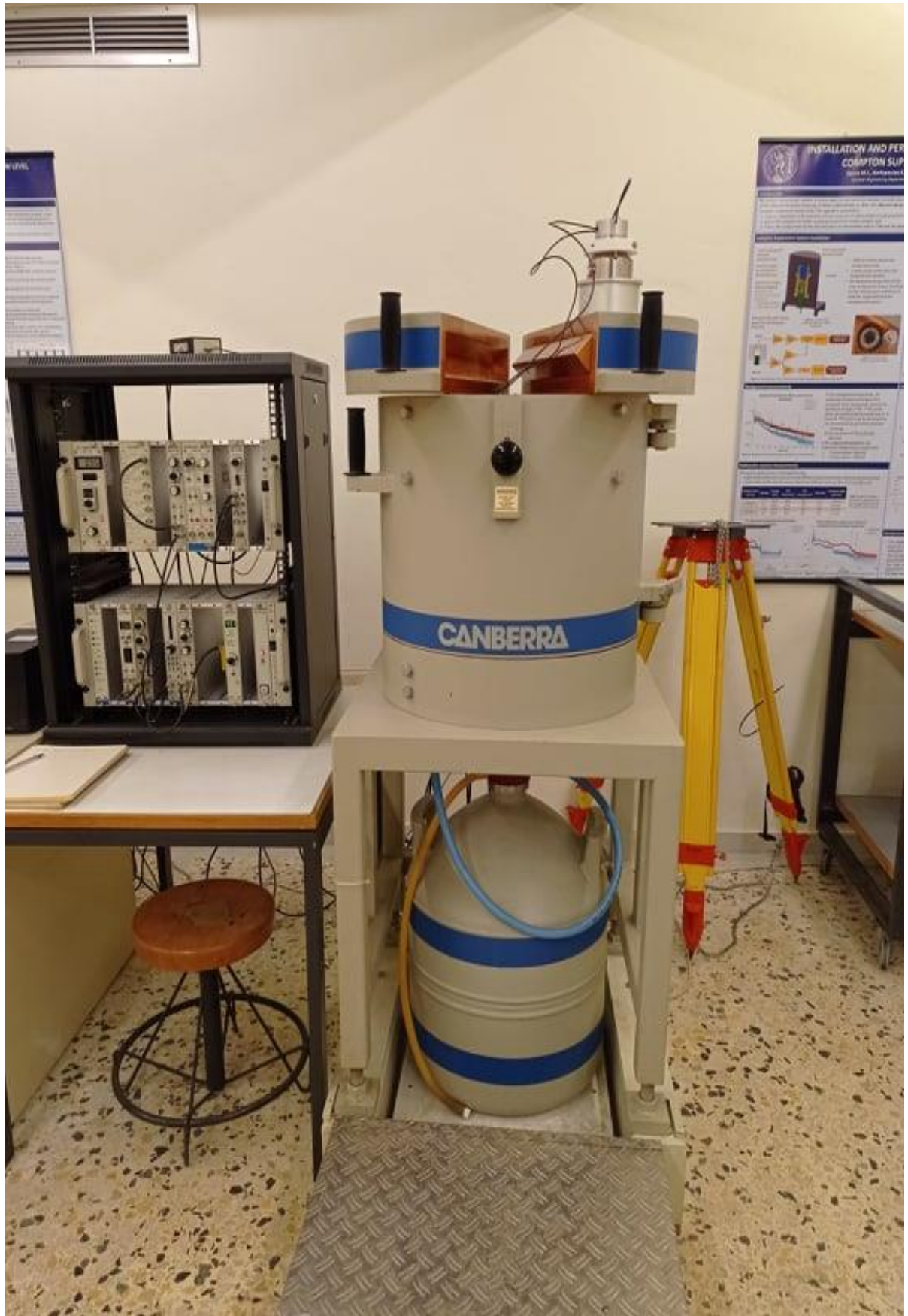
- Εσωτερική διάμετρος 111mm, εξωτερική 195mm και ύψος 267mm.
- Ο κυλινδρικός ανιχνευτής που αφαιρείται , έχει διάμετρο κρυστάλλου 103mm και ύψος κρυστάλλου 51mm.

Ο αφαιρούμενος κυλινδρικός ανιχνευτή (Plug) είναι διαμέτρου 103mm με ύψος κρυστάλλου 51mm και τοποθετείται στο άνω μέρος του συστήματος ώστε να ανιχνεύονται και τα οπισθοσκεδαζόμενα φωτόνια στον ανιχνευτή, με δυνατότητα ανίχνευσης σε γεωμετρία 4π .

Το δακτυλιοειδές τμήμα του ανιχνευτή βρίσκεται σε σύνδεση με οκτώ φωτοπολλαπλασιαστές, ενώ ο κυλινδρικός ανιχνευτής που αφαιρείται συνδέεται με έναν επιπλέον φωτοπολλαπλασιαστή. Και οι εννιά φωτοπολλαπλασιαστές τροφοδοτούνται από την ίδια μονάδα υψηλής τάσης και παράγουν ένα σήμα εξόδου. Στο Σχήμα 4.5^α φαίνεται τοποθετημένο μέσα στη θωράκιση του ανιχνευτή XtRa το δακτυλιοειδές τμήμα με τους 8 ανιχνευτές NaI και πάνω στην θωράκιση ο επιπλέον ανιχνευτής NaI που αφαιρείται για να τοποθετηθεί το δείγμα ενώ στο Σχήμα 4.5β η διάταξη των δύο ανιχνευτών XtRa-XtCSS με τα ηλεκτρονικά τους.



Σχήμα 4.5α Οι ανιχνευτές NaI που αποτελούν το δευτερεύοντα ανιχνευτή στο σύστημα Compton Suppression του XtRa. Το δακτυλιοειδές μέσα στη θωράκιση και ο αφαιρούμενος ανιχνευτής πάνω στη θωράκιση.



Σχήμα 4.5β Η διάταξη των δύο ανιχνευτών XtRa-XtCSS.

Μετά την εγκατάσταση του συστήματος Compton Suppression χρειάστηκε η εισαγωγή δύο 'εικονικών' ανιχνευτών, του ανιχνευτή η Xtra, που συλλέγει το unsuppress φάσμα και του ανιχνευτή XtCSS που συλλέγει το suppressed φάσμα μετά την αφαίρεση του υποστρώματος που οφείλεται στις σκεδάσεις Compton. Η ανιχνευτική διάταξη XtRa-XtCSS συγκροτείται πλέον από τα ηλεκτρονικά που καταγράφονται στον Πίνακα 4.1, [3].

Πίνακας 4.1 Ηλεκτρονικά της διάταξης XtRa- XtCSS

Τροφοδοτικό υψηλής τάσης XtRa, τύπου 3106D	Συμβατική λειτουργία XtRa (unsuppressed Φάσμα)
Προ-ενισχυτής τύπου 2002CSL	
Ενισχυτής ύψους παλμών, τύπου 2026	
Αναλογοψηφιακός μετατροπέας 8701	
Τροφοδοτικό υψηλής τάσης NaI, τύπου 3002D	Compton Suppression λειτουργία
Προ-ενισχυτής NaI τύπου 2005	
Ενισχυτής ύψους παλμών NaI τύπου 2020	
Ενισχυτής ύψους παλμών XtRa, τύπου 2026	
Coincidence gate 2040	
Multiport II	

4.4 Βαθμονόμηση της τεχνικής NAA στο ΕΠΤ-ΕΜΠ

4.4.1 Πιστοποιημένο υλικό αναφοράς SOIL-7 (ΙΑΕΑ)

Για τη βαθμονόμηση της όλης διαδικασίας που περιλαμβάνει τη νετρονική ενεργοποίηση δειγμάτων όγκου 24ml στην ισοτοπική πηγή του ΕΠΤ-ΕΜΠΤ και στη συνέχεια τη γ-φασματοσκοπική τους ανάλυση στο σύστημα ανιχνευτών XtRa-XtCSS χρησιμοποιήθηκε το πιστοποιημένο υλικό SOIL-7 που διέθεται το ΕΠΤ-ΕΜΠ από τον ΔΟΑΕ (ΙΑΕΑ) και ακολουθήθηκαν τα αντίστοιχα βήματα της παραγράφου 3.5.1.

Το πιστοποιημένο υλικό αναφοράς SOIL-7 είναι χώμα σε μορφή ομοιογενούς σκόνης μετά από θέρμανση στους 450°C για 24 ώρες και προέρχεται σε υψόμετρο 100m στην περιοχή Ebensee της Άνω Αυστρίας. Σύμφωνα με το Πιστοποιητικό του που βρίσκεται στο Παράρτημα Α, οι συγκεντρώσεις του είναι χαμηλές, στη δεδομένη στιγμή όμως δεν υπήρχε αρκετή ποσότητα από άλλα πιστοποιημένα χώματα στο ΕΠΤ-ΕΜΠ.

Από το υλικό αυτό καθαρή μάζα 12,7454 g συσκευάστηκε στο δοχείο όγκου 24ml για να χρησιμοποιηθεί για τη διαδικασία βαθμονόμησης. Πριν τοποθετηθεί στην πηγή νετρονίων, κρίθηκε σκόπιμο να προηγηθεί γ-φασματοσκοπική ανάλυση για να καταγραφούν τα ραδιενεργά ισότοπα που οφείλονται σε φυσική ραδιενέργεια ώστε να μην αποδοθούν οι αντίστοιχες ενέργειες σε παρόμοιας ενέργειας ισότοπα που προέκυψαν μετά την ενεργοποίηση.

Πράγματι η ανάλυση αυτή έδειξε πλήθος ισωτόπων φυσικής ραδιενέργειας στο υλικό αναφοράς SOIL-7, τα περισσότερα από τα οποία θα εντοπιστούν σε ανάλογες αναλύσεις σε οποιαδήποτε περιβαλλοντικά δείγματα. Ο πλανήτης μας όπως και άλλοι πλανήτες σχηματίστηκαν από αρχικά υλικά πλούσια σε σίδηρο, άνθρακα, οξυγόνο, πυρίτιο και άλλα μεγάλου βάρους στοιχεία πριν από $4,5 \times 10^9$ χρόνια. Αυτά τα στοιχεία δημιουργήθηκαν από υδρογόνο και ήλιο που προέκυψαν από την μεγάλη έκρηξη πριν από 15×10^9 χρόνια. Από την μεγάλη έκρηξη μέχρι την δημιουργία του ηλιακού συστήματός μας το ήλιο και το υδρογόνο συντήχθηκαν στους αστρικούς χώρους και δημιούργησαν τα βαρέα στοιχεία που αναφέραμε πριν και από τα οποία αποτελούμαστε και εμείς. Τα περισσότερα ήταν ραδιενεργά, αλλά έκτοτε έχουν διασπαστεί σε σταθερούς πυρήνες. Ωστόσο, μερικά από αυτά τα στοιχεία, έχουν χρόνο ημιζωής μεγαλύτερο από την ηλικία της Γης, και έτσι παρατηρούμε ακόμα την ραδιενέργειά τους, η οποία αποτελεί την φυσική ραδιενέργεια. Αυτή η ραδιενέργεια είναι σε κάποιο βαθμό υπεύθυνη και για την εσωτερική θερμοκρασία της Γης. Κάποιες χαρακτηριστικές σειρές φυσικών ραδιενεργών είναι η σειρά Θωρίου, Ουρανίου, το φυσικό ^{40}K κα. [22]. Στον Πίνακα 4.2 καταγράφονται ισότοπα που αποδίδονται στη φυσική ραδιενέργεια.

Πίνακας 4.2 Κυριότερα Ισότοπα φυσικής Ραδιενέργειας

Ενέργεια (keV)	Ραδιοϊσότοπο	Προέλευση ραδιοϊσοτόπου
25.61	U-237 U231	-
63.48	Th-234	U-238
74.97	Bi-207	-
92.8	Th-234	U-238
185.7-186.2	Ra-226 P-234 U-235	U-238 U-238 -
238.63	Pb-212	Th-232
295.22	Pb-214	U-238
351.99	Pb-214	U-238
510.72	Tl-208	Th-232
583.14	Tl-208	Th-232
609.32	Bi-214	U-238
727.17	Bi-214	U-238
766.6	Pa-234m	U-238
860.47	Tl-208	Th-232
911.07	Ac-228	Th-232
968.9	Ac-228	Th-232
1001.03	Pa-234m	U-238
1120.28	Bi-214	U-238
1238.11	Bi-214	U-238
1460.75	K-40	-
1729.6	Bi-214	U-238
1764.51	Bi-214	U-238
2204.12	Bi-214	U-238
2614.47	Tl-208	Th-232

4.4.2 Βαθμονόμηση NAA με το SOIL-7 για βραχύβια ισότοπα

Για τη βαθμονόμηση της τεχνικής NAA όπως υλοποιείται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ για βραχύβια ισότοπα ακολουθήθηκε ο συνδυασμός/σενάριο σύντομης ακτινοβόλησης 1h. Έτσι το δείγμα όγκου 24ml τοποθετήθηκε με τον δειγματοφορέα στη δεξαμενή στην δεξαμενή νερού που βρίσκεται η πηγή νετρονίων Am-Be. Μόλις παρήλθε διάστημα 1h, ο δειγματοφορέας απομακρύνθηκε από τη δεξαμενή. Ο δειγματοφορέας ανοίχθηκε, το δοχείο με το δείγμα αφαιρέθηκε, τοποθετήθηκε μέσα σε λεπτό πλαστικό σακουλάκι και τοποθετήθηκε στον ανιχνευτή Xtra-XtCSS. Για τη διαδικασία αυτή χρειάστηκαν 70s και μόλις ολοκληρώθηκε ξεκίνησε η λήψη των φασμάτων 'unsuppress' και 'suppress' ταυτόχρονα για 900s (15min). Όταν ολοκληρώθηκε η ακτινοβόληση των 900sec συλλέχθηκαν τα φάσματα 'unsuppress' και 'suppress', και προέκυψαν οι φωτοκορυφές που αποδίδονται σε μη ραδιενεργά στοιχεία των οποίων οι πυρήνες έγιναν ραδιενεργοί με πρόσληψη νετρονίου προερχόμενου από την πηγή Am-Be. Συγκεκριμένα καταγράφηκαν οι φωτοκορυφές που φαίνονται στους Πίνακα 4.3α και 4.3β.

Το σύντομο αυτό σενάριο όπως αναμενόταν οδήγησε την ενεργοποίηση μόνο των πολύ βραχύβιων ισωτόπων. Τα ισότοπα αυτά σύμφωνα με την βιβλιογραφία [14] προσλαμβάνουν θερμικά νετρόνια, όπως αυτά που φτάνουν στο δείγμα καθώς τοποθετείται σε απόσταση 45mm από την πηγή νετρονίων. Φυσικά φωτοκορυφές που αποδίδονται στη φυσική ραδιενέργεια δεν λαμβάνονται υπόψη. Στους Πίνακες 4.3α και β καταγράφονται επίσης η επιφάνεια (Area) και η αβεβαιότητα (Err%) που δίνει η ανάλυση των δύο τύπων φασμάτων με τον Κώδικα SPUNAL που χρησιμοποιείται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ για την ανάλυση γ-φασματοσκοπίας. Στους ίδιους πίνακες καταγράφονται ακόμα η συγκέντρωση του εκάστοτε στοιχείου, σύμφωνα με το πιστοποιητικό του SOIL-7 και η αντίστοιχη μάζα του στοιχείου αυτού στο δείγμα των 24ml που ενεργοποιήθηκε.

Στην προτελευταία στήλη των Πινάκων 4.3α και β βρίσκεται ο συντελεστής βαθμονόμησης που υπολογίζεται για τη συγκεκριμένη φωτοκορυφή του εκάστοτε στοιχείου σύμφωνα με τη σχέση 3.16 της παραγράφου 3.5.1.

Στην τελευταία στήλη των Πινάκων 4.3α και β έχει υπολογιστεί η αβεβαιότητα (%) που συνοδεύει τον εκάστοτε συντελεστή, λ, (σε επίπεδο εμπιστοσύνης 68%), σύμφωνα με τη σχέση 4.1:

$$\varepsilon_{\text{soil7}}^2 = \varepsilon_{\text{ref}}^2 + \varepsilon_{\text{area,soil7}}^2 + \varepsilon_{\text{M,soil7}}^2 \quad (4.1)$$

όπου :

ε_{ref} : η αβεβαιότητα (%) της συγκέντρωσης του συγκεκριμένου στοιχείου σύμφωνα με το Πιστοποιητικό του SOIL-7.

