



ΕΘΝΙΚΟ ΜΕΤΣΟΒΙΟ ΠΟΛΥΤΕΧΝΕΙΟ

ΣΧΟΛΗ ΕΦΑΡΜΟΣΜΕΝΩΝ ΜΑΘΗΜΑΤΙΚΩΝ & ΦΥΣΙΚΩΝ ΕΠΙΣΤΗΜΩΝ

ΤΟΜΕΑΣ ΦΥΣΙΚΗΣ

**ΑΝΑΠΤΥΞΗ ΠΥΡΗΝΙΚΩΝ ΤΕΧΝΙΚΩΝ
ΣΤΟΙΧΕΙΑΚΗΣ ΑΝΑΛΥΣΗΣ
ΔΕΙΓΜΑΤΩΝ ΜΕΓΑΛΟΥ ΟΓΚΟΥ**

ΔΙΔΑΚΤΟΡΙΚΗ ΔΙΑΤΡΙΒΗ

ΘΕΟΔΩΡΑΣ ΒΑΣΙΛΟΠΟΥΛΟΥ

Διπλωματούχου Σχολής Εφαρμοσμένων Μαθηματικών & Φυσικών Επιστημών ΕΜΠ

ΕΠΙΒΛΕΠΩΝ:

Ε. Ν. ΓΑΖΗΣ

Καθηγητής ΕΜΠ

ΑΘΗΝΑ, Ιούνιος 2012



ΕΘΝΙΚΟ ΜΕΤΣΟΒΙΟ ΠΟΛΥΤΕΧΝΕΙΟ

ΣΧΟΛΗ ΕΦΑΡΜΟΣΜΕΝΩΝ ΜΑΘΗΜΑΤΙΚΩΝ & ΦΥΣΙΚΩΝ ΕΠΙΣΤΗΜΩΝ

ΤΟΜΕΑΣ ΦΥΣΙΚΗΣ

ΑΝΑΠΤΥΞΗ ΠΥΡΗΝΙΚΩΝ ΤΕΧΝΙΚΩΝ ΣΤΟΙΧΕΙΑΚΗΣ ΑΝΑΛΥΣΗΣ ΔΕΙΓΜΑΤΩΝ ΜΕΓΑΛΟΥ ΟΓΚΟΥ

ΔΙΔΑΚΤΟΡΙΚΗ ΔΙΑΤΡΙΒΗ

ΘΕΟΔΩΡΑΣ ΒΑΣΙΛΟΠΟΥΛΟΥ

Διπλωματούχου Σχολής Εφαρμοσμένων Μαθηματικών & Φυσικών Επιστημών ΕΜΠ

ΤΡΙΜΕΛΗΣ ΣΥΜΒΟΥΛΕΥΤΙΚΗ ΕΠΙΤΡΟΠΗ:

1. Ε. Ν. ΓΑΖΗΣ, Καθ. ΕΜΠ (Επιβλέπων)
2. Θ. ΑΛΕΞΟΠΟΥΛΟΣ, Καθ. ΕΜΠ
3. Ι. Ε. ΣΤΑΜΑΤΕΛΑΤΟΣ, Ερευν. Α ΕΚΕΦΕ 'Δ'

ΕΠΤΑΜΕΛΗΣ ΕΞΕΤΑΣΤΙΚΗ ΕΠΙΤΡΟΠΗ:

1. Ε. Ν. ΓΑΖΗΣ, Καθ. ΕΜΠ (Επιβλέπων)
2. Θ. ΑΛΕΞΟΠΟΥΛΟΣ, Καθ. ΕΜΠ
3. Ι. Ε. ΣΤΑΜΑΤΕΛΑΤΟΣ, Ερευν. Α ΕΚΕΦΕ 'Δ'
4. Ρ. ΒΛΑΣΤΟΥ-ΖΑΝΝΗ, Καθ. ΕΜΠ
5. Μ. ΚΟΚΚΟΡΗΣ, Επικ. Καθ. ΕΜΠ
6. Π. ΜΙΣΑΗΛΙΔΗΣ, Καθ. ΑΠΘ
7. Ε. ΧΙΝΗΣ, Αν. Καθ. ΕΜΠ

ΑΘΗΝΑ, Ιούνιος 2012

Στο σύντροφό μου Μπάμπη
και στο μπέμπη μας

ΕΥΧΑΡΙΣΤΙΕΣ

Η παρούσα Διδακτορική Διατριβή εκπονήθηκε στο Εργαστήριο του Ερευνητικού Πυρηνικού Αντιδραστήρα του Ινστιτούτου Πυρηνικών & Ραδιολογικών Επιστημών & Τεχνολογίας, Ενέργειας & Ασφάλειας (Ι.Π.Ρ.Ε.Τ.Ε.Α.), πρώην Ινστιτούτο Πυρηνικής Τεχνολογίας και Ακτινοπροστασίας (Ι.Π.Τ.Α.), του ΕΚΕΦΕ ‘Δημόκριτος’ σε συνεργασία με τη Σχολή Εφαρμοσμένων Μαθηματικών & Φυσικών Επιστημών του Εθνικού Μετσόβιου Πολυτεχνείου και υπό την οικονομική υποστήριξη των υποτροφιών για Υποψήφιους Διδάκτορες του ΕΚΕΦΕ ‘Δημόκριτος’.

Ολοκληρώνοντας τη διατριβή αυτή θα ήθελα να ευχαριστήσω όλους όσους με καθοδήγησαν, με βοήθησαν και μου συμπαραστάθηκαν όλα αυτά τα χρόνια. Ιδιαίτερες ευχαριστίες οφείλω στον Ερευνητή Α του ΕΚΕΦΕ ‘Δημόκριτος’ Δρ. Ι. Ε. Σταματελάτο για την πολύτιμη επιστημονική του καθοδήγηση και την ακούραστη υποστήριξή του, για το γεγονός ότι βρισκόταν πάντα στο πλευρό μου στηρίζοντας κάθε μου βήμα. Η πορεία αυτή δε θα είχε καν ξεκινήσει χωρίς τη δική του παρότρυνση. Θερμές ευχαριστίες θα ήθελα επίσης να εκφράσω στον Καθηγητή ΕΜΠ Δρ. Ε. Ν. Γαζή για τη συνεχή βοήθεια και ενθάρρυνσή του καθώς και στον Καθηγητή ΕΜΠ Δρ. Θ. Αλεξόπουλο για τις εύστοχες υποδείξεις του.

Πολλές ευχαριστίες αξίζουν στη Δρ. Φαίδρα Τζίκα και στο ερευνητικό και επιστημονικό προσωπικό του Ινστιτούτου Πυρηνικών & Ραδιολογικών Επιστημών & Τεχνολογίας, Ενέργειας & Ασφάλειας του ΕΚΕΦΕ ‘Δημόκριτος’, χωρίς τη βοήθεια και στήριξη του οποίου θα ήταν αδύνατη η εκπόνηση αυτής της διατριβής. Ξεχωριστά ευχαριστώ όλους τους συναδέλφους του οικίσκου, που μοιράστηκαν μαζί μου αγωνίες και χαρές και έκαναν το περιβάλλον εργασίας πραγματικά απολαυστικό. Ιδιαίτερες ευχαριστίες οφείλω και στο ερευνητικό και επιστημονικό προσωπικό του Reactor Institute Delft του Πανεπιστημίου Delft της Ολλανδίας, ιδιαιτέρως στους Dr. P. Bode, Dr. M. Blaauw και Anneke Koster-Ammerlaan, για τη ζεστή φιλοξενία τους και την αμέριστη βοήθειά τους κατά τη διεξαγωγή των πειραμάτων στην Ολλανδία.

Θα ήθελα ακόμα να ευχαριστήσω τα μέλη της επταμελούς εξεταστικής επιτροπής για τη διάθεση και το χρόνο που αφιέρωσαν στη μελέτη της παρούσας εργασίας.

Τέλος, ένα μεγάλο ευχαριστώ οφείλω στους δικούς μου ανθρώπους, την οικογένειά μου και το σύντροφό μου, για την αγάπη, την υπομονή, την υλική και ηθική υποστήριξή τους όλα αυτά τα χρόνια.

ΠΕΡΙΛΗΨΗ

Σκοπός της παρούσας Διδακτορικής Διατριβής ήταν η ανάπτυξη πυρηνικών τεχνικών μη-καταστροφικής στοιχειακής ανάλυσης δειγμάτων μεγάλου όγκου, δειγμάτων δηλαδή με μάζα μερικών κιλών ή όγκο μερικών λίτρων. Πιο συγκεκριμένα, βασικός στόχος ήταν η αξιολόγηση και βελτιστοποίηση της μεθοδολογίας για την ανάλυση δειγμάτων μεγάλου όγκου με την τεχνική της ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση καθώς και η επέκταση και εφαρμογή της τεχνικής για την ανάλυση ομογενών και ανομοιογενών αντικειμένων.

Στα πλαίσια αυτά, μελετήθηκαν οι βασικές παράμετροι που διαφοροποιούν την ανάλυση μεγάλων δειγμάτων από την «κλασική», ήδη καθιερωμένη, ανάλυση μικρών σε όγκο δειγμάτων. Ιδιαίτερη έμφαση δόθηκε στις διορθώσεις που απαιτούνται για την αυτο-απορρόφηση των ακτίνων-γ και την αυτο-θωράκιση των νετρονίων στον όγκο του δείγματος. Η εργασία βασίστηκε στη λεπτομερή προσομοίωση διατάξεων ακτινοβόλησης, δειγμάτων και συστημάτων ανίχνευσης της ακτινοβολίας-γ, χρησιμοποιώντας συνδυασμό κωδίκων Monte Carlo, και τη σύγκριση των αποτελεσμάτων των προσομοιώσεων με πειραματικές μετρήσεις. Επιπλέον, το ενδιαφέρον επικεντρώθηκε στην ανάλυση ανομοιογενών δειγμάτων και στη βαθύτερη μελέτη των επιδράσεων των ανομοιογενειών στη διαδικασία της ανάλυσης. Για το σκοπό αυτό, αναπτύχθηκε τεχνική που συνδυάζει πειραματικές μετρήσεις και προσομοιώσεις πετυχαίνοντας αφ'ενός την ανίχνευση της ύπαρξης ανομοιογενειών μέσα σε ένα δείγμα μεγάλου όγκου, αφ'ετέρου τη διόρθωση της επίδρασής τους στα αποτελέσματα της ανάλυσης. Στα πλαίσια, παράλληλα, επίδειξης των δυνατοτήτων της, η τεχνική εφαρμόστηκε για την ανάλυση ανομοιογενών δειγμάτων μεγάλου όγκου και ολόκληρων αντικειμένων πολιτιστικής κληρονομιάς.

Τα αποτελέσματα της παρούσας εργασίας επέτρεψαν την ανάπτυξη μιας μη-καταστροφικής τεχνικής για την πολυστοιχειακή ανάλυση μη ομογενών δειγμάτων μεγάλου όγκου καθώς και δειγμάτων διαφορετικών γεωμετρικών σχημάτων, προσφέροντας ένα σημαντικό αναλυτικό εργαλείο με εύρος εφαρμογών σε πολλούς τομείς της επιστήμης και της τεχνολογίας όπως είναι η αρχαιομετρία και η διάσωση της πολιτιστικής κληρονομιάς, η τεχνολογία υλικών, η διαχείριση ηλεκτρονικών αποβλήτων, οι γεωλογικές και περιβαλλοντικές μελέτες.

ABSTRACT

Aim of the present study was the development of a nuclear technique for non-destructive elemental analysis of bulk objects (up to a few kg in mass or up to several L in volume). In particular, main goal of the study was the evaluation and optimization of the methodology for large sample neutron activation analysis as well as the extension and application of the technique for the analysis of homogeneous and inhomogeneous bulk objects.

The principles of large sample neutron activation analysis and the main parameters that differentiate analysis of large samples against the conventional technique of small sample analysis were studied. The work was emphasized on the required corrections for the effects of neutron self-shielding and gamma-ray self-attenuation within the sample material. The irradiation and gamma-spectrometry facilities as well as the sample geometry were simulated in detail using Monte Carlo codes and the results of the simulations were compared against experimental measurements. Furthermore, the study was focused on the analysis of large inhomogeneous samples and the evaluation of the inhomogeneity effect on the analysis results. Thus, a collimated scanning technique which combines simulations and experimental measurements was developed for the identification of inhomogeneities in large volume samples and the correction of their effect on the interpretation of gamma-spectrometry data. Additionally, the technique was applied for the analysis of bulk inhomogeneous samples and cultural heritage objects, demonstrating the great capabilities of the technique.

The results of the present study allowed the development of a non-destructive technique for multi-element analysis of non homogeneous large samples and bulk objects of irregular shapes. Moreover, they extended the capabilities of the technique, providing an important analytical tool with a wide range of applications in several fields of science and technology, such as archaeometry and cultural heritage studies, material technology, geological, environmental and waste characterization studies.

ΠΕΡΙΕΧΟΜΕΝΑ

ΕΥΧΑΡΙΣΤΙΕΣ	vii
ΠΕΡΙΛΗΨΗ	ix
ABSTRACT.....	xi
ΠΕΡΙΕΧΟΜΕΝΑ.....	xiii
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 1 ^ο – ΕΙΣΑΓΩΓΗ.....	1
1.1 Ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση	1
1.2 Βασική αρχή τεχνικής.....	2
1.3 Πλεονεκτήματα και περιορισμοί της «κλασικής» ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση	4
1.4 Ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση δειγμάτων μεγάλου όγκου	6
1.5 Σκοπός και καινοτομία της διδακτορικής διατριβής	8
1.6 Διάρθρωση εργασίας.....	9
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 2 ^ο - ΤΕΧΝΙΚΗ ANE-ΔΜΟ.....	13
2.1 Ακτινοβόληση σε πεδίο νετρονίων.....	13
2.1.1 Αλληλεπίδραση νετρονίων με την ύλη.....	13
2.1.2 Κατηγοριοποίηση νετρονίων.....	14
2.1.3 Μέση ελεύθερη διαδρομή νετρονίων	17
2.1.4 Μήκος διάχυσης θερμικών νετρονίων	18
2.2 Φασματοσκοπία ακτίνων-γ.....	19
2.2.1 Αλληλεπίδραση φωτονίων με την ύλη.....	19
2.2.2 Απόδοση ανίχνευσης ακτίνων-γ	21
2.3 Εξισώσεις υπολογισμού στοιχειακών συγκεντρώσεων.....	24
2.3.1 Εξίσωση ANE.....	24
2.3.2 Εξίσωση ANE-ΔΜΟ.....	25
2.3.3 Σχετική βαθμονόμηση	26
2.4 Διορθώσεις.....	28
2.4.1 Μεθοδολογίες διορθώσεων.....	30
2.4.2 Εφαρμογή μεθόδου διορθώσεων	32
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 3 ^ο - ΠΕΙΡΑΜΑΤΙΚΕΣ ΔΙΑΤΑΞΕΙΣ	39
3.1 Πειραματική διάταξη ΕΚΕΦΕ ‘Δημόκριτος’	39
3.1.1 Διάταξη ακτινοβόλησης.....	39
3.1.2 Διάταξη ανίχνευσης ακτινοβολίας-γ.....	43
3.2 Πειραματική διάταξη RID, Delft, Ολλανδία	45
3.2.1 Διάταξη ακτινοβόλησης.....	45
3.2.2 Διάταξη ανίχνευσης ακτινοβολίας-γ.....	48
3.3 Κριτική σύγκριση διατάξεων GRR-1 & RID	50

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 4 ^ο - ΠΡΟΣΟΜΟΙΩΣΕΙΣ MONTE-CARLO.....	53
4.1 Η τεχνική προσομοίωσης Monte Carlo	53
4.2 Ο κώδικας MCNP.	57
4.3 Ο κώδικας PENELOPE.	58
4.4 Μοντελοποίηση πειραματικών διατάξεων.....	59
4.4.1 Μοντελοποίηση της διάταξης ακτινοβολήσης	60
4.4.2 Μοντελοποίηση της ανιχνευτικής διάταξης	60
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 5 ^ο – ΜΕΛΕΤΗ ΑΝΟΜΟΙΟΓΕΝΕΙΩΝ.....	67
5.1 Πειραματική διαδικασία.	68
5.1.1 Προετοιμασία δείγματος.....	68
5.1.2 Ακτινοβολήση δείγματος.	69
5.1.3 Ανίχνευση ακτινοβολίας δείγματος.	70
5.1.4 Στοιχειακή ανάλυση των υλικών του δείγματος (μέσω ANE)	72
5.1.5 Προσομοιώσεις	73
Α. Νετρόνια	73
Β. Φωτόνια.....	75
5.1.6 Αποτελέσματα.....	77
5.1.6.1 Συντελεστές διόρθωσης f_n	77
5.1.6.1 Συντελεστές διόρθωσης f_γ	77
5.1.6.3 Στοιχειακή ανάλυση.....	80
5.1.7. Συζήτηση και συμπεράσματα.	83
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 6 ^ο – ΑΝΑΠΤΥΞΗ & ΒΕΛΤΙΣΤΟΠΟΙΗΣΗ ΤΕΧΝΙΚΗΣ.....	85
6.1 Μέθοδος.....	86
6.1.1 Πειραματική διαδικασία	86
6.1.2 Προσομοιώσεις	89
6.2 Αποτελέσματα.....	90
6.2.1 Διακριτική ικανότητα κατευθυντήρα.....	90
6.2.2 Σάρωση μεγάλου δείγματος.....	92
6.2.3 Συντελεστές διόρθωσης	95
6.3 Συμπεράσματα - συζήτηση	98
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 7 ^ο – ΕΦΑΡΜΟΓΗ ΤΗΣ ΤΕΧΝΙΚΗΣ	101
7.1 Η ANE-ΔΜΟ στη μελέτη της πολιτιστικής κληρονομιάς.....	101
7.2 Ανάλυση κεραμικού αγγείου	102
7.2.1 Πειραματική διαδικασία	103
7.2.1.1 Ακτινοβολήση δείγματος.....	103
7.2.1.2 Ανίχνευση ακτινοβολίας δείγματος	104
7.2.1.3 Στοιχειακή ανάλυση των υλικών του δείγματος (μέσω ANE)	106
7.2.1.4 Προσομοιώσεις	106
Α. Νετρόνια	107
Β. Φωτόνια.....	107
7.2.1.5 Ραδιολογικός έλεγχος δείγματος.....	108
7.2.2 Αποτελέσματα.....	110
7.2.2.1 Συντελεστές διόρθωσης f_n	110
7.2.2.2 Συντελεστές διόρθωσης f_γ	110
7.2.2.3 Στοιχειακή ανάλυση.....	112
7.2.2.4 Ραδιολογικός έλεγχος δείγματος.....	114
7.2.3 Συμπεράσματα - συζήτηση	115