$\varepsilon_{\text{area,soil7}}$: η αβεβαιότητα (%) που δίνεται για την εκάστοτε επιφάνεια φωτοκορυφής από το SPUNAL (δίνεται σε 1,65σ οπότε μετατρέπεται σε 1σ)

$\varepsilon_{\text{M,soil7}}$: η αβεβαιότητα (%) ζύγισης με ηλεκτρονικό ζυγό (ακρίβειας 0.0001g)

Η αβεβαιότητα του συντελεστή, λ, θα χρησιμοποιηθεί για την εκτίμηση της αβεβαιότητας κατά τον υπολογισμό της συγκέντρωσης ισοτόπων σε άγνωστα δείγματα.

Πίνακας 4.3 Συντελεστές Βαθμονόμησης για βραχύβια Ισότοπα

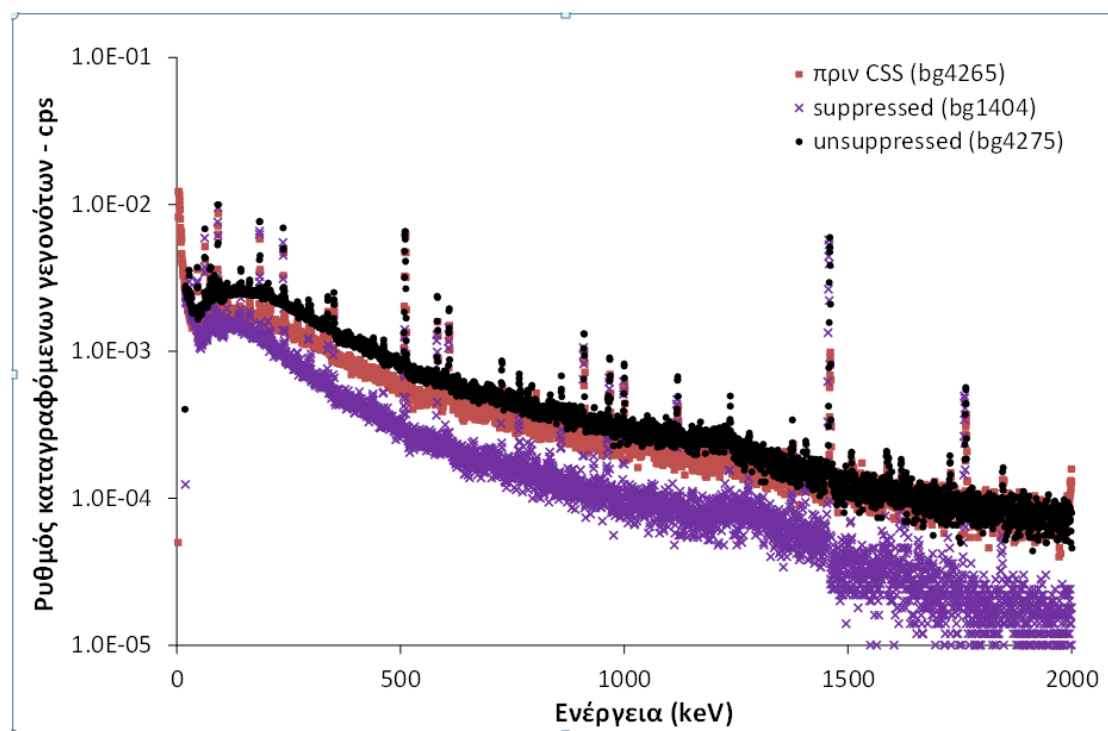
α) XtRa (unsuppress)			Ενεργοποίηση 1h/ γ-spectrum 15min					
Ισότοπο	T _{1/2}	keV	Area	Err%	C(mg/kg)	m(mg)	λ	error%
Al-27	2.24 min	1778.9	655	6.8	47000	559.034	0.92	5.89
Mg-26	9.45min	843.8	-	-	11300	144.023	-	-
		1014.4	44	42.6			3.27	25.9
Mn-55	2.58h	846.7	539	11.6	631	8.042	0.015	7.2
		1810.7	67	27.9	631	8.042	0.12	17
β) XtCSS (suppress)			Ενεργοποίηση 1h/ γ-spectrum 15min					
Ισότοπο	T _{1/2}	keV	Area	Err%	C(mg/kg)	m(mg)	λ	error%
Al-27	2.24 min	1778.9	620	6.7	47000	559.034	0.97	5.84
Mg-26	9.45 min	843.8	307	23.4	11300	144.023	0.47	14.35
		1014.4	37	39.8			3.89	24.22
Mn-55	2.58h	846.7	440	12.6	631	8.042	0.018	7.8

Ενδιαφέρον για τα βραχύβια ισότοπα παρουσιάζει η περίπτωση των φωτοκορυφών Mg-843.8keV και Mn-846.7keV οι οποίες αλληλοεπικαλύπτονται παρόλο που πρόκειται για ανιχνευτή πολύ καλής διακριτικής ικανότητας. Έτσι η κορυφή του Mg που είναι εξαιρετικά βραχύβιο κινδυνεύει, αν πρόκειται και για χαμηλή συγκέντρωση, να μην αποδοθεί σωστά. Για αυτό για τον προσδιορισμό του χρησιμοποιείται η δεύτερη φωτοκορυφή (1014.4keV), η επιφάνεια της οποίας εκτιμάται από τον XtRa με χαμηλότερη αβεβαιότητα σε σχέση με τον XtCSS και για αυτό και θα επιλεγεί ο συντελεστής βαθμονόμησης που προέρχεται από αυτή. Για περιπτώσεις όπως του Al όπου και οι δύο ανιχνευτές παρουσιάζουν σύμπτωση τιμών και παρόμοια αβεβαιότητα είναι καθαρά θέμα επιλογής ποιό λ θα χρησιμοποιηθεί πάντα βέβαια με ανάλυση στον αντίστοιχο ανιχνευτή. Στην παρούσα ΔΕ σε αυτές τις περιπτώσεις ακολουθήθηκε ο συντελεστής με βάση το unsuppress φάσμα μιας και αυτός μπορεί να χρησιμοποιηθεί και στην περίπτωση που το suppress σύστημα τεθεί εκτός λειτουργίας. Όσον αφορά στο Mn, ο χρόνος ημισείας ζωής του υπερβαίνει το χρόνο της σύντομης ενεργοποίησης, οπότε καλό είναι ο συντελεστής βαθμονόμησης να προκύψει από ενεργοποίηση μεγαλύτερης διάρκειας.

4.4.3 Βαθμονόμηση NAA με το SOIL-7 για ισότοπα μεσαίας ημιζωής

Για τη βαθμονόμηση της τεχνικής NAA όπως υλοποιείται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ για μεσαίου χρόνου ημιζωής ισότοπα πραγματοποιήθηκε νετρονική ενεργοποίηση 111h, δεδομένου ότι η ροή των νετρονίων της ισοτοπικής πηγής που χρησιμοποιείται είναι μικρός σε σύγκριση με ροές νετρονίων σε πυρηνικούς αντιδραστήρες. Για το σκοπό αυτό το δοχείο του δείγματος τοποθετήθηκε μέσα στον δειγματοφορέα και στη συνέχεια μέσα στη δεξαμενή της ισοτοπικής πηγής νετρονίων. Επειδή αυτή τη φορά ο χρόνος ενεργοποίησης είναι περίπου 4 ημέρες, για να μην εισχωρήσει νερό μέσα στο δοχείο του δείγματος αυτό σφραγίστηκε μέσα σε νάιλον σακουλάκι και έτσι τοποθετήθηκε στον δειγματοφορέα. Μετά το πέρας του χρόνου ενεργοποίησης ο δειγματοφορέας απομακρύνεται από την δεξαμενή της ισοτοπικής πηγής και αφαιρείται το δοχείο του δείγματος για να αναλυθεί στο σύστημα ανιχνευτών Xtra-XtCSS. Σε αυτή την περίπτωση, το ενεργοποιημένο δείγμα μεταγγίζεται από το δοχείο των 24ml, διαμέτρου 40mm, σε δοχείο διαμέτρου 72mm, που

εκμεταλλεύεται καλύτερα την επιφάνεια του ανιχνευτή (διαμέτρου 80mm) και επιπλέον μειώνονται τυχόν φαινόμενα αυτοαπορρόφησης. Στο Σχήμα 4.6 παρουσιάζεται συγκριτικά το υπόστρωμα του ανιχνευτή πριν και μετά την εγκατάσταση του συστήματος Compton Suppression [3].



Σχήμα 4.6 Υπόστρώματα πριν και μετά την εγκατάσταση του συστήματος Compton Suppression [3]

Η διαδικασία της μετάγγισης αυξάνει το χρόνο που μεσολαβεί μεταξύ της απομάκρυνσης του δείγματος από την ισοτοπική πηγή έως να τοποθετηθεί στο σύστημα των ανιχνευτών XtRa-XtCSS και να ξεκινήσει η γ -φασματοσκοπία, που για αυτά τα πειράματα ήταν 2min. Φυσικά αυτό έχει ως αποτέλεσμα τα βραχύβια ισότοπα να εμφανίζουν μικρότερες φωτοκορυφές, όμως αυτά υπολογίζονται από το σενάριο σύντομης ακτινοβόλησης που για ακριβώς αυτό το λόγο δεν περιλαμβάνει μετάγγιση του ενεργοποιημένου δείγματος.

Για την πλήρη διερεύνηση της 'συμπεριφοράς' των ισοτόπων ανάλογα με το χρόνο ημιζωής τους και για να είναι δυνατή η σύγκριση της αβεβαιότητας της εκάστοτε φωτοκορυφής ανάλογα με το χρόνο που συλλέχθηκε, η γ-φασματοσκοπική ανάλυση του ενεργοποιημένου για 111h δείγματος SOIL-7 ακολούθησε τα παρακάτω σενάρια:

- Φάσμα 15min,

Διαγραφή, παρεμβολή 15min και στη συνέχεια συνεχόμενα (χωρίς διαγραφή)

- Φάσμα 1h
- Φάσμα 5h,
- Φάσμα 24h,
- Φάσμα 72h και
- Φάσμα 144h.

Στους Πίνακες 4.4 (α ως στ) και 4.5 (α ως στ) καταγράφονται, (κατ'αναλογία με τον Πίνακα 4.3) η επιφάνεια (Area) και η αβεβαιότητα (Err%) που δίνει η ανάλυση των φασμάτων suppress (XtRa) και unsuppress (XtCSS) , με τον Κώδικα SPUNAL. Στους ίδιους πίνακες καταγράφονται ακόμα η συγκέντρωση του εκάστοτε στοιχείου, σύμφωνα με το πιστοποιητικό του SOIL-7 και η αντίστοιχη μάζα του στοιχείου αυτού στο δείγμα των 24ml που ενεργοποιήθηκε. Στην προτελευταία τελευταία στήλη των Πινάκων 4.4 και 4.5 βρίσκεται ο συντελεστής βαθμονόμησης που υπολογίζεται για τη συγκεκριμένη φωτοκορυφή του εκάστοτε στοιχείου σύμφωνα με τη σχέση 3.16 της παραγράφου 3.5.1. Στην τελευταία στήλη των Πινάκων 4.4 και 4.5 έχει υπολογιστεί η αβεβαιότητα (%) που συνοδεύει τον εκάστοτε συντελεστή, λ, ακολουθώντας τη σχέση 4.1 της παραγράφου 4.4.2.

Πίνακας 4.4 Συντελεστές Βαθμονόμησης για NA= 111h και unsuppress Φάσματα

α) XtRa (unsuppress)			Ενεργοποίηση 111h / γ-spectrum 15 min					
Ισότοπο	T _{1/2}	KeV	Area	Err%	C(mg/kg)	m(mg)	λ	error%
Al-27	2.24min	1778.9	519	9	47000	599.034	1.15	6.89
Mg-26	9.45min	843.8	153	20.3	11300	144.023	0.94	12.5
		1014.4	41	80.1	11300	144.023	3.51	48.6
Mn-55	2.58h	846.7	2400	4	631	8.042	0.0034	2.85
		1810.7	322	13.2			0.025	8.14
K-39	12.36h	1524.7	52	83.6	12100	154.219	2.97	50.7
Na-23	15.0h	1368.6	669	7.8	2400	30.589	0.046	5.17
β) XtRa (unsuppress)			Ενεργοποίηση 111h / γ-spectrum 1h					
Ισότοπο	T _{1/2}	KeV	Area	Err%	C(mg/kg)	m(mg)	λ	error%
Mn-55	2.58h	846.7	7562	2.1	631	8.042	0.0011	1.97
		1810.7	1161	6.4			0.0069	4.16
K-39	12.36h	1524.7	247	24.5	12100	154.219	0.62	15.1
Na-23	15.0h	1368.6	2356	4.1	2400	30.589	0.013	3.25
γ) XtRa (unsuppress)			Ενεργοποίηση 111h / γ-spectrum 5h					
Ισότοπο	T _{1/2}	KeV	Area	Err%	C(mg/kg)	m(mg)	λ	error%
Mn-55	2.58h	846.7	23524	1.5	631	8.042	0.00034	1.75
		1810.7	3414	4			0.0024	2.85
K-39	12.36h	1524.7	1078	11.1	12100	154.219	0.14	7.18
Na-23	15.0h	1368.6	10729	1.8	2400	30.589	0.0029	2.37
δ) XtRa (unsuppress)			Ενεργοποίηση 111h / γ-spectrum 24h					
Ισότοπο	T _{1/2}	KeV	Area	Err%	C(mg/kg)	m(mg)	λ	error%
Mn-55	2.58h	846.7	31617	1.5	631	8.042	0.00025	1.75
		1810.7	4556	4.2			0.0018	2.95
K-39	12.36h	1524.7	3205	5.7	12100	154.219	0.048	4.26
As-75	26.3h	559.1	312	78.1	13.4	0.171	0.00055	47.4
Na-23	15.0h	1368.6	34517	1.4	2400	30.589	0.00089	2.27
ε) XtRa (unsuppress)			Ενεργοποίηση 111h / γ-spectrum 72h					
Ισότοπο	T _{1/2}	KeV	Area	Err%	C(mg/kg)	m(mg)	λ	error%
Mn-55	2.58h	846.7	31531	1.8	631	8.042	0.00026	1.85
		1810.7	4515	5.2			0.0018	3.49
K-39	12.36h	1524.7	4203	5.5	12100	154.219	0.037	4.17
As-75	26.3h	559.1	434	76	13.4	0.171	0.00039	46.2
Na-23	15.0h	1368.6	48908	1.3	2400	30.589	0.00063	2.25
στ) XtRa (unsuppress)			Ενεργοποίηση 111h / γ-spectrum 144h					
Ισότοπο	T _{1/2}	KeV	Area	Err%	C(mg/kg)	m(mg)	λ	error%
Mn-55	2.58h	846.7	31468	3	631	8.042	0.00026	2.36
		1810.7	4508	5.9			0.0018	3.88
K-39	12.36h	1524.7	4151	14.3	12100	154.219	0.037	9
As-75	26.3h	559.1	416	98.4	13.4	0.171	0.00041	59.7
Na-23	15.0h	1368.6	50294	1.4	2400	30.589	0.00061	2.26

Πίνακας 4.5 Συντελεστές Βαθμονόμησης για NA= 111h και suppress Φάσματα

α) XtCSS (suppress)			Ενεργοποίηση 111h / γ-spectrum 15 min					
Ισότοπο	T _{1/2}	KeV	Area	Err%	C(mg/kg)	m(mg)	λ	error%
Al-27	2.24min	1778.9	482	8.7	47000	599.034	1.16	6.75
Mg-26	9.45min	843.8	132	23	11300	144.023	1.09	14.1
		1014.4	40	48.3			3.6	29.35
Mn-55	2.58h	846.7	1829	4.3	631	8.042	0.0044	3
		1810.7	101	24.4			0.08	14.86
K-39	12.36h	1524.7	46	50.4	12100	154.219	3.35	30.65
Na-23	15.0h	1368.6	325	10.1	2400	30.589	0.094	6.5
β) XtCSS (suppress)			Ενεργοποίηση 111h / γ-spectrum 1h					
Ισότοπο	T _{1/2}	KeV	Area	Err%	C(mg/kg)	m(mg)	λ	error%
Mn-55	2.58h	846.7	5836	2.3	631	8.042	0.0014	2.05
		1810.7	402	9.7			0.02	6.07
K-39	12.36h	1524.7	241	12.7	12100	154.219	0.64	8.1
Na-23	15.0h	1368.6	1160	5.3	2400	30.589	0.026	3.84
γ) XtCSS (suppress)			Ενεργοποίηση 111h / γ-spectrum 5h					
Ισότοπο	T _{1/2}	KeV	Area	Err%	C(mg/kg)	m(mg)	λ	error%
Mn-55	2.58h	846.7	18031	1.4	631	8.042	0.00045	1.75
		1810.7	1154	6.2			0.007	4.05
K-39	12.36h	1524.7	1025	7	12100	154.219	0.15	4.92
As-75	26.3h	559.1	131	56.8	13.4	0.171	0.0013	34.6
Na-23	15.0h	1368.6	5269	2.5	2400	30.589	0.0058	2.6
δ) XtCSS (suppress)			Ενεργοποίηση 111h / γ-spectrum 24h					
Ισότοπο	T _{1/2}	KeV	Area	Err%	C(mg/kg)	m(mg)	λ	error%
Mn-55	2.58h	846.7	24183	1.4	631	8.042	0.00033	1.7
		1810.7	1549	6.1			0.0052	3.99
K-39	12.36h	1524.7	3059	3.9	12100	154.219	0.05	3.44
As-75	26.3h	559.1	365	35.4	13.4	0.171	0.00047	21.7
Na-23	15.0h	1368.6	17053	1.7	2400	30.589	0.0018	2.34
ε) XtCSS (suppress)			Ενεργοποίηση 111h / γ-spectrum 72h					
Ισότοπο	T _{1/2}	KeV	Area	Err%	C(mg/kg)	m(mg)	λ	error%
Mn-55	2.58h	846.7	24122	1.6	631	8.042	0.00033	1.79
		1810.7	1536	7.2			0.0052	4.61
K-39	12.36h	1524.7	3986	3.6	12100	154.219	0.039	3.32
As-75	26.3h	559.1	637	28.6	13.4	0.171	0.00027	17.6
Na-23	15.0h	1368.6	24199	1.5	2400	30.589	0.0013	2.29
στ) XtCSS (suppress)			Ενεργοποίηση 111h / γ-spectrum 144h					
Ισότοπο	T _{1/2}	KeV	Area	Err%	C(mg/kg)	m(mg)	λ	error%
Mn-55	2.58h	846.7	24093	1.8	631	8.042	0.00033	1.85
		1810.7	1535	8.1			0.0052	5.13
K-39	12.36h	1524.7	4044	7.8	12100	154.219	0.038	5.35
As-75	26.3h	559.1	1027	27.1	13.4	0.171	0.00017	16.7
Na-23	15.0h	1368.6	24850	1.7	2400	30.589	0.0012	2.34