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 8 ^ο – ΓΕΝΙΚΗ ΣΥΖΗΤΗΣΗ	117
8.1 Πλεονεκτήματα της ετχνικής	117
8.2 Διατάξεις ANE-ΔΜΟ	119
8.3 Εφαρμογές της ANE-ΔΜΟ.....	123
8.4 Συμβολή της παρούσας εργασίας στην εξέλιξη της ANE-ΔΜΟ.....	125
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 9 ^ο - ΣΥΜΠΕΡΑΣΜΑΤΑ	129
9.1 Ανακεφαλαίωση.....	129
9.2 Τελικά συμπεράσματα - Προοπτικές.....	131
ΒΙΒΛΙΟΓΡΑΦΙΑ	133
ΚΑΤΑΛΟΓΟΣ ΔΗΜΟΣΙΕΥΣΕΩΝ.....	143
ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Α.....	145
A.1 Πειραματικός υπολογισμός απόδοσης.....	145
A.1.1 Υπολογισμός αποδόσεων.....	145
A.1.2 Υπολογισμός σφαλμάτων	149
A.2 Στατιστικός έλεγχος Z-score.....	152
A.3 Ελάχιστα όρια ανίχνευσης	153
ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Β.....	156
B.1 Πιστοποιητικό ανιχνευτή GEM 80 εργαστηρίου ΙΠΤ-Α	156
B.2 Πιστοποιητικό ανιχνευτή GEM 90210-P εργαστηρίου RID.....	157
ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Γ	158
Γ.1 Δομή κώδικα MCNP	158
Γ.1.1 Αρχείο εισόδου	158
Γ.1.2 Εικονικοί ανιχνευτές.....	162
Γ.1.3 Γραφικό πρόγραμμα Vised.....	163
Γ.1.4 Αρχείο εξόδου	164
Γ.2 Δομή κώδικα PENELOPE.....	165
Γ.2.1 Αρχεία εισόδου	165
Γ.2.2 Εικονικοί ανιχνευτές.....	169
Γ.2.3 Γραφικά προγράμματα gview.....	170
Γ.2.4 Αρχείο εξόδου	173
Γ.3 Μελέτη αξιοπιστίας και σύγκλισης κωδίκων Monte Carlo.....	176
ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Δ	177
Δ.1 Πιστοποιητικό σύστασης υλικού SRM 1258 - I	177
Δ.2 Πιστοποιητικό σύστασης υλικού Quartz.....	181
ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Ε	182
E.1 Ενεργειακό φάσμα ακτίνων-γ από την ανάλυση του ανομοιογενούς δείγματος αναφοράς.....	183
E.2 Ενεργειακό φάσμα ακτίνων-γ από την ανάλυση του κεραμικού αγγείου.....	184

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 1^ο – ΕΙΣΑΓΩΓΗ

1.1 Ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση

Η ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση - ANE (Neutron Activation Analysis-NAA) είναι μια πυρηνική αναλυτική τεχνική, η οποία επιτρέπει τον ταυτόχρονο προσδιορισμό πολλών στοιχείων σε πλήθος δειγμάτων.

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 [Hevesy & Levi (1936)]. 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 [Parry (2003)].

Η διαδικασία περιλαμβάνει την ακτινοβόληση του δείγματος σε πεδίο νετρονίων, τη 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.

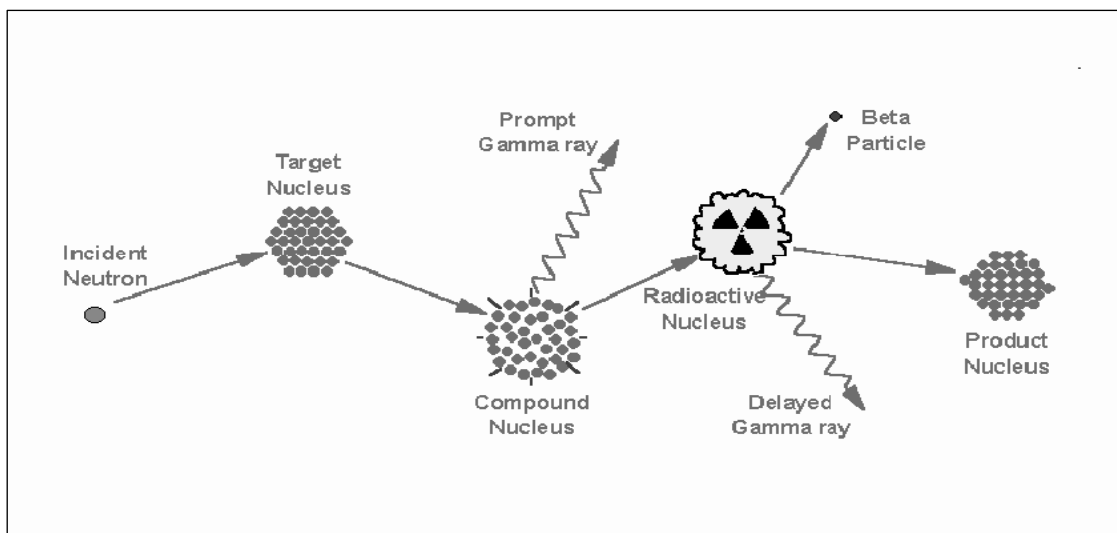
Η εφαρμογή της μεθόδου προϋποθέτει αφ' ενός την ύπαρξη πηγής νετρονίων και κατάλληλου ανιχνευτή γ-ακτινοβολίας, αφ' ετέρου τη λεπτομερή γνώση των πυρηνικών αντιδράσεων των νετρονίων με τα στοιχεία του υπό ανάλυση δείγματος.

Οι πηγές νετρονίων που είναι σήμερα διαθέσιμες (πυρηνικοί αντιδραστήρες, επιταχυντές, ισοτοπικές πηγές) μπορούν να χρησιμοποιηθούν για ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση. Ωστόσο, οι υψηλές ροές νετρονίων που συναντώνται στους πυρηνικούς αντιδραστήρες σχάσης έχουν σαν αποτέλεσμα να επιτυγχάνεται στους αντιδραστήρες η καλύτερη δυνατή ευαισθησία της μέτρησης.

1.2 Βασική αρχή τεχνικής

Η ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση βασίζεται στην ανίχνευση της ακτινοβολίας που εκπέμπεται από υλικά τα οποία βομβαρδίζονται με νετρόνια. Πυρηνικές αντιδράσεις που λαμβάνουν χώρα στο υπο ανάλυση δείγμα έχουν σαν αποτέλεσμα την παραγωγή ραδιοϊσοτόπων που εκπέμπουν ακτίνες- γ . Η επεξεργασία του φάσματος της εκπεμπόμενης από το ραδιενεργό δείγμα ακτινοβολίας- γ παρέχει πληροφορίες για τα αντιδρώντα στοιχεία καθώς και για την ποσότητα των στοιχείων αυτών στο δείγμα.

Μια τυπική πυρηνική αντίδραση που συχνά χρησιμοποιείται στην ANE είναι η σύλληψη θερμικού νετρονίου (neutron capture) από πυρήνα-στόχο, ακολουθούμενη από εκπομπή ακτινοβολίας- γ [(n, γ)]. Η διαδικασία μιας τέτοιας αντίδρασης φαίνεται στο Σχήμα 1.1.



Σχήμα 1.1 Αναπαράσταση σύλληψης νετρονίου από πυρήνα-στόχο

Όπως φαίνεται στο Σχήμα 1.1, το νετρόνιο αλληλεπιδρά με τον πυρήνα-στόχο με μια μη-ελαστική σκέδαση, με αποτέλεσμα τη σύλληψή του από τον πυρήνα και το σχηματισμό ενός «σύνθετου», διεγερμένου πυρήνα. Η ενέργεια διεγέρσεως του «σύνθετου» πυρήνα οφείλεται στην ενέργεια συνδέσεως του νετρονίου με τον πυρήνα. Ο -παραγόμενος από τη νετρονική σύλληψη- «σύνθετος» διεγερμένος πυρήνας σε χρονικό διάστημα της τάξης των 10^{-12} sec αποδιεγείρεται προς μια σταθερότερη κατάσταση. Η αποδιέγερση αυτή συνοδεύεται από εκπομπή μίας ή

περισσότερων «άμεσων» ακτίνων-γ (prompt gamma rays), χαρακτηριστικών του πυρήνα.

Σε πολλές περιπτώσεις, η κατάσταση προς την οποία αποδιεγείρεται ο «σύνθετος» πυρήνας έχει σαν αποτέλεσμα το σχηματισμό ενός ραδιενεργού πυρήνα, ο οποίος με τη σειρά του αποδιεγείρεται (διασπάται) εκπέμποντας μία ή περισσότερες «καθυστερημένες» ακτίνες-γ (delayed gamma rays), επίσης χαρακτηριστικές του πυρήνα. Η εκπομπή αυτών των ακτίνων-γ (οι οποίες ονομάζονται «καθυστερημένες» σε αντιδιαστολή με τις «άμεσες» που προκύπτουν από την πρώτη αποδιέγερση) γίνεται με ρυθμό και με χρόνο ημιζωής που είναι χαρακτηριστικός του ραδιενεργού πυρήνα. Ανάλογα με το στοιχείο, οι χρόνοι ημιζωής ποικίλλουν από κλάσματα του δευτερολέπτου έως αρκετά χρόνια [Reus & Westmeier (1983)].