Από τους Πίνακες 4.4 και 4.5 που συγκεντρώνουν τα αποτελέσματα των φασμάτων που λήφθηκαν και από τους δύο ανιχνευτές XtRa (unsuppress) και XtCSS (suppress), με αυξανόμενη διάρκεια είναι φανερό ότι η ανίχνευση ενός ισότοπου εξαρτάται από το χρόνο ημίσειας ζωής του σε σχέση όχι μόνο με τη διάρκεια ενεργοποίησης αλλά και σε σχέση με τη διάρκεια συλλογής του φάσματος. Επίσης καθοριστικός παράγοντας είναι η συγκέντρωση του πατρικού στοιχείου στο δείγμα καθώς φαίνεται ότι στοιχεία με αυξημένη συγκέντρωση όπως K, Na και Mn μπορούν να προσδιορισθούν με ικανοποιητική ακρίβεια από τα πρώτα γ-φάσματα, παρόλο που έχουν πολύ διαφορετικούς χρόνους ημιζωής. Αντίθετα στοιχεία χαμηλής συγκέντρωσης στο SOIL-7, όπως το As, σχηματίζουν φωτοκορυφές με μεγάλη αβεβαιότητα που οφείλεται στη χαμηλή στατιστική (λίγα γεγονότα) σε σχέση και με το υπόστρωμα στη συγκεκριμένη περιοχή του φάσματος. Έτσι για την περίπτωση του As (χαρακτηριστικό παράδειγμα μεσαίου χρόνου ημιζωής) και που συνήθως στα εδάφη υπάρχει ως ιχνοστοιχείο, προκρίνεται η εκτίμηση του συντελεστή βαθμονόμησης από τα suppress φάσματα μέτριας διάρκειας για να μην αυξάνεται το υπόστρωμα. Βέβαια η βελτίωση της στατιστικής που επιτυγχάνεται με την ανάλυση των 6 ημερών σαφώς προσφέρει μεγαλύτερη ασφάλεια.

4.5 Συμπεράσματα

Στο κεφάλαιο αυτό έγινε μια ευρεία διερεύνηση των δυνατοτήτων της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης του συστήματος των ανιχνευτών XtRa-XtCSS (unsuppress και suppress) σε ενεργοποιημένα δείγματα χώματος για σύντομη ενεργοποίηση 1h καθώς και για περίπου 4 ημέρες.

Τα ισότοπα που ανιχνεύονται, πέραν της φυσικής ραδιενέργειας, είναι περιορισμένα λόγω της χαμηλής ροής νετρονίων της διαθέσιμης ισοτοπικής πηγής Am-Be και των χαμηλών συγκεντρώσεων του SOIL-7. Από την άλλη όμως η συγκεκριμένη μέθοδος προσδιορίζει στοιχεία όπως Al, Na και Mg, που η τεχνική ανάλυση με XRF του ΕΠΤ-ΕΜΠ δεν μπορεί να ανιχνεύσει. Επίσης στην περίπτωση του As, πρόκειται για τοξικό στοιχείο, που στην ανάλυση με XRF υπάρχει δυσκολία στο ποσοτικό προσδιορισμό του όταν συνυπάρχει με Pb, όπως συμβαίνει συνήθως.

Στον Πίνακα 4.6 συνοψίζονται, σύμφωνα και με τα προηγούμενα σχόλια και συμπεράσματα, τα προτεινόμενα σενάρια (Διάρκεια ενεργοποίησης - διάρκεια και Ανιχνευτής γ-φασματοσκοπίας) για τον προσδιορισμό Al, Mg, Mn, K, Na, As με τον αντίστοιχο Συντελεστή βαθμονόμησης. Ακολουθώντας τα σενάρια αυτά και χρησιμοποιώντας τους συντελεστές βαθμονόμησης που προτείνονται, μπορούν να προσδιοριστούν οι συγκεντρώσεις των συγκεκριμένων στοιχείων σε άγνωστης σύστασης δείγματα εφόσον διατηρούνται όλες οι συνθήκες ίδιες πχ. γεωμετρία δείγματος –πηγής και υλικό δείγματος πχ. χώμα.

Πίνακας 4.6 Προτεινόμενα σενάρια ανάλυσης με Νετρονική ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία στο ΕΠΤ και οι αντίστοιχοι Συντελεστές Βαθμονόμησης

Στοιχείο	Διάρκεια Νετρονικής Ενεργοποίησης	Ισότοπο	T _{1/2}	keV	Ανιχνευτής	Διάρκεια γ-Φάσματος	λ
Al	1h	Al-27	2.24 min	1778,9	XtRa (unsuppress)	15min	0.92
Mg	1h	Mg-26	9.45min	1014.4	XtCSS (suppress)	15min	3.89
Mn	111h	Mn-55	2.58h	846.7	XtRa (unsuppress)	5h	0.00034
K	111h	K-39	12.36h	1524.7	XtCSS (suppress)	24h	0.05
Na	111h	Na-23	15.0h	1368.6	XtCSS (suppress)	5h	0.0058
As	111h	As-75	26.3h	559.1	XtCSS (suppress)	144h	0.00017

Κεφάλαιο 5^ο

Ανάλυση με Νετρονική ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία αγνώστων στερεών περιβαλλοντικών δειγμάτων στο ΕΠΤ

Το 4^ο κεφάλαιο κατέληξε στην επιλογή συγκεκριμένων συνδυασμών νετρονικής ενεργοποίησης /γ-φασματοσκοπίας και στον υπολογισμό του συνολικού συντελεστή βαθμονόμησης, λ , της τεχνικής νετρονικής ενεργοποίησης και γ-φασματοσκοπικής, για κάθε ένα από τα έξι στοιχεία (Al, Mg, Mn, K, Na, As) που ανιχνεύθηκαν στο δείγμα από το πιστοποιημένο χώμα SOIL-7 (IAEA). Χρησιμοποιώντας τον αντίστοιχο συντελεστή, λ , είναι δυνατόν να προσδιοριστεί η συγκέντρωση του εκάστοτε στοιχείου σε άγνωστα δείγματα, εφόσον τηρηθούν επακριβώς το επιλεγμένο σενάριο ενεργοποίησης/ γ-φασματοσκοπίας και η γεωμετρία πηγής-δείγματος και δείγματος-ανιχνευτή. Στο τρέχον κεφάλαιο, οι συντελεστές, λ , θα χρησιμοποιηθούν για τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης των έξι αυτών στοιχείων, Al, Mg, Mn, K, Na, As, σε άγνωστα στερεά δείγματα.. Συγκεκριμένα, πρόκειται για ένα δείγμα χώματος (Silicious Clay) και ένα δείγμα φυτικής κυτταρίνης (Plant Cellulose) που έφθασαν στο ΕΠΤ-ΕΜΠ στο πλαίσιο Άσκησης Διαβαθμονόμησης του ΔΟΑΕ (IAEA), καθώς και ένα δείγμα ιζήματος από την περιοχή του Λαυρίου Αττικής που συλλέχθηκε από προσωπικό του ΕΠΤ. Αξίζει να σημειωθεί ότι πριν την ολοκλήρωση της ΔΕ κυκλοφόρησε η αναφορά της Άσκησης Διαβαθμονόμησης και έτσι έγινε δυνατόν να γίνει έλεγχος των αποτελεσμάτων που έδωσε η τεχνική αυτή, για τα δύο δείγματα και να προκύψουν σημαντικά συμπεράσματα.

5.1 Ανάλυση με Νετρονική ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία δειγμάτων Άσκησης Διαβαθμονόμησης της ΙΑΕΑ (PTNATIAEA19)

5.1.1 Ανάλυση με Νετρονική ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία δείγματος χώματος (Clay) της ΙΑΕΑ

Το υλικό Silicious Clay έφτασε στο ΕΠΤ-ΕΜΠ στο πλαίσιο συμμετοχής του ΕΠΤ-ΕΜΠ στην Άσκηση Διαβαθμονόμησης PTNATIAEA19 που διοργάνωσε η ΙΑΕΑ το διάστημα 2021-22. Η ποσότητα του υλικού Clay ήταν περιορισμένη και έτσι χρησιμοποιήθηκε όλη για να γεμίσει το δοχείο όγκου 24ml που χρησιμοποιείται για τη Νετρονική Ενεργοποίηση, συγκεκριμένα η καθαρή μάζα του δείγματος Clay ήταν 16.4432g. Το δείγμα αυτό ακολούθησε τη διαδικασία των 2 σεναρίων νετρονικής ενεργοποίησης και των αντίστοιχων συνδυασμών γ-φασματοσκοπίας που περιγράφηκαν και βαθμονομήθηκαν στο Κεφ. 4. Από τα φάσματα που συλλέχθηκαν, επιλέχθηκαν τα αντίστοιχα με αυτά που είχαν προκριθεί και βαθμονομηθεί στην παράγραφο 4.5 και συγκεκριμένα στο Πίνακα 4.6 και με βάση τα δεδομένα αυτά υπολογίστηκε, αρχικά η μάζα των στοιχείων Al, Mg, Mn, K, Na, As στο δείγμα Clay, σύμφωνα με τη σχέση 3.16, και στη συνέχεια η συγκέντρωσή τους C, (σε % ή σε ppm ανάλογα με το τι ζητούσε η φόρμα αποτελεσμάτων PTNATIAEA19).

Όσον αφορά στην εκτίμηση της αβεβαιότητας ακολουθήθηκε η σχέση:

$$\epsilon_{\text{sample}}^2 = \epsilon_{\lambda}^2 + \epsilon_{\text{area, sample}}^2 + \epsilon_{M, \text{sample}}^2 \quad (5.1)$$

όπου ο δείκτης sample αναφέρεται στο εκάστοτε άγνωστο δείγμα και

ϵ_{λ}^2 : το σφάλμα του συντελεστή βαθμονόμησης, λ, όπως υπολογίστηκε με τη σχέση 4.1 για τα αντίστοιχα σενάρια στους πίνακες του κεφαλαίου 4.

$\epsilon_{\text{area, sample}}^2$: το σφάλμα της area του εκάστοτε δείγματος για κάθε στοιχείο

$\epsilon_{M, \text{sample}}^2$: το σφάλμα της ζύγισης για κάθε δείγμα

Τα επιμέρους σφάλματα ανά στοιχείο και οι υπολογισμοί για τα επιλεγμένα σενάρια βρίσκονται στο Παράρτημα Β. Τα αποτελέσματα για το δείγμα Clay παρουσιάζονται στον Πίνακα 5.1

Πίνακας 5.1 Ανάλυση δείγματος Clay PTNATIAEA19

Ανιχνευτής XtCSS (suppress)				Ενεργοποίηση 1h + 15min ανίχνευση						
Στοιχείο	Ισότοπο	T1/2	keV	Area	Err _{Area} (%)	λ	m (mg)	C (ppm)	C _{error} (ppm)	C _{error} (%)
Mg	Mg-26	9.45 min	1014.4	58	25.2	3.89	225.766	14000	4000	29%

Ανιχνευτής XtRa (unsuppress)				Ενεργοποίηση 1h + 15min ανίχνευση						
Στοιχείο	Ισότοπο	T1/2	keV	Area	Err _{Area} (%)	λ	m (mg)	C (ppm)	C _{error} (ppm)	C _{error} (%)
Al	Al-27	2.24 min	1778.9	979	5.7	0.92	895.35	55000	4000	7

Ανιχνευτής XtRa (unsuppress)				Ενεργοποίηση 11h + 5h ανίχνευση						
Στοιχείο	Ισότοπο	T1/2	keV	Area	Err _{Area} (%)	λ	m (mg)	C (ppm)	C _{error} (ppm)	C _{error} (%)
Mn	Mn-55	2.58h	846.7	15008	2.2	0.00034	5.131	312	7	2

Ανιχνευτής XtCSS (suppress)				Ενεργοποίηση 111 h + 24h ανίχνευση						
Στοιχείο	Ισότοπο	T1/2	keV	Area	Err _{Area} (%)	λ	m (mg)	C (ppm)	C _{error} (ppm)	C _{error} (%)
K	K-39	12.36h	1524.7	7156	2.3	0.05	360.769	21900	800	4

Ανιχνευτής XtCSS (suppress)				Ενεργοποίηση 111 h + 5h ανίχνευση						
Στοιχείο	Ισότοπο	T1/2	keV	Area	Err _{Area} (%)	λ	m (mg)	C (ppm)	C _{error} (ppm)	C _{error} (%)
Na	Na-23	15.0h	1368.6	7861	2.0	0.0058	45.637	2780	80	3

Ανιχνευτής XtCSS (suppress)				Ενεργοποίηση 111 h + 144h ανίχνευση						
Στοιχείο	Ισότοπο	T1/2	keV	Area	Err _{Area} (%)	λ	m (mg)	C (ppm)	C _{error} (ppm)	C _{error} (%)
As	As-75	26.3h	559.1	1547	15.7	0.00017	0.258	16	3	19

5.1.2 Ανάλυση με Νετρονική ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία δείγματος κυτταρίνης (Plant) της ΙΑΕΑ

Το υλικό Cellulose Plant έφτασε στο ΕΠΤ-ΕΜΠ στο πλαίσιο συμμετοχής του ΕΠΤ-ΕΜΠ στην Άσκηση Διαβαθμονόμησης PTNATIAEA19 που διοργάνωσε η ΙΑΕΑ το διάστημα 2021-22. Η ποσότητα του υλικού Plant ήταν και έτσι παρασκευάστηκαν δύο δείγματα. Το πρώτο δείγμα, μάζας 9.8599g, από το υλικό Plant, που τοποθετήθηκε στο δοχείο όγκου 24ml, χρησιμοποιήθηκε για το σενάριο Νετρονικής Ενεργοποίηση των 111h, στο οποίο όπως έχει φανεί υπάρχει η δυνατότητα ανίχνευσης περισσότερων στοιχείων. Οπότε ακολούθησαν οι γ-φασματοσκοπικές αναλύσεις αυτού του σεναρίου όπως έχουν περιγραφεί στο κεφάλαιο 4. Από τα φάσματα που συλλέχθηκαν, επιλέχθηκαν τα αντίστοιχα με αυτά που είχαν προκριθεί και βαθμονομηθεί στην παράγραφο 4.5 και συγκεκριμένα στο Πίνακα 4.6 και με βάση τα δεδομένα αυτά υπολογίστηκε, αρχικά η μάζα των στοιχείων Mn, K, Na, As στο δείγμα Plant, σύμφωνα με τη σχέση 3.16, και στη συνέχεια η συγκέντρωσή τους C, (σε % ή σε ppm ανάλογα με το τι ζητούσε η φόρμα αποτελεσμάτων PTNATIAEA19).

Όσον αφορά στην εκτίμηση της αβεβαιότητας ακολούθησε η σχέση 5.1.

Σε άλλη χρονική στιγμή της εκπόνησης τη ΔΕ, παρασκευάστηκε δεύτερο δείγμα, μάζας 10.2245g από το υλικό Plant, το οποίο χρησιμοποιήθηκε για το σενάριο σύντομης Νετρονικής Ενεργοποίηση (1h) αλλά η γ-φασματοσκοπική ανάλυση των 15min που ακολούθησε, δεν κατέληξε στην ανίχνευση φωτοκορυφών πέραν της φυσικής ραδιενέργειας.

Τα αποτελέσματα για όσα ισότοπα ανιχνεύθηκαν στις αναλύσεις τους δείγματος Plant παρουσιάζονται στον Πίνακα 5.2.

Πίνακας 5.2 Ανάλυση δείγματος Plant PTNATIAEA19 (μάζας 9.8599g g)

Ανιχνευτής XtRa (unsuppress)				Ενεργοποίηση 111h + 5h ανίχνευση						
Στοιχείο	Ισότοπο	T1/2	keV	Area	Err _{Area} (%)	λ	m (mg)	C (ppm)	C _{error} (ppm)	C _{error} (%)
Mn	Mn-55	2.58h	846.7	2962	3.7	0.00034	1.013	103	3	3

Ανιχνευτής XtCSS (suppress)				Ενεργοποίηση 111 h + 24h ανίχνευση						
Στοιχείο	Ισότοπο	T1/2	keV	Area	Err _{Area} (%)	λ	m (mg)	C (ppm)	C _{error} (ppm)	C _{error} (%)
K	K-39	12.36h	1524.7	2246	4.1	0.05	113.239	11500	500	4

Ανιχνευτής XtCSS (suppress)				Ενεργοποίηση 111 h + 5h ανίχνευση						
Στοιχείο	Ισότοπο	T1/2	keV	Area	Err _{Area} (%)	λ	m (mg)	C (ppm)	C _{error} (ppm)	C _{error} (%)
Na	Na-23	15.0h	1368.6	86	32.6	0.0058	0.5	50	10	20

Στο δείγμα Plant, τα βραχύβια ισότοπα Al-27, Mg-26, δεν ανιχνεύθηκαν ούτε στο σενάριο της σύντομης ενεργοποίησης. Επίσης το ισότοπο As-75 δεν ανιχνεύθηκε ούτε στο σενάριο 111h και γ-φασματοσκοπική ανάλυση 144h (6 ημέρες). Με ικανοποιητική αβεβαιότητα προσδιορίστηκε το Mn και το K. Όσον αφορά στο Na, η αβεβαιότητα στην εκτίμηση της φωτοκορυφής του δείγματος Plant παρουσιάζεται σε όλα τα φάσματα πάνω από 25%, με αποτέλεσμα η συγκέντρωση που υπολογίζεται να έχει αβεβαιότητα 20%. Οι διαφοροποιήσεις αυτές δείχνουν ότι τα επίπεδα των συγκεντρώσεων στα φυτικά δείγματα διαφέρουν σε σχέση με τα δείγματα χώματος.

5.1.3 Αξιολόγηση των αναλύσεων με Νετρονική ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία των δειγμάτων της Άσκησης Διαβαθμονόμησης της ΙΑΕΑ (PTNATIAEA19)

Με βάση τα αποτελέσματα παρουσιάζονται στους Πίνακες 5.1 και 5.2 οι συγκεντρώσεις των στοιχείων που ανιχνεύθηκαν στα δύο είδη δειγμάτων παρουσιάζονται συνοπτικά στους παρακάτω Πίνακες 5.3 και 5.4, σε μονάδες (%) ή ppm ανάλογα με τις αντίστοιχες των πιστοποιημένων συγκεντρώσεων στην αναφορά [23] :

Πίνακας 5.3 Συγκεντρώσεις δείγματος Clay

Στοιχείο	Συγκέντρωση	±	Uncertainty
Mg	1.4%	±	0.4%
Al	5.5%	±	0.4%
Mn	312ppm	±	7ppm
K	2.19%	±	0.08%
Na	0.278%	±	0.008%
As	16ppm	±	3ppm

Πίνακας 5.4 Συγκεντρώσεις δείγματος Plant

Στοιχείο	Συγκέντρωση	±	Uncertainty
Mn	103ppm	±	3ppm
K	1.14%	±	0.05%
Na	50ppm	±	10ppm

Πριν την ολοκλήρωση της ΔΕ, κυκλοφόρησε η αναφορά της Άσκησης Διαβαθμονόμησης ΡΤΝΑΤΙΑΕΑ19 [23] και έτσι έγινε δυνατόν να γίνει αξιολόγηση των αποτελεσμάτων που έδωσε η τεχνική που ακολουθήθηκε στη ΔΕ για τα δύο είδη δειγμάτων σε σύγκριση με τις 'πιστοποιημένες' συγκεντρώσεις.

Έτσι, για κάθε δείγμα υπολογίστηκαν τα παρακάτω μεγέθη/δείκτες σύγκρισης των υπολογιζόμενων συγκεντρώσεων, C, με βάση τις 'πιστοποιημένες' συγκεντρώσεις, X_α (που δίνονται στην αναφορά [18] και για λόγους ευκολίας περιλαμβάνονται στο Παράρτημα Α):

- Diff (%) : η (%) διαφορά της συγκέντρωσης C που υπολογίστηκε στη ΔΕ ως προς τη πιστοποιημένη τιμή X_α της αναφοράς ΡΤΝΑΤΙΑΕΑ19 [23].
- z-Score: υπολογίζεται από την παρακάτω σχέση σύμφωνα με την αναφορά [23]:

$$Z = \frac{x - X_{\alpha}}{\sigma_A} \quad (5.2)$$

όπου,

x : η τιμή της συγκέντρωσης C που υπολογίστηκε στο ΕΠΤ-ΕΜΠ.

X_α : η τιμή της πιστοποιημένης συγκέντρωσης

σ_A : η τυπική απόκλιση που δίνεται από την αναφορά ΡΤΝΑΤΙΑΕΑ19 [23]

Σύμφωνα με την αναφορά [23] για τις τιμές του z-score ισχύει:

- $|z| \leq 2 \rightarrow$ ικανοποιητικό αποτέλεσμα
- $2 < |z| < 3 \rightarrow$ το αποτέλεσμα είναι αμφισβητήσιμο
- $|z| \geq 3 \rightarrow$ μη ικανοποιητικό αποτέλεσμα

- u-Score: υπολογίζεται από την παρακάτω σχέση σύμφωνα με την αναφορά [23]:

$$U = \frac{|x - X_a|}{\sqrt{(\sigma_A^2 + U_{exp}^2)}} \quad (5.3)$$

όπου,

x : η τιμή της συγκέντρωσης C που υπολογίστηκε στο ΕΠΤ

X_a: η πιστοποιημένη τιμή της συγκέντρωσης στην αναφορά PTNATIAEA19 [23]

σ_A: η τυπική απόκλιση που δίνεται στην αναφορά PTNATIAEA19 [23]

U_{exp} : η συνολική % αβεβαιότητα των υπολογιζόμενων τιμών στο ΕΠΤ.

Σύμφωνα με την αναφορά [23] για τις τιμές του u-score ισχύει:

- $u \leq 1.64 \rightarrow$ το αποτέλεσμα δεν διαφέρει από τη πιστοποιημένη τιμή
- $1.64 < u < 1.95 \rightarrow$ το αποτέλεσμα πιθανόν δεν διαφέρει από τη πιστοποιημένη τιμή
- $1.95 < u \leq 2.58 \rightarrow$ δεν είναι ξεκάθαρο αν το αποτέλεσμα διαφέρει από την πιστοποιημένη τιμή
- $2.58 < u \leq 3.29 \rightarrow$ το αποτέλεσμα πιθανόν διαφέρει από τη πιστοποιημένη τιμή
- $3.29 < u \rightarrow$ το αποτέλεσμα διαφέρει από τη πιστοποιημένη τιμή

Στους Πίνακες 5.5 και 5.6 παρουσιάζεται η αξιολόγηση των αποτελεσμάτων του ΕΠΤ-ΕΜΠ με βάση τις παραπάνω σχέσεις 5.2, 5.3 :

Πίνακας 5.5 Συγκεντρώσεις δείγματος Clay και δείκτες σύγκρισης με PTNATIAEA19

Στοιχείο	Συγκέντρωση	±	Uncertainty	Diff (%)	z-score	u-score
Mg	1.4%	±	0.4%	-30	-6.4155	1.0466
Al	5.5%	±	0.4%	-1.6	-0.2037	0.1518
Mn	312ppm	±	7ppm	0.96	0.0926	0.0907
K	2.19%	±	0.08%	4.4	1.2973	0.8727
Na	0.278%	±	0.008%	0.17	0.0209	0.0197
As	16ppm	±	3ppm	19	1.479	0.8060

Πίνακας 5.6 Συγκεντρώσεις δείγματος Plant και δείκτες σύγκρισης με PTNATIAEA19

Στοιχείο	Συγκέντρωση	±	Uncertainty	Diff (%)	z-score	u-score
Mn	103ppm	±	3ppm	-1.7	-0.2787	0.2514
K	1.14%	±	0.05%	2.5	-0.4582	0.3603
Na	50ppm	±	10ppm	-22	-0.6171	0.5403

Όσον αφορά στο δείγμα Clay, τα αποτελέσματα του Πίνακα 5.5 δείχνουν ότι τα σενάρια που επιλέχθηκαν, η βαθμονόμηση που χρησιμοποιήθηκε και οι υπολογισμοί που έγιναν καταλήγουν σε αποδεκτά αποτελέσματα για Al, Mn, K, Na και As. Για το As σημειώνεται ότι παρόλο που τα αποτελέσματα z-score, u-score είναι αποδεκτά η διαφορά % από την πιστοποιημένη τιμή, που είναι 19% κρίνεται υψηλή. Για το Mg, προκύπτει ότι τα αποτελέσματα είναι μη αποδεκτά, οπότε θα πρέπει να αναζητηθεί καλύτερο σενάριο πχ. συντομότερη γ-φασματοσκοπική ανάλυση για να μην επικαλύπτεται από την φωτοκορυφή του Mn.

Όσον αφορά στο δείγμα Plant τα στοιχεία που προσδιορίστηκαν ήταν μόνο τρία. Τα δύο από αυτά, Mn και K, έχουν πολύ ικανοποιητικές τιμές για τους δείκτες σύγκρισης παρόλο που τα αποτελέσματα λήφθηκαν ακολουθώντας το συντελεστή βαθμονόμησης για δείγμα χώματος. Ο προσδιορισμός του Na παρουσιάζει αποδεκτές τιμές z-score, u-score, αλλά υψηλή διαφοροποίηση από την πιστοποιημένη συγκέντρωση. Σημειώνεται ότι στη σχετική αναφορά PTNATIAEA19 [23], αναφέρεται συγκεκριμένα για την πιστοποιημένη συγκέντρωσης του Na, ότι η τυπική απόκλιση είναι μεγάλη (~50%) και για αυτό δεν παρέχεται πιστοποιημένη τιμή, παρά μόνο δίνεται εντός παρενθέσεως πληροφοριακά.

Για να διερευνηθούν όλα τα σενάρια σε περίπτωση που κάποιος έδινε καλύτερους δείκτες, Diff (%), z-score, u-score, οι αντίστοιχοι υπολογισμοί έγιναν για όλα τα διαθέσιμα φάσματα από τους δύο ανιχνευτές και παρουσιάζονται στο Παράρτημα Γ. Δεν προέκυψε, όμως, κάποιος συνδυασμός με χαμηλότερες τιμές και για τους τρεις δείκτες. Μόνο στην περίπτωση του As, προέκυψαν καλύτερες τιμές για τα z-

score, u-score στη γ-φασματοσκοπική ανάλυση 5h, αλλά η αβεβαιότητα έφτανε το 40% λόγω της αβεβαιότητας της φωτοκορυφής στο SOIL-7.

Οπότε, οι καλύτεροι συνδυασμοί παραμένουν αυτοί που προέκυψαν στο 4^ο κεφάλαιο και παρουσιάζονται στον πίνακα 4.6 μαζί και με τους αντίστοιχους συντελεστές βαθμονόμησης και αυτοί θα πρέπει να ακολουθούνται σε αντίστοιχες μελλοντικές αναλύσεις ειδικά για δείγματα χώματος.

5.2 Ανάλυση με Νετρονική ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία ιζήματος από το Λαύριο Αττικής

Στη συνέχεια αναλύθηκε δείγμα ιζήματος, από την περιοχή του Λαυρίου Αττικής, ακολουθώντας τα σενάρια νετρονικής ενεργοποίησης και γ-φασματοσκοπίας, του Πίνακα 4.6 που επιβεβαιώθηκαν και με τη διαδικασία της αξιολόγησης στην παράγραφο 5.1.3.

Από το δείγμα αυτό παρασκευάστηκαν δύο δείγματα. Το πρώτο, μάζας 31.1767g, τοποθετήθηκε στο δοχείο 24ml και ακολούθησε Νετρονική ενεργοποίηση 111h και στη συνέχεια γ-φασματοσκοπικές αναλύσεις στο σύστημα ανιχνευτών XtRa-XtCSS σύμφωνα με τα επιλεγμένα σενάρια, για τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης Mn, K, Na, As.

Το δεύτερο, μάζας 19.4136g, τοποθετήθηκε και αυτό στο δοχείο 24ml για σύντομη Νετρονική ενεργοποίηση 1h και στη συνέχεια λήφθηκαν γ-φάσματα 15 min, στο σύστημα ανιχνευτών XtRa-XtCSS, για τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης των βραχύβιων Al, Mg.

Στη συνέχεια ακολουθήθηκε η διαδικασία και οι υπολογισμοί που έχουν περιγραφεί αναλυτικά στις προηγούμενες αναλύσεις. Οπότε χρησιμοποιώντας τους αντίστοιχους συντελεστές βαθμονόμησης προέκυψαν τα αποτελέσματα που καταγράφονται στον Πίνακα 5.7.

Η εκτίμηση της συνολικής αβεβαιότητας στον υπολογισμό της συγκέντρωσης του Πίνακα 5.7 έγινε σύμφωνα με τη σχέση 5.1 που χρησιμοποιήθηκε για την εκτίμηση της αβεβαιότητας στα δείγματα της Άσκησης Διαβαθμονόμησης.

Πίνακας 5.7 Ανάλυση ιζήματος περιοχής Λαυρίου Αττικής

Ανιχνευτής XtRa (unsuppress)				Ενεργοποίηση 1h + 15min ανίχνευση						
Στοιχείο	Ισότοπο	T1/2	keV	Area	Are _{aErr} (%)	λ	m (mg)	C (ppm)	C _{error} (ppm)	C _{error} (%)
Mg	Mg-26	9.45 min	1014.4	44	63.3	3.27	143.88	5000	2000	46

Ανιχνευτής XtRa (unsuppress)				Ενεργοποίηση 1h + 15min ανίχνευση						
Στοιχείο	Ισότοπο	T1/2	keV	Area	Are _{aErr} (%)	λ	m (mg)	C (ppm)	C _{error} (ppm)	C _{error} (%)
Al	Al-27	2.24 min	1778.9	648	7.8	0.92	596.16	19000	1000	5

Ανιχνευτής XtRa (unsuppress)				Ενεργοποίηση 11h + 5h ανίχνευση						
Στοιχείο	Ισότοπο	T1/2	keV	Area	Are _{aErr} (%)	λ	m (mg)	C (ppm)	C _{error} (ppm)	C _{error} (%)
Mn	Mn-55	2.58h	846.7	103114	0.9	0.00034	35.05876	1120	20	2

Ανιχνευτής XtCSS (suppress)				Ενεργοποίηση 111 h + 24h ανίχνευση						
Στοιχείο	Ισότοπο	T1/2	keV	Area	Are _{aErr} (%)	λ	m (mg)	C (ppm)	C _{error} (ppm)	C _{error} (%)
K	K-39	12.36h	1524.7	4287	4.0	0.05	214.35	6900	300	4

Ανιχνευτής XtCSS (suppress)				Ενεργοποίηση 111 h + 5h ανίχνευση						
Στοιχείο	Ισότοπο	T1/2	keV	Area	Are _{aErr} (%)	λ	m (mg)	C (ppm)	C _{error} (ppm)	C _{error} (%)
Na	Na-23	15.0h	1368.6	38018	0.9	0.0058	220.5044	7100	200	3

Ανιχνευτής XtCSS (suppress)				Ενεργοποίηση 111 h + 144h ανίχνευση						
Στοιχείο	Ισότοπο	T1/2	keV	Area	Are _{aErr} (%)	λ	m (mg)	C (ppm)	C _{error} (ppm)	C _{error} (%)
As	As-75	26.3h	559.1	20594	2.8	0.00017	3.50098	110	20	17