Με κριτήριο τη χρονική διάρκεια μετά το πέρας της ακτινοβόλησης που μεσολαβεί έως ότου πραγματοποιηθούν οι μετρήσεις της ακτινοβολίας-γ, η ANE διακρίνεται σε δύο κατηγορίες:

- α) αυτή της ανάλυσης των «άμεσα» εκπεμπόμενων ακτίνων-γ (Prompt Gamma-ray Neutron Activation Analysis - PGNA), όπου οι μετρήσεις πραγματοποιούνται ταυτόχρονα με την ακτινοβόληση, και
- β) αυτή της ανάλυσης των «καθυστερημένων» ακτίνων-γ (Delayed Gamma-ray Neutron Activation Analysis - DGNA), όπου οι μετρήσεις γίνονται μετά το πέρας της ακτινοβόλησης.

Επισημαίνεται ότι η μέθοδος που χρησιμοποιήθηκε στα πλαίσια της παρούσας εργασίας είναι αυτή της ανάλυσης των «καθυστερημένων» ακτίνων-γ.

Οι δυνατότητες πυρηνικής ανάλυσης δεν περιορίζονται, ωστόσο, στις αντιδράσεις σύλληψης νετρονίων. Ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση μπορεί επίσης να πραγματοποιηθεί χρησιμοποιώντας νετρόνια μεγαλύτερων ενεργειών, με ενέργεια δηλαδή ικανή να προκαλέσει πυρηνικές αντιδράσεις. Συνεπώς, η τεχνική της νετρονικής ενεργοποίησης μπορεί να χρησιμοποιηθεί σε όλο το φάσμα των παρεχόμενων νετρονίων: θερμικά, επιθερμικά και ταχεία (η κατηγοριοποίησή τους παρουσιάζεται αναλυτικά σε επόμενο Κεφάλαιο).

1.3 Πλεονεκτήματα και περιορισμοί της «κλασικής» ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση

Η ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση είναι μια μέθοδος με σημαντικά πλεονεκτήματα. Απαιτεί ελάχιστη προετοιμασία του δείγματος, μειώνοντας έτσι την πιθανότητα «μόλυνσης» ή αλλοίωσής του κατά την παραμονή του στο εργαστήριο. Επιπλέον, πρόκειται για μια μη-καταστροφική τεχνική, πράγμα που σημαίνει ότι το υπό ανάλυση δείγμα, εφόσον δεν καταστρέφεται κατά τη μέτρηση, μπορεί να ξαναχρησιμοποιηθεί και σε επόμενα πειράματα. Παρουσιάζει ταυτόχρονα πολύ υψηλή ακρίβεια, αξιοπιστία και επαναληψιμότητα. Ανάλογα με το υλικό στο οποίο γίνεται η μέτρηση, η ευαισθησία της τεχνικής μπορεί να φτάσει και την τάξη των parts per billion (ppb) [Bode (1996), Glascock (1996), Parry (2003)]. Στον Πίνακα 1.1 παρουσιάζονται ενδεικτικά οι τιμές των ορίων ανίχνευσης για μια σειρά στοιχείων που ανιχνεύονται με την «κλασική» ANE, θεωρώντας ακτινοβολήση σε πεδίο νετρονίων με ροή $10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ [Orvini & Speziali (1998)]. 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 ANE [Parry (1991), Glascock (1996)].

Ευαισθησία ANE (picograms)	Στοιχείο
1	Dy, Eu
1–10	In, Lu, Mn
10–100	Au, Ho, Ir, Re, Sm, W
100–1000	Ag, Ar, As, Br, Cl, Co, Cs, Cu, Er, Ga, Hf, I, La, Sb, Sc, Se, Ta, Tb, Th, Tm, U, V, Yb
1E3–1E4	Al, Ba, Cd, Ce, Cr, Hg, Kr, Gd, Ge, Mo, Na, Nd, Ni, Os, Pd, Rb, Rh, Ru, Sr, Te, Zn, Zr
1E4–1E5	Bi, Ca, K, Mg, P, Pt, Si, Sn, Ti, Tl, Xe, Y
1E5–1E6	F, Fe, Nb, Ne
1E7	Pb, S

Πίνακας 1.1 Εκτιμώμενα Όρια Ανίχνευσης για στοιχεία που προσδιορίζονται με χρήση της ANE, υποθέτοντας ακτινοβολήση σε πεδίο νετρονίων με ροή $10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$

Τα ποικίλα πλεονεκτήματά της ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση ευθύνονται και για το πλήθος των εφαρμογών της. Η τεχνική έχει βρει εφαρμογές στη γεωλογία, εδαφολογία [Benedik & Byrne (1995), Cabrerra et al. (2000)], αρχαιολογία, αρχαιομετρία [Blum (1994), Forsyth (1994), Grimanis et al. (1997)], αλλά και στη βιομηχανία, τεχνολογία νέων υλικών, κεραμικών, ημιαγωγών [Grasserbauer et al. (1985)]. Έχει ακόμα χρησιμοποιηθεί στη βιολογία, ιατροδικαστική, βιοϊατρική [Stamatelatos et al. (1999), Rulon et al. (2000)], σε βιοχημικές και τοξικολογικές μελέτες [Stone et al. (1994), Zaichick & Tzaphlidou (2002)]. Εκτεταμένα επίσης εφαρμόζεται στη μελέτη του περιβάλλοντος [Misaelides et al. (1989), Orvini et al. (2000), Steinnes (2000)], καθώς και στην πιστοποίηση προτύπων υλικών αναφοράς (Standard Reference Materials – SRM) [Kucera et al. (1997), Ihnat (2000)].

Παρ'όλα αυτά, η χρήση της «συμβατικής» τεχνικής ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση έχει και κάποιους περιορισμούς. Με τη «συμβατική» τεχνική 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 που μπορεί να αναλυθεί με την «κλασική» μέθοδο, 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 ομογενοποίηση του δείγματος.

Σε πολλές συνεπώς μελέτες και εφαρμογές, είναι αναγκαία η ανάλυση ολόκληρων αντικειμένων μεγάλου όγκου [Bode et al. (1997), IAEA (2005)]. 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 Δειγμάτων Μεγάλου Ογκού – ANE-ΔΜΟ (Large Sample Neutron Activation Analysis - LSNA).

1.4 Ανάλυση με Νετρονική Ενεργοποίηση Δειγμάτων Μεγάλου Όγκου

Η Ανάλυση με Νετρονική Ενεργοποίηση Δειγμάτων Μεγάλου Ογκού (ANE-ΔΜΟ) αποτελεί μια σημαντική αναλυτική μέθοδο, που συνδυάζει τον πολυστοιχειακό και ταυτόχρονα μη-καταστροφικό χαρακτήρα της «κλασικής» ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση με τη δυνατότητα ανάλυσης αντικειμένων μεγάλου όγκου. Βασισμένη στη μεγάλη διεισδυτική ικανότητα νετρονίων και ακτίνων- γ , των οποίων η μέση ελεύθερη διαδρομή (Mean Free Path - MFP) μέσα στα διάφορα υλικά είναι της τάξης των μερικών εκατοστών, η τεχνική επιτρέπει τη μη-καταστροφική ανάλυση μεγάλων δειγμάτων (με όγκο έως και αρκετά λίτρα) [Bode & Overwater (1993), Lin & Henkelmann (2002)], παρουσιάζοντας πολλά πλεονεκτήματα και πληθώρα καινοτόμων εφαρμογών.

Πρώτα και κύρια, εφ'όσον τα αντικείμενα εξετάζονται ολόκληρα και δεν απαιτείται δειγματοληψία επιμέρους τμημάτων του υλικού, παρέχεται η δυνατότητα ανάλυσης πολύτιμων αντικειμένων από τα οποία δεν επιτρέπεται να αποσπαστούν μικρά ή μεγαλύτερα τμήματα για αναλυτικούς λόγους. Μοναδικά έργα τέχνης, αρχαιολογικά ευρήματα και πολιτιστικά κειμήλια μπορούν να μελετηθούν χωρίς να καταστραφούν ή αλλοιωθούν. Η διασφάλιση της ακεραιότητας των αντικειμένων, πέρα από την προφανή αξία που έχει στις περιπτώσεις πολύτιμων υλικών, εξασφαλίζει ταυτόχρονα τη δυνατότητα επανάληψης της ανάλυσης εφ'όσον κάτι τέτοιο κριθεί απαραίτητο. Η τεχνική της ANE-ΔΜΟ παρουσιάζει συγκριτικό πλεονέκτημα και στην ανάλυση ανομοιογενών δειγμάτων, καθώς προβλήματα που σχετίζονται με την αντιπροσωπευτικότητα της δειγματοληψίας ή την ομοιογένεια του υλικού και συχνά δυσκολεύουν την ανάλυση τέτοιων δειγμάτων, ξεπερνιούνται ή ελαχιστοποιούνται αφού το ανομοιογενές δείγμα αναλύεται ολόκληρο. Επιπλέον, η

χρήση της συγκεκριμένης τεχνικής επιτρέπει την αξιοποίηση πειραματικών εγκαταστάσεων με σχετικά χαμηλές ροές νετρονίων (της τάξης των 10^6 - 10^9 $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$) στις θέσεις ακτινοβολήσης, δεδομένου ότι η «απώλεια» στη νετρονική ροή αντισταθμίζεται από τη μεγαλύτερη μάζα του υλικού. Συνεπώς, για την εφαρμογή της ANE-ΔΜΟ μπορούν να χρησιμοποιηθούν μικρής και μέσης ισχύος πυρηνικοί αντιδραστήρες, θερμικές στήλες αντιδραστήρων αλλά και διατάξεις ακτινοβολήσης εκτός πυρηνικών αντιδραστήρων, όπως οι ισοτοπικές πηγές νετρονίων ή οι «γεννήτριες» νετρονίων (neutron generators). Επιπρόσθετα, το γεγονός ότι η ακτινοβολήση του μεγάλου δείγματος πραγματοποιείται σε ροές χαμηλότερες από αυτές που χρησιμοποιούνται στην «κλασική» ανάλυση μικρών δειγμάτων (π.χ. 10^7 cm^{-2} s^{-1} έναντι 10^{13} cm^{-2} s^{-1} αντίστοιχα), εξασφαλίζει ότι η παραμένουσα ειδική ενεργότητα στο υπό μελέτη δείγμα είναι μικρή, άρα σε σύντομο χρονικό διάστημα επιτρέπεται η απομάκρυνσή του από την επιβλεπόμενη περιοχή και το ρυθμιστικό έλεγχο ραδιενεργών υλικών χωρίς καμία περαιτέρω ανησυχία για τα επίπεδα ενεργότητας [IAEA (2005)].