Η συγκέντρωση του Mg προσφέρει μόνο ενδεικτική πληροφορία καθώς η αβεβαιότητα που τη συνοδεύει είναι υψηλή. Αυτό είναι αδυναμία που ίσως διορθωθεί με ακόμη συντομότερο σενάριο ενεργοποίησης και γ-φασματοσκοπίας για να μειωθεί η επίδραση της κοντινής κορυφής του Mn. Η αβεβαιότητα που συνοδεύει τη συγκέντρωση του As οφείλεται στην υψηλή αβεβαιότητα της αντίστοιχης φωτοκορυφής του SOIL-7 και μπορεί να μειωθεί αν χρησιμοποιηθεί πιστοποιημένο υλικό με υψηλότερη συγκέντρωση As. Για τα Al, Mn, K, Na οι αβεβαιότητες είναι σε ικανοποιητικό επίπεδο. Στα ισότοπα μεσαίας ημίσειας ζωής (από 12h και πάνω) φαίνεται ότι ο υπολογισμός της συγκέντρωσης με βάση το suppress φάσμα δίνει πιο αξιόπιστα αποτελέσματα σε συντομότερης διάρκειας ανάλυσης και με μικρότερη αβεβαιότητα. Στην περίπτωση του As η χρήση του suppress φάσματος έδωσε τη δυνατότητα εκτίμησης συντελεστή σφάλματος με ανάλυση πιστοποιημένου χώματος χαμηλής συγκέντρωσης σε As μόνο 13ppm. Συνοπτικά τα αποτελέσματα παρουσιάζονται στον Πίνακα 5.8:

Πίνακας 5.8 Αποτελέσματα ανάλυσης Ιζήματος Λαυρίου

Στοιχείο	Συγκέντρωση (ppm)	±	Uncertainty (ppm)
Al	19000	±	1000
Mn	1120	±	20
K	6900	±	300
Na	7100	±	200
As	110	±	20

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 6^ο

Σύνοψη - Συμπεράσματα

Αντικείμενο της παρούσας Διπλωματικής Εργασίας ήταν η ανάλυση στερεών δειγμάτων περιβαλλοντικής σημασίας, όπως χώμα, αποξηραμένη φυτική κυτταρίνη και ίζημα, για τον προσδιορισμό μη ραδιενεργών στοιχείων, με τη μέθοδο της Ενεργοποίησης με Νετρόνια και στη συνέχεια γ-φασματοσκοπία των 'ενεργοποιημένων' δειγμάτων. Ορισμένα από τα μη ραδιενεργά στοιχεία των δειγμάτων στη διάρκεια της τοποθέτησής τους στη δεξαμενή με την πηγή νετρονίων, ενσωματώνουν ένα νετρόνιο και μεταπίπτουν σε αντίστοιχα ραδιενεργά ισότοπα που ανιχνεύονται όταν τοποθετηθούν στον ανιχνευτή γ-ακτινοβολίας.

Οι αναλύσεις πραγματοποιήθηκαν στο Εργαστήριο Πυρηνικής Τεχνολογίας του ΕΜΠ. Συγκεκριμένα η Νετρονική Ενεργοποίηση έγινε με ισοτοπική πηγή νετρονίων Am-Be, και η γ-φασματοσκοπική ανάλυση των ενεργοποιημένων δειγμάτων έγινε σε ανιχνευτή Ge εφοδιασμένο με σύστημα Compton suppression.

Για τη βαθμονόμηση της τεχνικής αυτής για τον διαθέσιμο εξοπλισμό και τη γεωμετρία των δειγμάτων που επιλέχθηκε, χρησιμοποιήθηκε η συγκριτική μέθοδος με υλικό αναφοράς το SOIL-7 του ΔΟΑΕ.

Για την ανάλυση των δειγμάτων ακολουθήθηκαν δύο σενάρια/ συνδυασμοί νετρονικής ενεργοποίησης και γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης. Το πρώτο σενάριο (1h NA και 15min γ-φασματοσκοπία) στόχευε στον προσδιορισμό των βραχύβιων ισotόπων. Το δεύτερο σενάριο (111h NA και γ-φασματοσκοπία από 1 ώρα ως 6 ημέρες) στόχευε σε ισotόπα μέτριου χρόνου ημιζωής.

Ακολουθώντας τα σενάρια αυτά για δείγμα από το SOIL-7, προέκυψαν συντελεστές βαθμονόμησης για τα στοιχεία Al και Mg (βραχύβια) και Mn, K, Na, As (μέτριας ημιζωής).

Με τους συντελεστές αυτούς και ακολουθώντας τα δύο σενάρια ακτινοβόλησης και γ-φασματοσκοπίας αναλύθηκαν δύο άγνωστα δείγματα του ΔΟΑΕ (χώμα και φυτική κυτταρίνη). Τα αποτελέσματα που προέκυψαν ήταν δυνατόν να αξιολογηθούν καθώς, πριν το πέρας της ΔΕ, αναρτήθηκε η σχετική αναφορά του ΔΟΑΕ. Τα αντίστοιχα τα U-score και Z-score ήταν ικανοποιητικά και επιβεβαίωσαν την επιλογή συγκεκριμένων σεναρίων γ-ακτινοβόλησης για κάθε ισότοπο. Στη συνέχεια τα σενάρια αυτά χρησιμοποιήθηκαν για την ανάλυση ιζήματος από την περιοχή του Λαυρίου στο οποίο προσδιορίστηκαν τα στοιχεία Al, Mg, Mn, K, Na, As.

Συνοψίζοντας για τις ανάγκες της ΔΕ παρασκευάστηκαν τα παρακάτω δείγματα:

- Από το Πιστοποιημένο Υλικό Αναφοράς (ΙΑΕΑ) SOIL-7:

	SOIL-7 1h & 111h Νετρονική
$m_{\text{μεικτο}}$	29.1234 gr
$m_{\text{δοχείο}}$	12.6802 gr
$m_{\text{καθαρο}}$	16.4432 gr

- Από τα άγνωστης σύστασης υλικά της Άσκησης Διαβαθμονόμησης PTNATIAEA19, Silicious Clay και Cellulose Plant:

	Clay 1h & 111h Νετρονική	PLANT	
		1h Νετρονική	111h Νετρονική
$m_{\text{μεικτο}}$	29.1234 gr	24.2703 gr	22.5401 gr
$m_{\text{δοχείο}}$	12.6802 gr	14.0458 gr	12.6802 gr
$m_{\text{καθαρο}}$	16.4432 gr	10.2245 gr	9.8599 gr

- Από το άγνωστης σύστασης ιζήμα από τη περιοχή του Λαυρίου Αττικής:

	ΛΑΥΡΙΟ	
	1h Νετρονική	111h Νετρονική
$m_{\text{μεικτο}}$	33.4872 gr	45.2326 gr
$m_{\text{δοχείο}}$	14.0736 gr	14.0559 gr
$m_{\text{καθαρο}}$	19.4136 gr	31.1767 gr

Τα δείγματα τοποθετήθηκαν στην ισοτοπική πηγή νετρονίων Am-Be του ΕΠΤ-ΕΜΠ σε δύο φάσεις:

- σύντομη νετρονική ενεργοποίηση 1h σε συνδυασμό με σύντομη γ-φασματοσκοπική ανάλυση 15min και
- μεγαλύτερης διάρκειας ενεργοποίηση 111h σε συνδυασμό με ποικιλία γ-φασματοσκοπικών αναλύσεων διάρκειας από 15min έως 144 ώρες (6 ημέρες) .

Τα ενεργοποιημένα δείγματα αναλύθηκαν στο σύστημα ανιχνευτών γ-ακτινοβολίας XtRa-XtCSS που παρέχει δυνατότητα να συλλέγεται, εκτός από το συνηθισμένο φάσμα ακτινοβολίας-γ, και το αντίστοιχο φάσμα με μειωμένο υπόστρωμα λόγω αφαίρεσης 'φωτονίων που προέρχονται από σκεδάσεις Compton (Compton Suppress System). Έτσι, για την εκπόνηση της ΔΕ λήφθηκαν τα φάσματα που φαίνονται στον Πίνακα 6.1.

Τα φάσματα που λήφθηκαν για το δείγμα πιστοποιημένου χώματος SOIL-7 της ΙΑΕΑ, χρησιμοποιήθηκαν για τη βαθμονόμηση συνολικά της διαδικασίας νετρονικής ενεργοποίησης και γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης στο ΕΠΤ-ΕΜΠ, με την επισήμανση ότι πρέπει να διατηρούνται εκτός από το εκάστοτε σενάριο του Πίνακα 6.1 και η γεωμετρία Πηγής νετρονίων-δείγμα αλλά και η γεωμετρία δείγμα-ανιχνευτής. Τα δείγματα τοποθετούνται σε δοχείο 24ml που τοποθετείται με ειδικό δειγματοφορέα στη δεξαμενή της ισοτοπικής πηγής.

Τα ισότοπα που ανιχνεύθηκαν σε αυτά τα φάσματα ήταν Al-27, Mg-26, Mn-55, K-39, Na-23, As-75. Μάλιστα για καθένα από αυτά ξεχώρισε το σενάριο (συνδυασμός διάρκειας νετρονικής ενεργοποίησης, διάρκειας γ-φασματοσκοπίας και Ανιχνευτής (Suppress-XtCSS ή unsuppress-XtRa) που δίνει χαμηλή αβεβαιότητα φωτοκορυφής και κατά συνέπεια χαμηλότερη συνολική αβεβαιότητα αφού αυτός είναι ο βασικός παράγοντας αβεβαιότητας. Για αυτά τα σενάρια – ένα για κάθε στοιχείο-υπολογίστηκε ο αντίστοιχος συντελεστής βαθμονόμησης, λ. Ακολουθώντας τα σενάρια αυτά, που συγκεντρώνονται στον Πίνακα 6.2 και χρησιμοποιώντας τους συντελεστές βαθμονόμησης που προτείνονται, μπορούν να προσδιοριστούν οι συγκεντρώσεις των συγκεκριμένων στοιχείων σε άγνωστης σύστασης δείγματα εφόσον διατηρούνται όλες οι συνθήκες ίδιες πχ. γεωμετρία δείγματος –πηγής και υλικό δείγματος πχ. χώμα.

Πίνακας 6.1 Φάσματα γ-ακτινοβολίας που λήφθηκαν για τις ανάγκες της παρούσας ΔΕ

SOIL7			SILICEOUS SAMPLE			NPLANT			Ίζημα - Λαύριο		
Ενεργοποίηση	γ-φασματοσκοπία		Ενεργοποίηση	γ-φασματοσκοπία		Ενεργοποίηση	γ-φασματοσκοπία		Ενεργοποίηση	γ-φασματοσκοπία	
Am-Be	XtRa	XtCSS	Am-Be	XtRa	XtCSS	Am-Be	XtRa	XtCSS	Am-Be	XtRa	XtCSS
1h	15min		1h	15min		1h	15min		1h	15min	
111h	15min		111h	1h		111h	15min		111h	1h	
	1h			5h			1h			5h	
	5h			24h			5h			24h	
	24h			72h			24h			72h	
	72h			144h			72h			144h	
	144h						144h				

Πίνακας 6.2 Επιλεγμένα σενάρια ανάλυσης με Νετρονική ενεργοποίηση και γ-φασματοσκοπία στο ΕΠΤ και οι αντίστοιχοι Συντελεστές Βαθμονόμησης

Στοιχείο	Διάρκεια Νετρονικής Ενεργοποίησης	Ισότοπο	T _{1/2}	keV	Ανιχνευτής	Διάρκεια γ-Φάσματος	λ
Al	1h	Al-27	2.24 min	1778,9	XtRa (unsuppress)	15min	0.92
Mg	1h	Mg-26	9.45min	1014.4	XtCSS (suppress)	15min	3.89
Mn	111h	Mn-55	2.58h	846.7	XtRa (unsuppress)	5h	0.00034
K	111h	K-39	12.36h	1524.7	XtCSS (suppress)	24h	0.05
Na	111h	Na-23	15.0h	1368.6	XtCSS (suppress)	5h	0.0058
As	111h	As-75	26.3h	559.1	XtCSS (suppress)	144h	0.00017

Τα σενάρια αυτά χρησιμοποιήθηκαν για τον προσδιορισμό των παραπάνω στοιχείων σε άγνωστης σύστασης δείγματα χώματος και φυτική κυτταρίνης για τη συμμετοχή του ΕΠΤ-ΕΜΠ στην Άσκησης Διαβαθμονόμησης (ΡΤΝΑΤΙΑΕΑ19). Έτσι προέκυψαν οι συγκεντρώσεις των Πινάκων 6.3 και 6.4, στους οποίους παρατίθενται και δείκτες για τη σύγκριση των υπολογιζόμενων συγκεντρώσεων, C, με τις πιστοποιημένες τιμές που ανακοινώθηκαν πριν την ολοκλήρωση της ΔΕ. Οι τιμές των δεικτών αυτών είναι πολύ ικανοποιητικές, ειδικά για την ανάλυση χωμάτων.

Έτσι στη συνέχεια, ακολουθώντας αυτά τα σενάρια και τους αντίστοιχους συντελεστές βαθμονόμησης, αναλύεται δείγμα ιζήματος από την περιοχή του Λαυρίου Αττικής. Οι συγκεντρώσεις που προέκυψαν καταγράφονται στον Πίνακα 6.5 με την αντίστοιχη αβεβαιότητα.

Πίνακας 6.3 Συγκεντρώσεις δείγματος Clay και δείκτες σύγκρισης

Στοιχείο	Συγκέντρωση	±	Uncertainty	Diff (%)	z-score	u-score
Mg	1.4%	±	0.4%	-30	-6.4155	1.0466
Al	5.5%	±	0.4%	-1.6	-0.2037	0.1518
Mn	312ppm	±	7ppm	0.96	0.0926	0.0907
K	2.19%	±	0.08%	4.4	1.2973	0.8727
Na	0.278%	±	0.008%	0.17	0.0209	0.0197
As	16ppm	±	3ppm	19	1.479	0.8060

Πίνακας 6.4 . Συγκεντρώσεις δείγματος Plant και δείκτες σύγκρισης

Στοιχείο	Συγκέντρωση	±	Uncertainty	Diff (%)	z-score	u-score
Mn	103ppm	±	3ppm	-1.7	-0.2787	0.2514
K	1.14%	±	0.05%	2.5	-0.4582	0.3603
Na	50ppm	±	10ppm	-22	-0.6171	0.5403

Πίνακας 6.5 Συγκεντρώσεις δείγματος Ιζήματος Λαυρίου

Στοιχείο	Συγκέντρωση (ppm)	±	Uncertainty (ppm)
Al	19000	±	1000
Mn	1120	±	20
K	6900	±	300
Na	7100	±	200
As	110	±	20

Τα στοιχεία Al, Mg, Mn, K, Na, και As που προσδιορίζονται, με τα σενάρια νετρονικής ενεργοποίησης 1h και 111h (~4ημερών) στην ισοτοπική πηγή νετρονίων του ΕΠΤ-ΕΜΠ είναι περιορισμένα λόγω της χαμηλής ροής νετρονίων της διαθέσιμης ισοτοπικής πηγής Am-Be και των χαμηλών συγκεντρώσεων του SOIL-7 που χρησιμοποιήθηκε για τη βαθμονόμηση της τεχνικής αυτής.

Από την άλλη όμως η συγκεκριμένη μέθοδος προσδιορίζει στοιχεία όπως Al, Na, K και Mg, που η τεχνική ανάλυση με XRF του ΕΠΤ-ΕΜΠ δεν μπορεί να ανιχνεύσει. Επίσης στην περίπτωση του As, που στην ανάλυση με XRF υπάρχει δυσκολία στο ποσοτικό προσδιορισμό του όταν συνυπάρχει με Pb, όπως συμβαίνει συνήθως, με την νετρονική ενεργοποίηση 4 ημερών προσδιορίζονται ακόμα και χαμηλές συγκεντρώσεις λίγων ppm.