Οι βασικές αρχές από πλευράς φυσικής που διέπουν την ANE-ΔΜΟ είναι ταυτόσημες με αυτές που αφορούν στην «κλασική» ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση, με μόνη αλλά σημαντική διαφοροποίηση το στοιχείο του μεγάλου όγκου των υπό μελέτη αντικειμένων. Το γεγονός αυτό συνεπάγεται μια σειρά τροποποιήσεων που χρειάζεται να γίνουν, προκειμένου να είναι δυνατός ο ακριβής προσδιορισμός της ποιοτικής και ποσοτικής σύστασης του δείγματος. Οι διορθώσεις αυτές αφορούν κυρίως στην αλληλεπίδραση των νετρονίων και φωτονίων μέσα στον όγκο του υλικού, την ανομοιογένεια και ασυμμετρία του αντικειμένου. Διακρίνονται δε σε αυτές που σχετίζονται με τη διαδικασία της ακτινοβολήσης του μεγάλου δείγματος και σε αυτές που σχετίζονται με τη διαδικασία ανίχνευσης της ραδιενέργειάς του στις διατάξεις γ-φασματοσκοπίας. Και οι δύο κατηγορίες διορθώσεων αποτέλεσαν αντικείμενο μελέτης της παρούσας διατριβής και παρουσιάζονται αναλυτικά σε επόμενο Κεφάλαιο.

Χάρη στη δυνατότητα ανάλυσης ολόκληρων αντικειμένων, η ANE-ΔΜΟ έχει αποκτήσει σημαντική θέση ανάμεσα στις διάφορες αναλυτικές τεχνικές υπερτερόντας, ίσως, έναντι αρκετών από αυτές, καθώς στην πλειοψηφία τους οι καθιερωμένες μη-καταστροφικές μέθοδοι, όπως για παράδειγμα η ανάλυση μέσω φθορισμού ακτίνων-X (X-Ray Fluorescence-XRF) ή η εκπομπή ακτίνων-X λόγω σύλληψης σωματιδίων (Particle Induced X-ray Emission-PIXE), μπορούν να

αναλύσουν μόνο επιφανειακά στρώματα του δείγματος, άρα παρέχουν περιορισμένη πληροφορία για τη σύσταση του υλικού στο εσωτερικό του αντικειμένου (σε βάθος). Επιπλέον, η ANE-ΔΜΟ δεν επηρεάζεται όπως άλλες τεχνικές από τυχόν στοιχειακές μεταβολές που προκαλούνται στην επιφάνεια του δείγματος, λόγω π.χ. εναπόθεσης ιζήματος κ.α., αφού η πληροφορία της ανάλυσης προέρχεται από το συνολικό όγκο του αντικειμένου και όχι μόνο από τα επιφανειακά στρώματά του. Σημαντικό πλεονέκτημα παρουσιάζει, εξάλλου, έναντι και της Ανάλυσης με Φωτονική Ενεργοποίηση (Photon Activation Analysis - PAA), καθώς διαθέτει υψηλότερη ευαισθησία λόγω της υψηλής τιμής της ενεργού διατομής ενεργοποίησης με νετρόνια σε σύγκριση με τις αντίστοιχες διατομές των φωτονίων.

Οι ποικίλες δυνατότητες και τα συγκριτικά πλεονεκτήματα που διαθέτει η τεχνική της ANE-ΔΜΟ έχουν οδηγήσει σε μια σειρά νέων, μοναδικών εφαρμογών. Στις περισσότερες των περιπτώσεων, οι αναλύσεις αφορούν ανομοιογενή υλικά που είτε είναι πολύ δύσκολο έως αδύνατο να ομογενοποιηθούν προκειμένου να μελετηθούν είτε ο σκοπός της ανάλυσης δεν επιτρέπει την κονιορτοποίηση ή την ανάμιξη των διαφόρων συστατικών. Ανάμεσα στα παραδείγματα καινοτόμων εφαρμογών που ξεχωρίζουν συγκαταλέγονται οι μελέτες προσδιορισμού της προέλευσης αρχαιολογικών ευρημάτων [Faria et al. (2009)], οι αναλύσεις τμημάτων μετεωριτών [Islam et al. (2011), Ebihara (2012)] καθώς και οι μελέτες για τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης μιας σειράς στοιχείων σε έμβιους οργανισμούς [Kasviki et al. (2007)].

1.5 Σκοπός και καινοτομία της διδακτορικής διατριβής

Η προοπτική καινοτόμων εφαρμογών της ANE-ΔΜΟ έχει συγκεντρώσει το επιστημονικό ενδιαφέρον της κοινότητας των πειραματικών πυρηνικών αναλυτών, γεγονός που αποδεικνύεται και από την αλματώδη αύξηση στο πλήθος μελετών που έχουν δημοσιευτεί τα τελευταία χρόνια. Οι περισσότερες από τις εργασίες αυτές αφορούν στη μελέτη των βασικών παραμέτρων που διαφοροποιούν την ANE-ΔΜΟ από την «κλασική», ήδη καθιερωμένη ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση και την εφαρμογή της τεχνικής σε περιπτώσεις μεγάλων αντικειμένων. Αλγόριθμοι διόρθωσης έχουν εξαχθεί για τον υπολογισμό της αυτοαπορρόφησης ακτίνων-γ και θερμικών νετρονίων σε μακροσκοπικά ομογενή δείγματα [Τζίκα (2005)]. Οι

Overwater & Bode (1998) καθώς και οι Tzika et al (2007) εκτίμησαν την επίπτωση των ανομοιογενειών στην ακρίβεια της μέτρησης. Επιπλέον, έχουν αναπτυχθεί μέθοδοι για τον προσδιορισμό των χωρικών κατανομών των στοιχείων στο δείγμα [Baas (2004), Degenaar (2004)].

Σκοπός της παρούσας Διδακτορικής Διατριβής είναι η ανάπτυξη μιας πυρηνικής τεχνικής για τη στοιχειακή ανάλυση μεγάλων δειγμάτων, δειγμάτων δηλαδή με μάζα μερικών κιλών ή όγκο μερικών λίτρων (σε περίπτωση υγρών). Πιο συγκεκριμένα, βασικός στόχος είναι η αξιολόγηση και βελτιστοποίηση της μεθοδολογίας που έχει αναπτυχθεί στο εργαστήριο του ερευνητικού πυρηνικού αντιδραστήρα του ΕΚΕΦΕ 'Δημόκριτος' για την ανάλυση δειγμάτων μεγάλου όγκου καθώς και η επέκταση και εφαρμογή της τεχνικής για την ανάλυση ομογενών και ανομοιογενών αντικειμένων. Ζητούμενο είναι η μελέτη και αξιολόγηση των μεθόδων προσδιορισμού των διορθώσεων που απαιτούνται στην ANE-ΔΜΟ, με έμφαση στις διορθώσεις που αφορούν στην αυτο-απορρόφηση των ακτίνων-γ και στην αυτο-θωράκιση των νετρονίων στον όγκο του δείγματος, καθώς και η βαθύτερη μελέτη των επιδράσεων των ανομοιογενειών στην ανάλυση του δείγματος. Τελικά, προσβλέπεται, κατόπιν αξιολόγησης των μεθόδων προσδιορισμού αυτο-απορρόφησης της ροής θερμικών νετρονίων και απόδοσης ακτινοβολίας-γ για τα δείγματα μεγάλου όγκου, η επέκταση της μεθόδου ώστε να μπορεί να καλύψει τις ανάγκες ανάλυσης ανομοιογενών υλικών και δειγμάτων διαφορετικών γεωμετρικών σχημάτων. Επομένως, τα αποτελέσματα της παρούσας εργασίας θα επιτρέψουν την εφαρμογή της τεχνικής της νετρονικής ενεργοποίησης στην ανάλυση πολύτιμων αντικειμένων πολιτιστικής κληρονομιάς και ανομοιογενών υλικών, όπως τα ηλεκτρονικά κατάλοιπα και άλλα υλικά περιβαλλοντικού ενδιαφέροντος, συμβάλλοντας με αυτόν τον τρόπο στην διεύρυνση των αναλυτικών εργαλείων που διαθέτουμε σήμερα για τη μη-καταστροφική μελέτη υλικών.

1.6 Διάρθρωση εργασίας

Την εισαγωγή στο αντικείμενο και το σκοπό της Διδακτορικής Διατριβής (ΔΔ) που περιέχεται στο 1^ο Κεφάλαιο, ακολουθεί στο 2^ο Κεφάλαιο η αναλυτική περιγραφή της τεχνικής της Ανάλυσης με Νετρονική Ενεργοποίηση Δειγμάτων Μεγάλου Όγκου (ANE-ΔΜΟ) καθώς και οι αντίστοιχες εξισώσεις για τον

υπολογισμό στοιχειακών συγκεντρώσεων και μαζών. Παρουσιάζονται εκτενώς οι διαδικασίες ακτινοβολήσης του μεγάλου δείγματος σε πεδίο νετρονίων και ανίχνευσης της ακτινοβολίας- γ σε κατάλληλες ανιχνευτικές διατάξεις. Αναλύονται στη συνέχεια, οι διορθώσεις που απαιτούνται στην ANE- Δ ΜΟ και τα φυσικά φαινόμενα που αυτές οι διορθώσεις εκφράζουν. Γίνεται επίσης συνοπτική ανασκόπηση των μεθοδολογιών διόρθωσης που έχουν προταθεί και κριτική σύγκριση με τη μεθοδολογία που εφαρμόζεται στα πλαίσια της παρούσας $\Delta\Delta$.

Στο 3^ο Κεφάλαιο παρουσιάζονται αναλυτικά οι πειραματικές εγκαταστάσεις που χρησιμοποιήθηκαν για τους σκοπούς της $\Delta\Delta$, οι οποίες περιλαμβάνουν διατάξεις ακτινοβολήσης και αντίστοιχες διατάξεις φασματοσκοπίας- γ κατάλληλες για δείγματα μεγάλου όγκου. Περιγράφονται ακόμα τα πλεονεκτήματα και οι δυνατότητες -από τη σκοπιά των εφαρμογών- της κάθε διάταξης.

Η τεχνική Monte Carlo και οι κώδικες προσομοίωσης που χρησιμοποιήθηκαν στην παρούσα $\Delta\Delta$ παρουσιάζονται αναλυτικά στο 4^ο Κεφάλαιο. Περιγράφεται η διαδικασία μοντελοποίησης των πειραματικών διατάξεων και εκτέλεσης των προσομοιώσεων και συζητούνται τα πλεονεκτήματα της χρήσης προσομοιώσεων.

Το 5^ο Κεφάλαιο πραγματεύεται τη μελέτη μη ομογενών δειγμάτων και τους περιορισμούς στην ακρίβεια και αξιοπιστία της τεχνικής που συνεπάγεται η ύπαρξη ανομοιογενειών στο υπό ανάλυση δείγμα. Στο Κεφάλαιο αυτό αναδεικνύεται η ανάγκη για εκτενή μελέτη της επίδρασης των ανομοιογενειών έτσι ώστε να είναι δυνατή η χρήση της τεχνικής της ANE- Δ ΜΟ και σε περιπτώσεις ανομοιογενών υλικών. Επιδεικνύονται τέλος οι δυνατότητες εφαρμογής της τεχνικής στην ανάλυση ενός ανομοιογενούς δείγματος αναφοράς.

Στο 6^ο Κεφάλαιο περιγράφεται η ανάπτυξη και βελτιστοποίηση της τεχνικής για την ανάλυση ανομοιογενών υλικών μέσω της εισαγωγής της τεχνικής της κατευθυνόμενης σάρωσης (collimated scanning) κατά τη διαδικασία μέτρησης της ακτινοβολίας του μεγάλου δείγματος. Η μεθοδολογία που αναπτύχθηκε στα πλαίσια της $\Delta\Delta$ επιτρέπει την ανίχνευση και τον προσδιορισμό της ανομοιογενούς κατανομής ενεργότητας στον όγκο του δείγματος ενώ συνδυάζει τα πειραματικά δεδομένα με προσομοιώσεις Monte Carlo προκειμένου να επιτευχθεί διόρθωση της επίδρασης της ανομοιογενούς κατανομής στην επεξεργασία των αποτελεσμάτων της γ -φασματοσκοπίας. Την αναλυτική περιγραφή της νέας τεχνικής, ακολουθεί η πειραματική επιβεβαίωσή της στην περίπτωση ανομοιογενούς δείγματος αναφοράς.

Η εφαρμογή της ANE-ΔΜΟ στη μελέτη της πολιτιστικής κληρονομιάς περιέχεται στο 7^ο Κεφάλαιο, όπου παρουσιάζεται η ανάλυση ενός αγγείου που αναπαριστά αρχαιοελληνικό αμφορέα. Αναδεικνύονται τα συγκριτικά πλεονεκτήματα και οι μοναδικές δυνατότητες αξιοποίησης της τεχνικής για τη μελέτη υλικών μεγάλης πολιτιστικής και οικονομικής σημασίας.

Το 8^ο Κεφάλαιο περιλαμβάνει τη γενική συζήτηση πάνω στα πλεονεκτήματα, τις επιτυχίες και τις εφαρμογές της ANE-ΔΜΟ σε μια σειρά τομείς. Γίνεται κριτική ανασκόπηση των πειραματικών διατάξεων και εργασιών άλλων ερευνητικών ομάδων που ασχολούνται με την ανάλυση μεγάλων δειγμάτων.

Η κριτική εξέταση των αποτελεσμάτων της παρούσας εργασίας και τα τελικά συμπεράσματα της ΔΔ παρουσιάζονται στο 9^ο Κεφάλαιο, όπου παρατίθενται και προτάσεις σχετικά με τις μελλοντικές προοπτικές αξιοποίησης της τεχνικής.

Η ΔΔ ολοκληρώνεται με την καταγραφή της βιβλιογραφίας, τον κατάλογο των δημοσιεύσεων και μία σειρά από Παραρτήματα, στα οποία παρατίθενται τα μαθηματικά εργαλεία που χρησιμοποιήθηκαν, συμπληρωματικοί πίνακες, πιστοποιητικά πηγών-ανιχνευτών, ενδεικτικά φάσματα, επιπλέον πληροφορίες σχετικά με τη δομή και τις δυνατότητες των κωδίκων προσομοίωσης καθώς και μια μελέτη σχετικά με την αξιοπιστία και τη σύγκλιση των διαφόρων κωδίκων προσομοίωσης.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 2^ο –ΤΕΧΝΙΚΗ ΑΝΕ-ΔΜΟ

2.1 Ακτινοβόληση σε πεδίο νετρονίων

Η διαδικασία ακτινοβόλησης του μεγάλου δείγματος σε πεδίο νετρονίων έχει ως στόχο την ενεργοποίησή του, τη μετατροπή δηλαδή των σταθερών ισοτόπων σε ραδιενεργά που εκπέμπουν στη συνέχεια γ-ακτινοβολία. Για την ταυτοποίηση των ραδιενεργών πυρήνων που προκύπτουν και μέσω αυτών των πυρήνων-στόχων, άρα και των αρχικών στοιχείων του υλικού του δείγματος, απαιτείται λεπτομερής γνώση των πυρηνικών αντιδράσεων που λαμβάνουν χώρα. Επιπλέον, για την ποσοτικοποίηση των αποτελεσμάτων, τον προσδιορισμό δηλαδή των συγκεντρώσεων των στοιχείων στο δείγμα, είναι απαραίτητη η γνώση του ρυθμού ενεργοποίησης. Σημαντική παράμετρο στη διαδικασία ενεργοποίησης αποτελεί η ενέργεια των νετρονίων στη θέση ακτινοβόλησης καθώς καθορίζει το είδος της πυρηνικής αντίδρασης αλλά και την πιθανότητα πραγματοποίησής της και κατ'επέκταση το είδος του ραδιενεργού προϊόντος που θα προκύψει από αυτή. Στις παραγράφους που ακολουθούν παρουσιάζονται συνοπτικά οι βασικές αρχές αλληλεπίδρασης των νετρονίων με την ύλη καθώς και η κατηγοριοποίηση των νετρονίων που συναντώνται στους πυρηνικούς αντιδραστήρες βάσει της ενέργειάς τους.

2.1.1 Αλληλεπίδραση νετρονίων με την ύλη

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 είτε ακόμα και σχάση.

Ως συνάρτηση των μικροσκοπικών ενεργών διατομών σκέδασης και απορρόφησης ορίζονται και οι ανάλογες μακροσκοπικές ενεργές διατομές, με βάση τις σχέσεις 2.1-2.2, όπου η άθροιση γίνεται για όλα τα ισότοπα (i). Επιπλέον, η ολική μακροσκοπική ενεργός διατομή ορίζεται ως το άθροισμα των δύο επιμέρους μακροσκοπικών διατομών (σχέση 2.3).

$$\Sigma_s = \sum_i (\sigma_{s,i} N_i) \quad (\text{Σχέση 2.1})$$

$$\Sigma_a = \sum_i (\sigma_{a,i} N_i) \quad (\text{Σχέση 2.2})$$

$$\Sigma_t = \Sigma_s + \Sigma_a \quad (\text{Σχέση 2.3})$$

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

2.1.2 Κατηγοριοποίηση νετρονίων

Τα νετρόνια που προκύπτουν από τη σχάση του πυρήνα του ^{235}U είναι κατά κύριο λόγο ταχέα με μέση ενέργεια 2.1 MeV. Λόγω ελαστικών σκεδάσεων με τα άτομα του επιβραδυντικού μέσου τα νετρόνια χάνουν μέρος της ενέργειάς τους και επιβραδύνονται, με αποτέλεσμα μετά από πολλαπλές σκεδάσεις να γίνονται αρχικά επιθερμικά και στη συνέχεια θερμικά. Ως συνέπεια των παραπάνω, το φάσμα των νετρονίων σε θέσεις του πυρήνα ενός ερευνητικού αντιδραστήρα καλύπτει εύρος ενεργειών από κλάσμα του eV έως την τάξη των MeV.