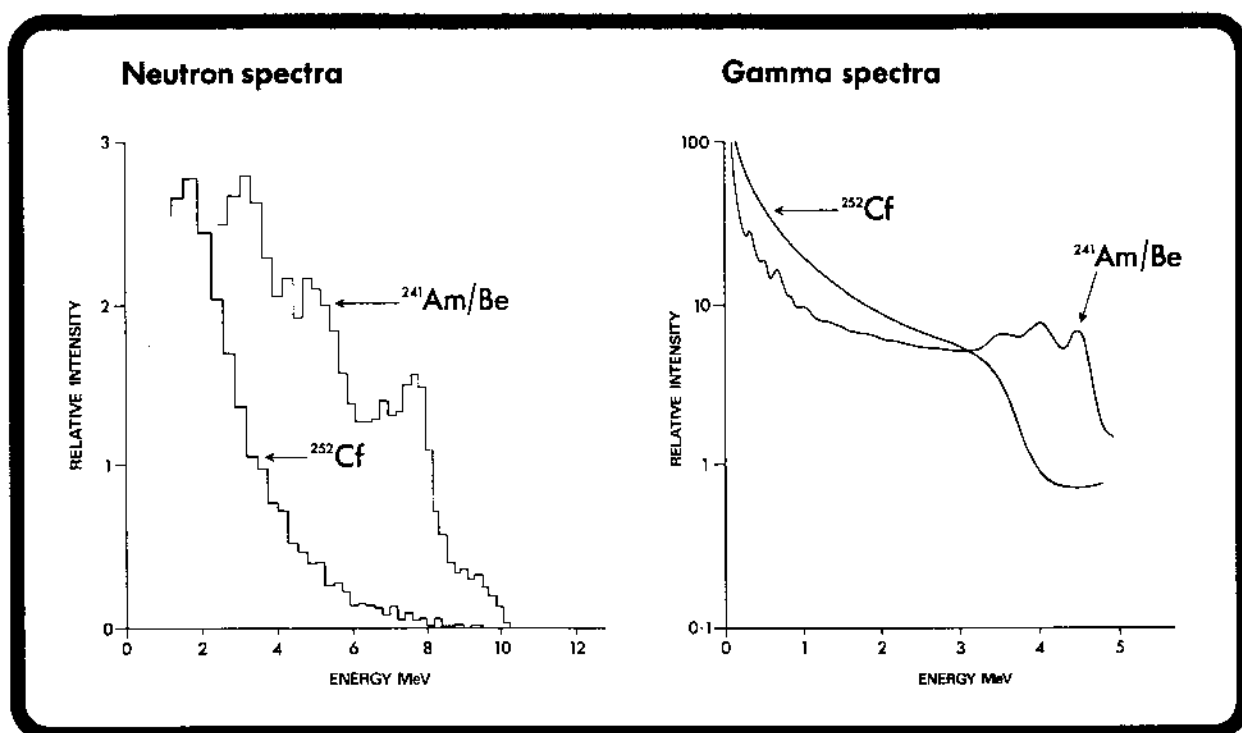
Τα περιθώρια για περαιτέρω έρευνα είναι αρκετά καθώς μπορούν να διερευνηθούν ακόμα πιο σύντομα σενάρια ενεργοποίησης – γ-φασματοσκοπίας ή ακόμα και prompt γ-φασματοσκοπία και η βαθμονόμηση με πιστοποιημένα υλικά με λίγο υψηλότερες συγκεντρώσεις για τοξικά ιχνοστοιχεία πχ. As ή σπάνιες γαίες. Επίσης φάνηκε ότι υπάρχει διαφοροποίηση για τα φυτικά δείγματα οπότε χρειάζεται βαθμονόμηση με αντίστοιχα υλικά αναφοράς. Επίσης υπάρχει πεδίο συμπλήρωσης με ενεργοποιήσεις σε πυρηνικούς αντιδραστήρες για μακρόβια ισότοπα. Τέλος, θα μπορούσε να γίνει χρήση προσομοιώσεων Monte Carlo για την διόρθωση του efficiency.

Βιβλιογραφία

- 1) Gilmore G., Hemingway J.D., Practical Gamma-Ray Spectrometry, John Wiley & Sons, 1995.
- 2) W.M. GIBSON, G.L. MILLER P.F. DONOVAN, in *Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy*, 1968.
- 3) Σάββα., Μ. Ανάπτυξη και εφαρμογή τεχνικών προσδιορισμού πολύ χαμηλών συγκεντρώσεων ραδιενεργών ιχνοστοιχείων σε δείγματα περιβαλλοντικής σημασίας, ΔΔ ΕΜΠ, 2017.
- 4) Cetiner, N., Unlu, K., Brenner, J. "Compton suppression system at Penn State Radiation Science and Engineering Center", *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 276 (3), pp. 615–621, 2008.
- 5) Canberra. "Compton Suppression ... Made Easy", www.canberra.com , 2001
- 6) www.isus.de
- 7) <https://www.ortec-online.com/products/radiochemistry-health-physics-research-industrial/timing-systems/compton-suppression>
- 8) Parry, S. Activation Spectrometry in Chemical Analysis. Wiley-Interscience, 1991
- 9) https://www.researchgate.net/figure/Neutron-energy-spectrum-from-a-nuclear-fission-reactor-17_fig2_330339084
- 10) Αγγελόπουλος, Μ. Γ., Εκδόσεις ΕΜΠ, Πυρηνική τεχνολογία, 1983.
- 11) Litz, M. W., Neutron-Activated Gamma-Emission: Technology Review, Sensors and Electron Devices Directorate. Army Research Laboratory ,2012.
- 12) https://www.researchgate.net/figure/Illustration-of-the-process-of-neutron-capture-by-a-target-nucleus-followed-by-the_fig2_322617621
- 13) Ρούνη, Π., Ανίχνευση ιχνοστοιχείων σε δείγματα περιβαλλοντικής σημασίας με χρήση μεθόδων πυρηνικής τεχνολογίας, ΔΔ ΕΜΠ, 2008.
- 14) Erdtmann, G. Neutron Activation Tables , Kernchemie in Einzeldarstellungen, Vol. 6, Verlag Chemie, 1976.
- 15) Activation and Decay of Radioactivity Nuclides, 2015
- 16) Peisach M., Prompt techniques, in Amiel S. , Nondestructive Activation Analysis, Studies in Analytical Chemistry 3, Elsevier, Amsterdam, 1981.
- 17) Tetsuo Matsumoto, Otohiko Aizawa, Prompt gamma-ray neutron activation analysis of Boron-10 in biological materials, Applied Radiation & Isotopes Vol. 41, No.9, 1990.
- 18) Αργυράκη, Α. Αναλυτική Γεωχημεία (Τμήμα Γεωλογίας και Γεωπεριβάλλοντος, Τομέας Οικονομικής Γεωλογίας και Γεωχημείας, ΕΚΠΑ , 2013.
- 19) Ehmman, W. D. Ραδιοχημεία και πυρηνικές μέθοδοι αναλύσεως. (Π. Μισσαηλίδης, Trans.) Μακεδονικές εκδόσεις , 1998.
- 20) Amersham Technical Bulletin 76/7, 1976.

- 21) Masse, D., Adam, A., Laurec, J. "A Ge-Nal(Tl) spectrometer with Compton suppression and gamma coincidence counting. Application to ^{189}Ir and ^{101}Rh activity measurements", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*,
- 22) Kenneth S. Krane (Επιστημονική Επιμέλεια: Μιχάλης Κόκκορης , Θεόδωρος Μερτζιμέκης, Νικόλαος Πατρώνης, Στυλιανός Στούλος), Εισαγωγή Στην Πυρηνική Φυσική, Gutenberg, 1987, Corvalis Oregon.
- 23) PTNATIAEA19, Determination of Major, Minor and Trace Elements in a Clay Sample and in a Plant Sample, IAEA Report, March 2022.

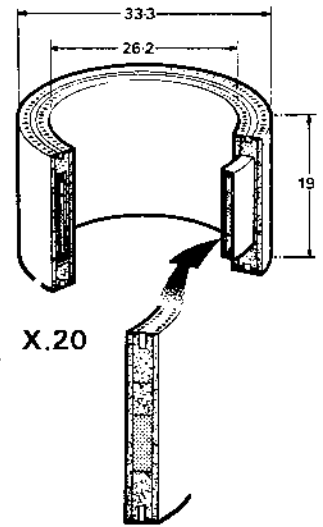
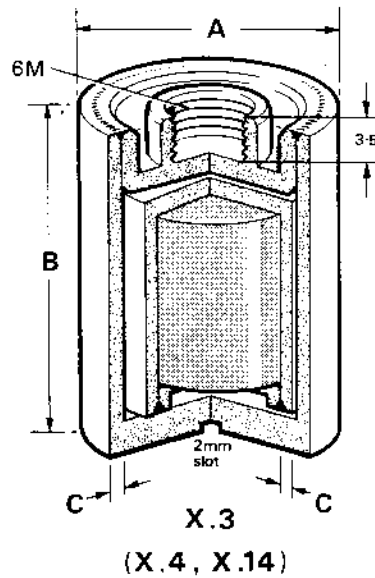
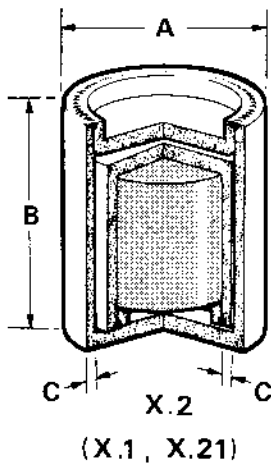
ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Α

**Neutron Sources:
Americium-241/Beryllium and Californium-252**Technical
bulletin
76/7

Neutron fluxes obtainable from radioisotopic neutron sources are much lower than those from nuclear reactors and neutron generators, but there are many applications where neutron yields of between 10^4 and 10^9 per second are sufficient to perform measurements with adequate speed and sensitivity. Compared to alternative sources of neutrons radioisotopic sources are reliable, compact and relatively inexpensive and have been used for many years. They are still the preferred source where stability, price and portability are important. Americium-241/beryllium and californium-252 have become the most widely used radioisotopes and technical specifications of our range are given in this bulletin. However, neutron sources based on other α - and γ -emitting nuclides are available, and further details of these can be supplied on request. Physical data are given of the radiations emitted by americium-241/beryllium and californium-252 sources together with brief information on applications. The latter is merely intended to serve as a guide and the user is referred to the bibliography for more detailed information.

Applications

Neutrons are very penetrating; consequently bulk material can usually be investigated yielding information which is relatively insensitive to inhomogeneity or surface effects that often prove troublesome with other techniques. An added attraction of the use of neutrons is the minimum sample preparation which is necessary to yield optimum information. Information about the sample is obtained by measuring either modifications in the primary (neutron) radiation or else the secondary radiations produced as a result of a neutron reaction with a component of the sample. Examples of methods based upon measurement of primary radiations are transmission, absorption and moderation whilst activation analysis is the best known of the techniques exploiting counting of secondary radiations. Table 1 lists some of the major applications of radioisotopic neutron sources. Activity ranges are given for each application but the precise activity chosen will depend on the optimization of several factors. Users are requested to write giving details of their application if advice on suitable source activities is required.

(α , n) Neutron source capsules

Dimensions in mm

capsule type	overall dia 'A' mm	overall height 'B' mm	wall thickness 'C' mm	IAEA special form	ISO classification
X.1	7.8	10	0.8	SFC.7	C(E)64344
X.2	17.4	19.4	0.8	SFC.8	C(E)64544
X.21	7.8	15	0.8	SFC.43	C64444
X.20				SFC.29	C64444

threaded capsule type	overall dia 'A' mm	overall height 'B' mm	wall thickness 'C' mm	IAEA special form	ISO classification
X.3	22.4	31	1.2	SFC.9	C(E)64445
X.4	22.4	48.5	1.2	SFC.10	E64445
X.14	30	60	1.2	SFC.11	E64445

Capsules X.3, X.4 and X.14 have 6M threads. Alternative threads to customers' specifications can be supplied on request.

Americium-241/Beryllium

activity	emission n/sec	capsule type	code
1mCi	2.2×10^3	X.2	AMN.11
3mCi	6.6×10^3	X.2	AMN.13
10mCi	2.2×10^4	X.2	AMN.15
30mCi	6.6×10^4	X.2	AMN.16
30mCi	6.6×10^4	X.21	AMN.168
100mCi	2.2×10^5	X.2	AMN.17
100mCi	2.2×10^5	X.20	AMN.170
300mCi	6.6×10^5	X.2	AMN.18
500mCi	1.1×10^6	X.3	AMN.19
1Ci	2.2×10^6	X.3	AMN.22
3Ci	6.6×10^6	X.4	AMN.23
5Ci	1.1×10^7	X.14	AMN.24
10Ci	2.2×10^7	X.14	AMN.25
25Ci	specification on request		
50Ci	specification on request		

Californium-252

²⁵² Cf content	²⁵² Cf activity	emission n/sec	capsule	code
0.01 μ g	5 μ Ci	2.3×10^4	X.1	CVN.101
0.1 μ g	54 μ Ci	2.3×10^5	X.1	CVN.1
0.5 μ g	268 μ Ci	1.15×10^6	X.1	CVN.2
1 μ g	536 μ Ci	2.3×10^6	X.1	CVN.3
2 μ g	1.07mCi	4.6×10^6	X.1	CVN.4
5 μ g	2.7mCi	1.15×10^7	X.1	CVN.5
10 μ g	5.4mCi	2.3×10^7	X.1	CVN.6
20 μ g	10.7mCi	4.6×10^7	X.1	CVN.7
50 μ g	27mCi	1.15×10^8	X.1	CVN.10

Various capsules are offered for sources in the following activity ranges. Further details are available on request.

100 μ g	54mCi	2.3×10^8
200 μ g	107mCi	4.6×10^8
500 μ g	268mCi	1.15×10^9
1mg	536mCi	2.3×10^9

Table 1. A guide to neutron source applications

application	method	typical source required		notes
		²⁵² Cf	²⁴¹ Am	
Trace element analysis	Neutron activation			
	Fast $\left\{ \begin{array}{l} (n, \gamma) \\ (n, \alpha) \\ (n, p) \\ (n, n' \gamma) \end{array} \right.$	100–1000 μ g*	10–100Ci	Sensitivity level 100 ppm ⁽²⁾
		*For fast neutron activation of light elements through (n, α) and (n, p) reactions americium-241/beryllium is about 10 times more efficient than californium-252 ⁽³⁾		
	Thermal (n, γ)	1–100 μ g	1–100Ci	Sensitivity level ppm ⁽⁴⁾
Per cent element analysis, for example process control, fogging, whole body activation	Neutron activation	1–10 μ g	1–10Ci	Determination of high cross-section materials at the percentage level ⁽⁵⁾ Calcium and potassium bone content ⁽⁶⁾
Hydrogenous material measurement, for example soil moisture	Thermalization	0.1 μ g	30–100mCi	Analysis to accuracy ± 0.01 g H ₂ O per g solid ⁽⁷⁾
Bulk element analysis (process control)	Neutron attenuation	$\sim 10\mu$ g	0.3–1 Ci	Determination of materials ⁽⁸⁾ with high neutron absorption/scattering cross-sections at the percentage level, for example H ₂ O, Li, B, Cd.
Neutron radiography	Neutron attenuation	100–1000 μ g		Produces shadow picture of high cross-section materials ⁽⁹⁾
Demonstration	Various	0.01–10 μ g	1mCi–10Ci	Properties of neutrons, for example migration lengths and Fermi age by neutron activation ^(10, 11)
Instrument calibration	Various	0.01–1 μ g	1–100mCi	Health physics instrumentation checks. Neutron flux monitor checks ⁽¹²⁾
Nuclear materials assay and safeguard	Fission, delayed neutron yield + other	25 μ g–10mg		Measurement of fissile content of fuel rods ⁽¹³⁾

Normal product range

Composition

Californium-252 is available in bulk as oxide, or as a palladium cermet in the form of wire or pellet. In general, sources below 50 μ g incorporate the oxide and above 50 μ g the cermet as wire or pellet is used. Americium-241/beryllium sources are available as a compacted mixture of americium oxide with beryllium metal powder.

Encapsulation

All sources in our normal product range are doubly encapsulated in vacuum melted stainless steel (grade AISI.316) sealed by argon arc welding. A typical percentage composition is:—

C	0.004	Cr	16.96
Mn	1.59	Ni	13.61
P	0.011	Mo	2.29
S	0.008		
Si	0.37	Fe	balance

Other capsule materials can be considered for special applications.

Availability

Californium-252 sources are manufactured in batches at intervals of a few months. Small numbers of sources containing up to 100 μ g are often available from stock. Americium-241/beryllium sources are in continuous production and are often available from stock or within two to four weeks depending on the activity required.

Radiation emissions and nuclear data

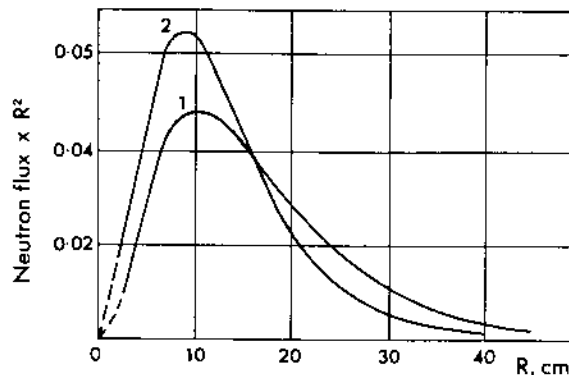
Much detail has been published on the radiation spectra of isotopic neutron sources⁽¹⁾. On page 1 the neutron and gamma spectra measured from sources produced in our laboratories are given. The user should note that for americium-241/beryllium there is a significant number of very low energy neutrons in addition to the high energy neutrons shown in the spectrum^(1,4). Other important radiation parameters are given in Table 2. Many neutron source applications depend on the production of a thermal neutron flux. The magnitude of the thermal flux produced by a source will depend on several factors, including the physical size of source, the size and type of moderator and the neutron spectrum. Table 2 gives the peak thermal neutron flux to be expected from both types of source emitting 10^6 fast neutrons per second in an infinite H_2O moderator (for example, a sphere with a radius of 30cm).