Το ενεργειακό φάσμα των νετρονίων διακρίνεται σε τρεις κύριες περιοχές [Parry (1991)]:

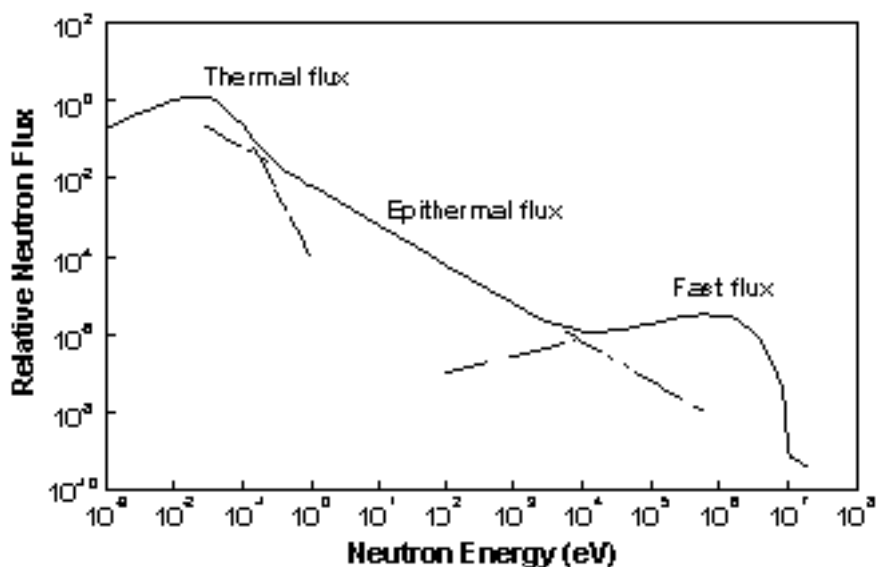
- i) τη θερμική περιοχή
- ii) την επιθερμική περιοχή και
- iii) την περιοχή των ταχέων νετρονίων

i) Θερμικά νετρόνια: η θερμική περιοχή του ενεργειακού φάσματος περιλαμβάνει νετρόνια χαμηλής ενέργειας (<0.5 eV), τα οποία έχουν χάσει όλη τους την κινητική ενέργεια μετά από μία ακολουθία ελαστικών, κυρίως, σκεδάσεων με τα άτομα του υδρογόνου του επιβραδυντικού μέσου –το οποίο είναι νερό στους ερευνητικούς αντιδραστήρες τύπου ανοικτής δεξαμενής-. Για τη θερμοποίηση απαιτούνται κατά μέσο όρο 18 ελαστικές σκεδάσεις. Τα θερμικά νετρόνια βρίσκονται σε θερμική ισορροπία με τα άτομα του επιβραδυντή. Σε θερμοκρασία περιβάλλοντος ($\sim 300^\circ$ K) το ενεργειακό φάσμα των θερμικών νετρονίων περιγράφεται από την κατανομή Maxwell-Boltzmann, με μέση ενέργεια 0.025 eV και πιθανότερη ταχύτητα 2200 m/s. Στις θέσεις ακτινοβολήσης αντιδραστήρων τύπου ανοικτής δεξαμενής το 90-95 % των νετρονίων με τα οποία βομβαρδίζεται ένα δείγμα είναι θερμικά.

ii) Επιθερμικά νετρόνια: η επιθερμική περιοχή του ενεργειακού φάσματος αποτελείται από νετρόνια με ενέργειες από 0.5 eV έως 0.5 MeV. Τα νετρόνια αυτά έχουν χάσει μέρος μόνο της ενέργειάς τους μέσω σκεδάσεων με τα άτομα του επιβραδυντή. Η επιθερμική ροή σε έναν αντιδραστήρα σχάσης είναι συνήθως της τάξης του 2-3% της συνολικής ροής νετρονίων. Σε περίπτωση που είναι επιθυμητός, ο διαχωρισμός θερμικών-επιθερμικών νετρονίων μπορεί να επιτευχθεί με την τοποθέτηση ενός φύλλου καδμίου (Cd). Ένα φύλλο καδμίου πάχους 1 mm αρκεί για να απορροφήσει σχεδόν όλα τα θερμικά νετρόνια, επιτρέποντας μόνο στα επιθερμικά να το διαπεράσουν, καθώς η μικροσκοπική ενεργός διατομή απορρόφησης θερμικών νετρονίων του καδμίου είναι ίση με 2450 b.

iii) Ταχεία 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 μέρος μόνο από την ενέργειά τους. Σε ένα τυπικό αντιδραστήρα σχάσης τύπου ανοικτής δεξαμενής τα ταχεία νετρόνια αποτελούν περίπου το 5% της συνολικής ροής.

Στο Σχήμα 2.1 απεικονίζεται ένα τυπικό ενεργειακό φάσμα νετρονίων σε αντιδραστήρα, στο οποίο διακρίνονται οι τρεις συνιστώσες-ενεργειακές περιοχές [Glascock (2011)].



Σχήμα 2.1 Τυπικό ενεργειακό φάσμα νετρονίων αντιδραστήρα, στο οποίο διακρίνονται οι διάφορες ενεργειακές περιοχές [από Glascock (2011)]

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 σωματίδια 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 ακτινοβολήση 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.

2.1.3 Μέση ελεύθερη διαδρομή νετρονίων

Αν $n(0)$ είναι ο αριθμός των νετρονίων ίδιας ενέργειας που προσπίπτουν κάθετα σε επιφάνεια λεπτού φύλλου υλικού άπειρης έκτασης και $n(x)$ ο αριθμός των νετρονίων που διαπερνούν πάχος υλικού x χωρίς να αλληλεπιδράσουν, τότε ισχύει:

$$n(x) = n(0) \times e^{-N \cdot \sigma_t \cdot x} \quad (\text{Σχέση 2.4})$$

όπου

N = ατομική πυκνότητα υλικού [m^{-3}]

σ_t = ολική μικροσκοπική ενεργός διατομή ανά άτομο υλικού [m^2]

Το γινόμενο των ποσοτήτων N και σ_t εκφράζει την ολική μακροσκοπική ενεργό διατομή του υλικού (Σ_t), η οποία έχει ήδη οριστεί (Σχέση 2.3).

Αντίστοιχα, ο αριθμός των νετρονίων που διαπερνούν πάχος υλικού x χωρίς να σκεδαστούν προκύπτει αν στη Σχέση 2.4 η ολική μικροσκοπική ενεργός διατομή (σ_t) αντικατασταθεί από τη μικροσκοπική ενεργό διατομή σκέδασης (σ_s).

Με βάση τα παραπάνω, η μέση απόσταση που διανύει ένα νετρόνιο μέσα σε ένα υλικό χωρίς να υποστεί κανενός είδους αλληλεπίδραση ονομάζεται συνολική μέση ελεύθερη διαδρομή (total mean free path) και δίνεται από την ακόλουθη σχέση:

$$\lambda_t = \frac{1}{\Sigma_t} \quad (\text{Σχέση 2.5})$$

όπου

λ_t = συνολική μέση ελεύθερη διαδρομή [m]

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

Με αντίστοιχο τρόπο ορίζεται η μέση ελεύθερη διαδρομή σκέδασης λ_s με βάση τη σχέση:

$$\lambda_s = \frac{1}{\Sigma_s} \quad (\text{Σχέση 2.6})$$

Με δεδομένο ότι η ολική μακροσκοπική ενεργός διατομή ισούται με το άθροισμα των επιμέρους ενεργών διατομών (Σχέση 2.3), ισχύει:

$$\frac{1}{\lambda_t} = \frac{1}{\lambda_s} + \frac{1}{\lambda_a} + \dots \quad (\text{Σχέση 2.7})$$

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

2.1.4 Μήκος διάχυσης θερμικών νετρονίων

Η μέση απόσταση r που διανύει ένα νετρόνιο από το σημείο που αυτό καθίσταται θερμικό έως το σημείο που απορροφάται είναι ανάλογη προς το μήκος διάχυσης θερμικών νετρονίων (thermal neutron diffusion length) L :

$$r = 2L \quad (\text{Σχέση 2.8})$$

Με προϋπόθεση ότι $\Sigma_a \ll \Sigma_s$ και για μέσα με μεγάλη τιμή μαζικού αριθμού, το μήκος διάχυσης θερμικών νετρονίων L εκφράζεται συναρτήσει των μέσων ελεύθερων διαδρομών ως εξής:

$$L^2 = \frac{\lambda_s \cdot \lambda_a}{3(1 - \overline{\cos \chi})} = \frac{1}{3\Sigma_s \Sigma_a (1 - \overline{\cos \chi})} = \frac{D}{\Sigma_a} \quad (\text{Σχέση 2.9})$$

όπου

$\overline{\cos \chi}$ = μέσο συνημίτονο της γωνίας σκέδασης

D = σταθερά διάχυσης θερμικών νετρονίων [m]

Εκτενέστερη περιγραφή της θεωρίας διάχυσης νετρονίων μπορεί να αναζητηθεί στη βιβλιογραφία [Lamarsh (1983)].