Table 2. Radiation emissions

	Americium-241/beryllium	Californium-252
Neutron emission (per sec)	$2.2 \times 10^6/\text{Ci}$	$2.3 \times 10^6/\mu\text{g}$
Fraction of neutrons below 1.5MeV	~ 0.23	~ 0.46
Mean energy of (a) low energy component (b) high energy component	400keV $\sim 4-5\text{MeV}$	— $\sim 2.3\text{MeV}$
γ -ray emission per neutron (uncorrected for capsule attenuation)	0.7 at 4.43MeV from (a, n). 6×10^3 from ^{241}Am decay predominantly at 60keV	5.7 across 0.6-5MeV spectrum
Neutron dose rate at 1m for source emission 10^6 neutrons/sec	$\sim 1\text{mrem/h}$	$\sim 1\text{mrem/h}$
γ exposure rate at 1m for source emission of 10^6 neutrons/sec	$\sim 1\text{mR/h}$	$\sim 0.1\text{mR/h}$
Peak thermal flux for source with 10^6 neutrons/sec emission in infinite H_2O moderator	$5 \times 10^3 \text{n/cm}^2$ per sec	$1 \times 10^4 \text{n/cm}^2$ per sec

Table 3. Nuclear data

	Americium-241/beryllium	Californium-252
Half-life	433y	2.65y (effective)
Mode of decay	α (100%)	α (96.9%) spontaneous fission (3.1%)



Normalized neutron distribution in water.
1 americium-241/beryllium
2 californium-252

(reproduced from Aleksandrov et al, *Pribory i Tekhnika Eksperimenta*, No 3, 1971)

Quality Control

Leakage and contamination

Bubble test

The source is immersed in a suitable liquid and the pressure in the containment vessel reduced to 100mm of mercury. No bubbles must be observed. This test is described in Appendix B of BS 3513:1962 and is used for both americium-241/beryllium and californium-252 sources.

Immersion test

The source is immersed in water at 50°C for 4 hours and activity in the water measured; the pass limit is 0.005 μ Ci. This test is used for all americium-241/beryllium sources and for californium-252 sources up to 50 μ g.

Special Testing

For some special applications other tests may be required such as corrosion resistance, dye-penetrant crack detection, X-radiography, helium leak tests, etc. Customers should enquire for tests to suit their particular needs.

Measurement

Using a BF₃ counter array and paraffin wax moderator assembly the neutron emission of each source is compared with the emission from a source of similar construction measured at the U.K. National Physical Laboratory.

The result of this measurement together with those of leakage and contamination testing are given on a Test Report issued with each source.

Special Sources

Custom source design

The design of sources is a specialist subject and requires considerations of radioisotope to target ratios, gas evolution, heating, capsule materials, radiation chemistry, pressure vessel codes, transport regulations etc. However, as a preliminary guide for the design of americium-241/beryllium sources with dimensions other than those given in this bulletin, the curves on page 8 of this bulletin are useful. It should be noted that californium-252 has inherently such a small active volume that this aspect tends not to be a limitation. The Radiochemical Centre welcomes enquiries for special requirements.

Reactor sources

The Radiochemical Centre has 30 years' experience in the design and construction of neutron sources for reactors. Full consultation with reactor design engineers at an early stage of the project design is advisable. These can be held on customer's premises or at The Radiochemical Centre, Amersham.

Prototype testing

The Radiochemical Centre has a laboratory solely devoted to the prototype testing of capsule designs. A programme exists for the classification of all source capsule designs according to the comprehensive tests described in the regulations of the American National Standards Institute⁽¹⁵⁾ and the International Standards Organisation⁽¹⁶⁾ for sealed radioactive sources. In this bulletin reference is made to the performance classification of each capsule design actually tested and approved.

'Special form' is a category of the IAEA transport regulations covering source integrity⁽¹⁷⁾. The certificate (SFC) numbers given against approved items in this technical bulletin are those issued by the Department of the Environment, the competent authority in the UK for administering the IAEA regulations.

Sealed neutron source performance requirements for typical usage (ISO Standard)

sealed source usage	tempera- ture	pressure	impact	vibration	puncture
Oil-well logging	5	6	5	2	3
Portable moisture and density gauge (including hand held or dolly transported)	4	3	3	3	3
General neutron source application (excluding reactor start-up)	4	3	3	2	2

Classification of sealed-source performance standards (ISO Standard)

test/class	1	2	3	4	5	6	x
Temperature	No test	-40°C (20 min) +80°C (1 h)	-40°C (20 min) +180°C (1 h)	-40°C (20 min) +400°C (1 h) and thermal shock 400°C to 20°C	-40°C (20 min) +600°C (1 h) and thermal shock 600°C to 20°C	-40°C (20 min) +800°C (1 h) and thermal shock 800°C to 20°C	Special test
External pressure	No test	25 kPa absolute to atmospheric pressure	25 kPa absolute to 2 MPa absolute	25 kPa absolute to 7 MPa absolute	25 kPa absolute to 70 MPa absolute	25 kPa absolute to 170 MPa absolute	Special test
Impact	No test	50 g from 1 m	200 g from 1 m	2 kg from 1 m	5 kg from 1 m	20 kg from 1 m	Special test
Vibration	No test	30 min 25 Hz to 500 Hz at 5 gn peak amplitude	30 min 25 Hz to 50 Hz at 5 gn peak amplitude and 50 Hz to 90 Hz at 0.635 mm amplitude peak to peak and 90 Hz to 500 Hz at 10 gn	90 min 25 Hz to 80 Hz at 1.5 mm amplitude peak to peak and 80 Hz to 2000 Hz at 20 gn			Special test
Puncture	No test	1 g from 1 m	10 g from 1 m	50 g from 1 m	300 g from 1 m	1 kg from 1 m	Special test

Special form testing

Impact	Sample is dropped from height 9m on to flat rigid horizontal surface
Percussion	A steel billet 1.4kg dropped from height of 1m onto sample placed on lead supported by a smooth solid surface. Details of billet and lead sheet are specified.
Heating	Sample is heated in air to 800°C and held at temperature for 10 minutes and then allowed to cool.
Immersion	Sample is immersed for 24 hours in water at room temperature.

References

1. LORCH, E. A.
Neutron spectra of $^{241}\text{Am}/\text{B}$, $^{241}\text{Am}/\text{Be}$, $^{241}\text{Am}/\text{F}$, $^{242}\text{Cm}/\text{Be}$, $^{238}\text{Pu}/^{13}\text{C}$ and ^{252}Cf isotopic neutron sources. *International Journal of Applied Radiation Isotopes*, vol. 24, pp. 585–591, 1973.
2. LUTZ, G. J.
Fast-neutron activation analysis with a ^{252}Cf source. *Transactions of the American Nuclear Society*, vol. 17, p. 125, 1973.
3. WAHLGREN, M. A. and STEWART, D. C.
Evaluation of a ^{244}Cm -Be neutron source for activation analysis. Proceedings of the American Nuclear Society National Topical Meeting, Augusta, April 19–21, 1971. (CONF – 710402. vol. 2.)
4. DUFFEY, D. and EL KADY, A.
Analytical sensitivities and energies of thermal-neutron-capture gamma rays. *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 80, pp. 149–171, 1970.
5. KUUSI, J.
Radioisotope neutron activation analyzer for process control analysis. *Nuclear Applications and Technology*, vol. 8, pp. 465–473, 1970.
6. BODDY, K., HOLLOWAY, J., ELLIOTT, A., GLAROS, D., ROBERTSON, I. and EAST, B. W.
Low-cost facilities for partial-body and total-body in-vivo activation analysis in the clinical environment. pp. 589–603 in Proceedings of a Symposium on Nuclear Activation Techniques in the Life Sciences, held in Bled, Yugoslavia, 10–14 April 1972, Vienna, IAEA, 1972, 664pp.
7. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY
Neutron moisture gauges. (Technical Reports Series no. 112.) Vienna, IAEA, 1970, 95pp.
8. PIERCE, T. B.
Some uses of neutrons for analytical control. pp. 197–207 in International Conference on Industrial Measurement and Control by Radiation Techniques, Guildford, 11–13 April 1972, London, IEE, 1972, 255pp.
9. SPOWART, A. R.
A review of neutron radiography. *Journal of Physics, E, Scientific Instruments*, vol. 5, pp. 497–510, 1972.
10. GLASSTONE, S.
Section 3.96, page 165 in Principles of Nuclear Reactor Engineering. London, Macmillan, 1960.
11. RATHUR, M. A. J. and GRANT, P. J.
The age of Po-Be neutrons in water and in graphite. *British Journal of Applied Physics*, vol. 15, pp. 93–96, 1964.
12. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY
Handbook on calibration of radiation protection monitoring instruments. (Technical Reports Series No. 133.) Vienna, IAEA, 1971, 95pp.
13. TERREY, D. R.
Applications of neutron techniques for non-destructive measurements in safeguards, pp. 265–306 in Symposium on Practical Applications of R and D in the Field of Safeguards, held in Rome, 7–8 March 1974. Rome, ESARDA, 1975, 436pp.
14. PAUW, H.
Energy spectra of radioactive neutron sources. PhD thesis, University of Amsterdam, 1970.
15. UNITED STATES OF AMERICA STANDARDS INSTITUTE (now American National Standards Institute)
Classification of Sealed Radioactive Sources. USASI Report N5.10, 1968.
16. INTERNATIONAL STANDARDS ORGANIZATION
Draft standard for the Safety Classification of Sealed Radioactive Sources, ISO/DIS.2919, November, 1972.
17. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY
Regulations for the safe transport of radioactive materials. (IAEA Safety Series No. 6). Vienna, IAEA, 1967. Revised regulations for the Transport of Radioactive Materials have been published by the IAEA (IAEA Safety Series No. 6, 1973 edition). These regulations have not yet been internationally adopted.



REFERENCE SHEET

REFERENCE MATERIAL

IAEA-SOIL-7

Trace Elements in Soil

Date of issue: January 2000[⊕]

Recommended Values
(Based on dry weight)

Element	Recommended Value mg/kg	95% Confidence Interval mg/kg	N*
As	13.4	12.5 - 14.2	25
Ce	61	50 - 63	15
Co	8.9	8.4 - 10.1	32
Cr	60	49 - 74	41
Cs	5.4	4.9 - 6.4	16
Cu	11	9 - 13	34
Dy	3.9	3.2 - 5.3	3
Eu	1.0	0.9 - 1.3	10
Hf	5.1	4.8 - 5.5	11
La	28	27 - 29	12
Mn	631	604 - 650	36
Nd	30	22 - 34	7
Pb	60	55 - 71	31
Rb	51	47 - 56	24
Sb	1.7	1.4 - 1.8	18
Sc	8.3	6.9 - 9.0	22
Sm	5.1	4.8 - 5.5	12
Sr	108	103 - 114	19
Ta	0.8	0.6 - 1.0	12
Tb	0.6	0.5 - 0.9	12
Th	8.2	6.5 - 8.7	18
U	2.6	2.2 - 3.3	14
V	66	59 - 73	18
Y	21	15 - 27	11
Yb	2.4	1.9 - 2.6	12
Zn	104	101 - 113	44
Zr	185	180 - 201	15

* Number of accepted laboratory means which were used to calculate the recommended values and confidence intervals about the median value.

⊕ Update of the reference sheet dated May 1984

Information Values
(Based on dry weight)

Element	Information Value mg/kg	95% Confidence Interval mg/kg	N*
Al	47000	44000 - 51000	24
Ba	159	131 - 196	22
Br	7	3 - 10	11
Ca	163000	157000 - 174000	32
Cd	1.3	1.1 - 2.7	18
Fe	25700	25200 - 26300	46
Ga	10	9 - 13	3
Hg	0.04	0.003 - 0.07	5
K	12100	11300 - 12700	27
Li	31	15 - 42	4
Lu	0.3	0.1 - 0.4	8
Mg	11300	11000 - 11800	24
Mo	2.5	0.9 - 5.1	5
Na	2400	2300 - 2500	33
Nb	12	7 - 17	8
Ni	26	21 - 37	30
P	460	460 - 462	3
Se	0.4	0.2 - 0.8	6
Si	180000	169000 - 201000	11
Ti	3000	2600 - 3700	19

* *Number of accepted laboratory means which were used to calculate the information values and confidence intervals about the median value.*

The values listed above were established on the basis of statistically valid results submitted by laboratories which had participated in an international intercomparison exercise conducted in 1983. The details concerning the criteria for qualification as a recommended value can be found in the report (IAEA/RL/112) "Report on the Intercomparison Run IAEA-Soil-7: Trace Elements in Soil" [1]. This report is available free of charge upon request.

Intended Use

This sample is intended to be used as a reference material for the measurement of trace elements in soil samples. It can also be used as a quality control material for the assessment of a laboratory's analytical work, for the validation of analytical methods and for quality assurance within a laboratory.

Origin and preparation of the material

The soil sample (top soil to a depth of 10 cm) was collected near Ebensee in Upper Austria at an altitude of 1100 m above sea level. The material was sieved through a 1 cm sieve, then heated at 450°C for 24 hours to destroy organic matter. After ashing, the sample was crushed, ground and milled to pass through a 71 µm sieve. The material was thoroughly mixed in a rotating plastic drum for 24 hours and then bottled into plastic containers each containing approximately 25 g.

Reference

- [1] Pszonicki L., Hanna A. N. and Suschny O., Report on the Intercomparison Run IAEA-Soil-7: Trace Elements in Soil.
IAEA/RL/112, IAEA, Vienna, Austria 1984.

Homogeneity

The within and between bottle homogeneity was evaluated by determining the content of four marker elements (Na, Fe, Sc and Sm) by instrumental neutron activation analysis. A number of sub-samples (100 mg) was taken from a single bottle and an equal number of single samples were taken from individual bottles selected at random. A statistical analysis of the results using F and t-tests indicated that the within and between bottle results did not differ significantly and the material can therefore be considered homogeneous (at a sample intake mass at, or above, 100 mg).

Dry weight determination

All values are expressed on a dry weight basis. Therefore the dry weight must be determined at the time of analysis, using separate sub-samples of at least 500 mg dried to constant weight in a drying oven set to 105 °C. Subsequent weighings should differ by less than 5 mg.

Instructions for use

The recommended minimum sample size for analysis is 100 mg. Analysts are reminded to take appropriate precautions in order to avoid contaminating the remaining material in the bottle. No special precautions are required for the storage of this material.

Legal disclaimer

The IAEA makes no warranties, expressed or implied, with respect to the data contained in this reference sheet and shall not be liable for any damage that may result from the use of such data.

Issued & supplied by

Analytical Quality Control Services (AQCS)
Agency's Laboratories, Seibersdorf
International Atomic Energy Agency
P. O. Box 100
A-1400 Vienna, Austria

Prepared by

L. Pszonicki, A. N. Hanna and O. Suschny

TABLE 2a. CERTIFIED (EXTERNAL PROVIDER) VALUES OF MEASURANDS, CONSENSUS VALUES, PROFICIENCY TEST PARAMETERS, TOTAL NUMBER OF RESULTS, NUMBER OF BLUNDERS AND NUMBER OF OUTLIERS FOR THE CLAY SAMPLE.

Measurand symbol	Value from external provider	SD from external provider	x^*	s^*	x_{pt}	$u(x_{pt})$	σ_{pt}	Number of results	Number of blunders	Number of outliers
[%]										
Al	5.391	0.418	6.0	1.2	5.391	0.04	0.17	43	0	6
Ca	12.8	0.41	13.0	1.8	12.8	0.04	0.3	51	0	14
Fe	2.49	0.124	2.50	0.3	2.49	0.012	0.09	69	0	7
K	2.29	0.074	2.36	0.3	2.29	0.007	0.08	66	0	23
Mg	0.956	0.065	1.00	0.16	0.956	0.007	0.04	31	0	5
Na	0.278	0.022	0.290	0.04	0.278	0.002	0.013	49	0	6
S	0.115	0.013	0.113	0.03	0.115	0.0015	0.006	19	0	4
Si	19.8	0.38	20.4	4	19.8	0.05	0.4	32	0	24
Ti	0.277	0.014	0.273	0.05	0.277	0.0015	0.013	54	1	12
[mg/kg]										
As	18.6	1.96	18.6	3	18.6	0.2	1.9	55	0	6
B	-	-	-	-	-	-	-	1	0	0
Ba	287	21.4	287	40	287	2	20	39	2	5
Br	6.5	0.79	6.1	1.1	6.5	0.14	0.8	33	0	1
Cd	0.269	0.061	0.53	0.3	0.269	0.01	0.05	8	1	4
Ce	50.5	3.91	51	9	50.5	0.7	4	34	0	5
Cl	-	-	115	50	-	-	-	14	0	0
Co	9.07	1.73	8.96	0.7	9.07	0.2	1.0	41	1	1
Cr	52.8	6.99	56.1	10	52.8	0.7	5	53	0	3
Cs	7.83	1.041	7.87	0.5	7.83	0.2	0.9	34	0	1
Cu	16.5	1.81	19.4	8	16.5	0.2	1.7	25	0	7
Ga	14.8	1.79	14.5	4	14.8	0.3	1.6	27	0	1
I	(4.25)	(0.968)	-	-	-	-	-	4	0	0
La	25.3	2.54	25.0	3	25.3	0.4	2	40	0	3
Li	61.2	11.01	-	-	61.2	3	5	1	0	0
Mn	315	32.4	314	50	315	3	20	56	3	3
Mo	2.59	0.36	2.7	1.2	2.59	0.05	0.4	12	0	1
Nb	9.45	1.381	8.0	4	9.45	0.2	1.1	11	1	1
Nd	23.3	1.93	21.8	3	23.3	0.4	2	29	0	2
Ni	22.4	2.62	22.4	8	22.4	0.3	2	28	0	4
P	649	64.1	630	200	649	7	40	17	1	4
Pb	20.2	2.66	22.4	7	20.2	0.3	2	25	0	3

Measurand symbol	Value from external provider	SD from external provider	x^*	s^*	x_{pt}	$u(x_{pt})$	σ_{pt}	Number of results	Number of blunders	Number of outliers
Rb	107	7.3	108	12	107	1.0	8	53	0	7
Sb	1.49	0.23	1.46	0.3	1.49	0.04	0.2	31	0	2
Sc	9.31	1.994	8.81	0.6	9.31	0.4	1.1	37	1	1
Se	-	-	2.1	1.4	-	-	-	6	0	0
Sn	3.92	0.721	8	7	3.92	0.13	0.5	6	0	3
Sr	387	32.6	393	50	387	4	30	50	0	6
Th	8.88	1.63	8.9	1.6	8.88	0.3	1.0	41	0	1
U	2.8	0.319	2.63	0.6	2.8	0.06	0.4	32	0	5
V	69.7	7.6	72	15	69.7	0.9	6	36	0	3
Y	17.8	1.75	16.2	6	17.8	0.3	1.8	16	0	3
Zn	54.8	5.33	60.4	11	54.8	0.5	5	55	0	7
Zr	140	13.1	143	40	140	1.9	11	34	0	4
[ug/kg]										
Ag	-	-	-	-	-	-	-	2	0	0
Au	-	-	-	-	-	-	-	1	0	0
Be	(1980)	(577)	-	-	-	-	-	1	0	0
Bi	-	-	-	-	-	-	-	2	0	0
Dy	-	-	3220	400	3220	140	400	15	0	0
Er	-	-	-	-	-	-	-	1	0	0
Eu	-	-	870	110	870	20	140	31	0	2
Gd	-	-	3800	600	3800	300	500	6	0	0
Ge	-	-	-	-	-	-	-	2	0	0
Hf	-	-	4070	500	4070	120	500	28	0	0
Hg	20.4	3.5	-	-	20.4	0.5	5	2	0	0
Ho	-	-	-	-	-	-	-	4	0	0
In	-	-	-	-	-	-	-	1	0	0
Lu	-	-	288	40	288	14	60	16	0	2
Pr	-	-	-	-	-	-	-	4	0	0
Sm	-	-	4280	700	4280	150	600	29	0	0
Ta	-	-	880	110	880	30	140	24	0	2
Tb	-	-	550	60	550	15	100	22	0	2
Te	-	-	-	-	-	-	-	1	0	0
Tl	(610)	(159.6)	-	-	-	-	-	4	0	0
Tm	-	-	-	-	-	-	-	3	0	0
W	(2650)	(717)	2410	300	2410	100	300	17	1	1
Yb	-	-	1740	300	1740	80	300	25	0	2

TABLE 2b. CERTIFIED (EXTERNAL PROVIDER) VALUES OF MEASURANDS, CONSENSUS VALUES, PROFICIENCY TEST PARAMETERS, TOTAL NUMBER OF RESULTS, NUMBER OF BLUNDERS AND NUMBER OF OUTLIERS FOR THE PLANT SAMPLE.

Measurand symbol	Value from external provider	SD from external provider	x^*	s^*	x_{pt}	$u(x_{pt})$	σ_{pt}	Number of results	Number of blunders	Number of outliers
[%]										
C	48	1.02	-	-	48	0.10	0.7	1	0	0
Ca	1.56	0.093	1.63	0.3	1.56	0.004	0.06	51	1	14
K	1.12	0.062	1.14	0.14	1.12	0.003	0.04	64	1	14
Mg	0.236	0.013	0.230	0.06	0.236	0.0006	0.012	31	0	10
P	0.242	0.012	0.255	0.05	0.242	0.0006	0.012	18	1	5
[mg/kg]										
Al	53.2	8.29	130	110	53.2	1.4	5	27	3	11
B	18.1	1.6	-	-	18.1	0.09	1.9	1	0	0
Ba	14	1.21	13.9	2	14	0.15	1.5	25	0	4
Br	1.27	0.183	1.29	0.3	1.27	0.04	0.2	38	2	4
Cl	-	-	214	40	214	9	15	30	0	1
Cr	(0.372)	(0.1106)	0.89	0.7	-	-	-	30	1	0
Cu	6.61	0.602	8.4	3	6.61	0.03	0.8	29	0	12
Fe	75.9	8.44	89	19	75.9	0.4	6	57	2	12
I	(0.164)	(0.0497)	-	-	-	-	-	1	0	0
Mn	101	6.1	107	18	101	0.3	8	57	2	11
Na	(39.4)	(18.31)	52	30	-	-	-	39	1	0
Rb	11.4	0.92	11.3	1.6	11.4	0.15	1.3	51	0	6
S	761	85.4	840	300	761	5	40	17	0	3
Se	(0.025)	0.00844)	0.25	0.2	-	-	-	7	0	0
Si	-	-	460	200	-	-	-	9	2	0
Sr	36.9	2.79	38.2	6	36.9	0.4	3	43	0	6
Ti	-	-	9	7	-	-	-	13	2	0
Y	-	-	-	-	-	-	-	4	0	0
Zn	31.6	2.07	32.6	7	31.6	0.09	3	57	1	13
Zr	-	-	-	-	-	-	-	4	0	0
[ug/kg]										
As	58.5	7	72	30	58.5	0.8	13	23	3	5
Au	-	-	-	-	-	-	-	2	0	0
Cd	75.1	7.3	500	400	75.1	0.6	17	9	3	5
Ce	-	-	100	50	-	-	-	8	2	0

Measurand symbol	Value from external provider	SD from external provider	x^*	s^*	x_{pt}	$u(x_{pt})$	σ_{pt}	Number of results	Number of blunders	Number of outliers
Co	119	20.5	163	80	119	2	30	33	3	7
Cs	17.3	2.2	20	6	17.3	0.5	4	12	1	2
Eu	-	-	-	-	-	-	-	2	0	0
Ga	-	-	-	-	-	-	-	3	0	0
Hf	-	-	-	-	-	-	-	4	0	0
Hg	29.5	1.5	-	-	29.5	0.16	6	4	0	0
In	-	-	-	-	-	-	-	1	0	0
La	-	-	77	30	-	-	-	25	2	0
Lu	-	-	-	-	-	-	-	1	0	0
Mo	524	54.1	840	500	524	5	90	12	0	4
Nb	-	-	-	-	-	-	-	3	0	0
Nd	-	-	-	-	-	-	-	4	0	0
Ni	990	125.3	1190	400	990	11	160	14	3	2
Pb	740	68.3	1000	600	740	6	120	15	3	6
Sb	58.4	7.7	63	15	58.4	1.1	13	21	1	2
Sc	-	-	11.0	4	-	-	-	20	2	0
Sm	-	-	9.3	5	-	-	-	18	5	0
Sn	(73.5)	(34.97)	-	-	-	-	-	1	0	0
Te	-	-	-	-	-	-	-	1	0	0
Th	-	-	-	-	-	-	-	9	5	0
Tl	-	-	-	-	-	-	-	3	0	0
Tm	-	-	-	-	-	-	-	1	0	0
U	-	-	-	-	-	-	-	5	2	0
V	111	19.4	330	300	111	3	20	15	0	9
W	-	-	-	-	-	-	-	1	0	0

Παράρτημα Β Επιμέρους Αβεβαιότητες & Υπολογισμοί

Το Err_{Area} δίνεται σε 1,65σ ώστε διαιρείται με 1.65 για να μετατροπή σε 1σ όπως και τα υπόλοιπα σφάλματα.

Σφάλματα SOIL7 – Επιλεγμένα Σενάρια							
Στοιχείο	Ενεργοποίηση	Ακτινοβολήση	Ανιχνευτής	Err_{Area} (%)	Err_m	Err_λ	Total Error%
Al	1h	15min	XtRa	4.121212	0.003	4	6
Mg	1h	15min	XtCSS	24.12121	0.003	2,21	24
Mn	111h	5h	XtRa	0.909091	0.003	1,5	2
K	111h	24h	XtCSS	2.363636	0.003	2,48	3
Na	111h	5h	XtCSS	1.515152	0.003	2,08	3
As	111h	144h	XtCSS	16.42424	0.003	3	17

Σφάλματα Siliceous Clay – Επιλεγμένα Σενάρια							
Στοιχείο	Ενεργοποίηση	Ακτινοβολήση	Ανιχνευτής	Err_{Area} (%)	Err_m	Err_λ	Total Error%
Al	1h	15min	XtRa	3.454545	0.002	5.89	7
Mg	1h	15min	XtCSS	14.67879	0.002	25.9	30
Mn	111h	5h	XtRa	1.272727	0.002	1.75	2
K	111h	24h	XtCSS	1.393939	0.002	3.44	4
Na	111h	5h	XtCSS	1.212121	0.002	2.6	3
As	111h	144h	XtCSS	9.515152	0.002	16.7	19

Σφάλματα Plant Celluse – Επιλεγμένα Σενάρια							
Στοιχείο	Ενεργοποίηση	Ακτινοβολήση	Ανιχνευτής	Err_{Area} (%)	Err_m	Err_λ	Total Error%
Mn	111h	5h	XtRa	2.363636	0.009	1.75	3
K	111h	24h	XtCSS	2.484848	0.009	3.44	4
Na	111h	5h	XtCSS	19.75758	0.009	2.6	20

Σφάλματα Ίζημα Λαυρίου – Επιλεγμένα Σενάρια							
Στοιχείο	Ενεργοποίηση	Ακτινοβολήση	Ανιχνευτής	Err_{Area} (%)	Err_m	Err_λ	Total Error%
Al	1h	15min	XtRa	4.727273	0.002	5.89	8
Mg	1h	15min	XtCSS	38.36364	0.002	25.9	46
Mn	111h	5h	XtRa	0.545455	0.002	1.75	2
K	111h	24h	XtCSS	2.424242	0.002	3.44	4
Na	111h	5h	XtCSS	0.545455	0.002	2.6	3
As	111h	144h	XtCSS	1.69697	0.002	16.7	17

Παράρτημα Γ

Αποτελέσματα Αξιολόγησης (z-score, u-score)

Γ.1 Αποτελέσματα αξιολόγησης για όλα τα σενάρια και γ-φάσματα για το δείγμα Clay ΡΤΝΑΤΙΑΕΑ19 (Με έντονο χρώμα οι καλύτεροι δείκτες)

Al			
Σενάριο	Ανιχνευτής	Z-score	U-score
1h+15min	XtRa	-0.2037	0.15181
	XtCSS	-1.555	1.1155

Mg					
		Mg(843.8)		Mg(1014.4)	
Σενάριο	Ανιχνευτής	Z-score	U-score	Z-score	U-score
1h+15min	XtRa	-	-	-3.6674	0.5796
	XtCSS	8.2115	5.308	-6.4155	1.0466

Mn					
		Mn(846.7)		Mn(1810.7)	
Σενάριο	Ανιχνευτής	Z-score	U-score	Z-score	U-score
1h+15min	XtRa	-0.3302	0.2366	2.1759	0.7302
	XtCSS	-0.8086	0.547	-	-
111h+1h	XtRa	0.1204	0.1168	0.8549	0.7177
	XtCSS	0.3981	0.3854	1.0123	0.7153
111h+5h	XtRa	0.0926	0.0907	0.5463	0.5003
	XtCSS	0.1667	0.1634	0.6852	0.5828
111h+24h	XtRa	0.1574	0.1529	0.3519	0.3172
	XtCSS	0.1944	0.1907	0.7963	0.6642
111h+72h	XtRa	0.1451	0.1392	0.213	0.1833
	XtCSS	0.1852	0.181	0.6605	0.5185
111h+144h	XtRa	0.2037	0.1918	0.2222	0.1847
	XtCSS	0.2099	0.2025	0.5093	0.3813

Κ			
Σενάριο	Ανιχνευτής	Z-score	U-score
111h+1h	XtRa	2.9293	0.6123
	XtCSS	3.2311	1.143
111h+5h	XtRa	2.4115	0.9768
	XtCSS	1.987	1.0552
111h+24h	XtRa	1.9122	1.1366
	XtCSS	1.2973	0.8727
111h+72h	XtRa	2.2323	1.3568
	XtCSS	1.3368	0.92
111h+144h	XtRa	1.4451	0.4987
	XtCSS	1.3259	0.6927

Να			
Σενάριο	Ανιχνευτής	Z-score	U-score
111h+1h	XtRa	0.0855	0.0772
	XtCSS	0.4409	0.3815
111h+5h	XtRa	-0.0795	0.0757
	XtCSS	0.0209	0.0197
111h+24h	XtRa	-0.3136	0.3004
	XtCSS	-0.2455	0.2342
111h+72h	XtRa	-0.225	0.2155
	XtCSS	-0.2114	0.202
111h+144h	XtRa	-0.2418	0.2314
	XtCSS	-0.2127	0.2028

As			
Σενάριο	Ανιχνευτής	Z-score	U-score
111h+5h	XtRa	-	-
	XtCSS	-0.2041	0.0509
111h+24h	XtRa	-5.6122	0.7315
	XtCSS	-2.9082	0.9292
111h+72h	XtRa	-8.2653	0.9558
	XtCSS	-2.5	0.9861
111h+144h	XtRa	-7.9592	0.7252
	XtCSS	1.4796	0.806

Γ.2 Αποτελέσματα αξιολόγησης για όλα τα σενάρια και γ-φάσματα για το δείγμα Plant PTNATIAEA19 (Με έντονο χρώμα οι καλύτεροι δείκτες)

Na			
Σενάριο	Ανιχνευτής	Z-score	U-score
111h+1h	XtRa	-0.939	0.6532
	XtCSS	-1.06	0.6883
111h+5h	XtRa	-0.737	0.6639
	XtCSS	-0.617	0.5403
111h+24h	XtRa	-0.579	0.5546
	XtCSS	-0.601	0.568
111h+72h	XtRa	-0.683	0.6471
	XtCSS	-0.612	0.5679
111h+144	XtRa	-0.732	0.6146
	XtCSS	-0.634	0.5446

Κ			
Σενάριο	Ανιχνευτής	Z-score	U-score
111h+15min	XtRa	-6.6777	0.4535
	XtCSS	-11.0019	0.9649
111h+1h	XtRa	0.7015	0.1387
	XtCSS	0.8973	0.3907
111h+5h	XtRa	0.2789	0.1497
	XtCSS	-0.0994	0.064
111h+24h	XtRa	-0.1653	0.1193
	XtCSS	-0.4582	0.3603
111h+72h	XtRa	-0.0081	0.0058
	XtCSS	-0.4479	0.3564
111h+144	XtRa	-0.3258	0.1562
	XtCSS	-0.2634	0.1767

Mn					
		Mn (846.7keV)		Mn(1810.7keV)	
Σενάριο	Ανιχνευτής	Z-score	U-score	Z-score	U-score
111h+15min	XtRa	1.1311	1.0395	-2.541	1.0536
	XtCSS	0.6885	0.6299	-	-
111h+1h	XtRa	-0.541	0.4417	-1.393	0.5953
	XtCSS	-0.607	0.4824	-2.066	0.6336
111h+5h	XtRa	-0.279	0.2514	-0.115	0.0639
	XtCSS	-0.41	0.3667	-2.557	0.9469
111h+24h	XtRa	-0.23	0.2044	-0.164	0.084
	XtCSS	-0.344	0.3089	-2	0.7248
111h+72h	XtRa	-0.623	0.5189	-0.426	0.1622
	XtCSS	-0.689	0.5955	-1.115	0.2924
111h+144h	XtRa	-0.623	0.4698	0.2951	0.0883
	XtCSS	-0.836	0.6908	-0.328	0.0724