2.2 Φασματοσκοπία ακτίνων-γ

Απαραίτητη προϋπόθεση για την ανίχνευση μιας ακτίνας-γ είναι η αλληλεπίδρασή της με το υλικό του ανιχνευτή. Η πιθανότητα να λάβει χώρα μια τέτοια αλληλεπίδραση καθορίζει την απόδοση του ανιχνευτή. Στη συνέχεια του Κεφαλαίου παρουσιάζονται συνοπτικά οι βασικές αρχές αλληλεπίδρασης των φωτονίων με την ύλη καθώς και ο ορισμός της απόδοσης ανίχνευσης ακτίνων-γ.

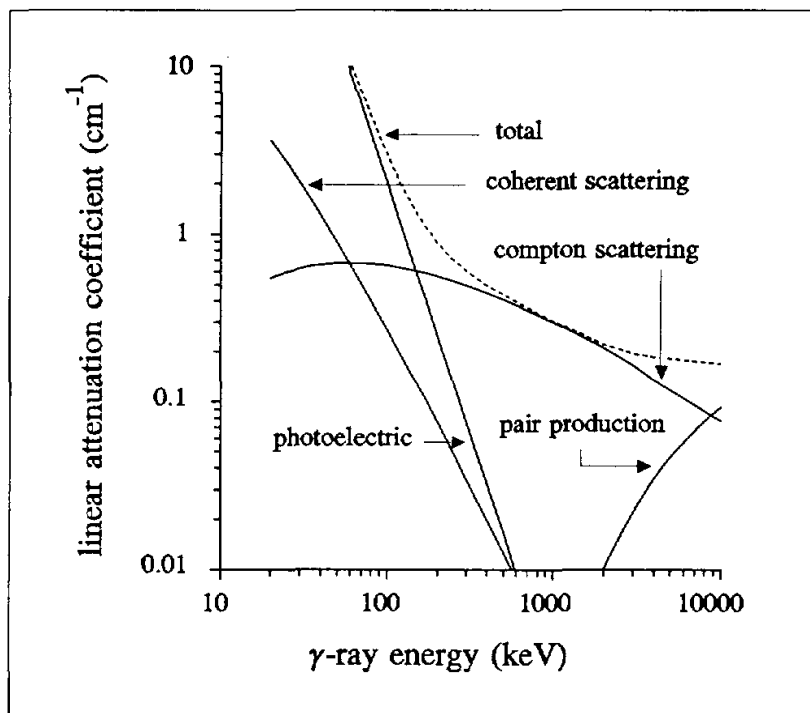
2.2.1 Αλληλεπίδραση φωτονίων με την ύλη

Ένα φωτόνιο μπορεί να αλληλεπιδράσει με την ύλη μέσω διαφόρων μηχανισμών, όπως για παράδειγμα φωτοηλεκτρικό φαινόμενο, σύμφωνη σκέδαση (σκέδαση Rayleigh), σκέδαση Compton, δίδυμη γένεση. Αναλυτική περιγραφή των διαφόρων μηχανισμών αλληλεπίδρασης μπορεί να αναζητηθεί στη βιβλιογραφία [Evans (1955)]. Η πιθανότητα αλληλεπίδρασης μιας παράλληλης στενής δέσμης φωτονίων ενέργειας E_γ με τα άτομα υλικού ατομικού αριθμού Z εκφράζεται μέσω του γραμμικού συντελεστή εξασθένησης του υλικού $\mu(E_\gamma, Z)$. Ο ολικός γραμμικός συντελεστής εξασθένησης μ_{tot} ορίζεται ως το άθροισμα των επιμέρους γραμμικών συντελεστών εξασθένησης για κάθε πιθανό φαινόμενο αλληλεπίδρασης ακτινοβολίας-ύλης με βάση τη σχέση:

$$\mu_{tot} = \mu_{photo} + \mu_{coherent} + \mu_{compton} + \mu_{pair} \quad (\text{Σχέση 2.10})$$

όπου οι δείκτες υποδεικνύουν τους διαφορετικούς μηχανισμούς αλληλεπίδρασης.

Στο σχήμα 2.2 απεικονίζεται η εξάρτηση των επιμέρους γραμμικών συντελεστών εξασθένησης από την ενέργεια των ακτίνων-γ για το Γερμάνιο [Overwater (1994)]. Όπως φαίνεται, στις χαμηλές ενέργειες ($E_\gamma < 200$ keV) υπερισχύει η απορρόφηση με φωτοηλεκτρικό φαινόμενο ενώ στις μεγάλες ενέργειες ($E_\gamma > 8$ MeV) κυριαρχεί η δίδυμη γένεση. Στην ενδιάμεση περιοχή ενεργειών (200 keV $< E_\gamma < 8$ MeV) κυρίαρχη αλληλεπίδραση είναι η σκέδαση Compton. Ο μηχανισμός της σύμφωνης σκέδασης δε θεωρείται ιδιαίτερα σημαντικός καθώς δε συνοδεύεται από ουσιαστική απώλεια ενέργειας και προκαλεί μικρή μόνο εκτροπή των ακτίνων-γ, η οποία μπορεί να θεωρηθεί αμελητέα. Επιπλέον, ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης για το φωτοηλεκτρικό φαινόμενο είναι αρκετά μεγαλύτερος από τον αντίστοιχο συντελεστή για τη σύμφωνη σκέδαση.



Σχήμα 2.2 Γραμμικοί συντελεστές εξασθένησης συναρτήσει της ενέργειας των ακτίνων-γ για τους κυρίαρχους μηχανισμούς αλληλεπίδρασης στο Γερμάνιο

Οι αλληλεπιδράσεις που περιγράφηκαν έχουν σαν αποτέλεσμα την απώλεια μέρους ή όλης της ενέργειας των φωτονίων μέσα στο υλικό του ανιχνευτή. Το μεγαλύτερο ποσοστό των ακτίνων-γ χαμηλής ενέργειας χάνουν την ενέργειά τους μέσω απορρόφησης λόγω φωτοηλεκτρικού φαινομένου. Στις μεγαλύτερες ενέργειες, πολλά φωτόνια εξέρχονται του κρυστάλλου αφού σκεδαστούν (σκέδαση Compton), με συνέπεια να εναποτίθεται στον ανιχνευτή ένα μόνο μέρος της ενέργειάς τους. Στην περίπτωση φωτονίων με ενέργεια μεγαλύτερη του 1.022 MeV είναι δυνατό να πραγματοποιηθεί δίδυμη γένεση, οπότε και προκύπτει αρχικά ζεύγος ηλεκτρονίου-ποζιτρονίου και ακολούθως προκύπτουν δύο φωτόνια εξαύλωσης του ποζιτρονίου ενέργειας 0.511 MeV. Τα φωτόνια αυτά υπάρχει περίπτωση είτε να εναποθέσουν την ενέργειά τους στον ανιχνευτή είτε να εξέλθουν του κρυστάλλου Γερμανίου, μόνο το ένα ή και τα δύο, οπότε και εμφανίζεται στο ενεργειακό φάσμα φωτοκορυφή μονής διαφυγής (single escape) ή διπλής διαφυγής (double escape), αντίστοιχα.

Εκτενέστερη περιγραφή της μεθοδολογίας μετρήσεων της ακτινοβολίας-γ μπορεί να αναζητηθεί στη βιβλιογραφία [Knoll (2000)].

2.2.2 Απόδοση ανίχνευσης ακτίνων-γ

Η απόδοση ανίχνευσης φωτονίων ενός ανιχνευτή Γερμανίου αποτελεί ένα από τα σημαντικότερα χαρακτηριστικά του, το οποίο καθορίζει σε μεγάλο βαθμό και την χρηστικότητα του. Η απόδοση εξαρτάται από μία σειρά παραμέτρων, όπως θα φανεί στη συνέχεια, και δεν είναι γνωστή εξ αρχής για έναν ανιχνευτή. Η απόδοση που θα χρησιμοποιήσει ο πειραματιστής για την ανάλυση δειγμάτων συγκεκριμένης γεωμετρίας δεν είναι ένα χαρακτηριστικό γνωστό εκ των προτέρων καθώς στις περισσότερες των περιπτώσεων η τιμή που δίνεται από τον κατασκευαστή είναι μόνο ονομαστική (βάσει των γεωμετρικών χαρακτηριστικών του κρυστάλλου Γερμανίου) και απέχει από την πραγματική τιμή της απόδοσης (βλ. Κεφάλαιο 4). Επομένως, ο πειραματιστής, ανάλογα με τη συγκρότηση της ανιχνευτικής διάταξης και τη γεωμετρία δείγματος-ανιχνευτή που πρόκειται να χρησιμοποιήσει, πρέπει να εκτιμήσει την πραγματική απόδοση του ανιχνευτή, η οποία επιπλέον εξαρτάται και από την ενέργεια των φωτονίων που ανιχνεύονται. Οι μεθοδολογίες που χρησιμοποιούνται για την εκτίμηση της απόδοσης διαιρούνται εν γένει σε δύο κατηγορίες: πειραματικές μεθοδολογίες και μεθοδολογίες που στηρίζονται στην προσομοίωση με χρήση τεχνικών Monte-Carlo.

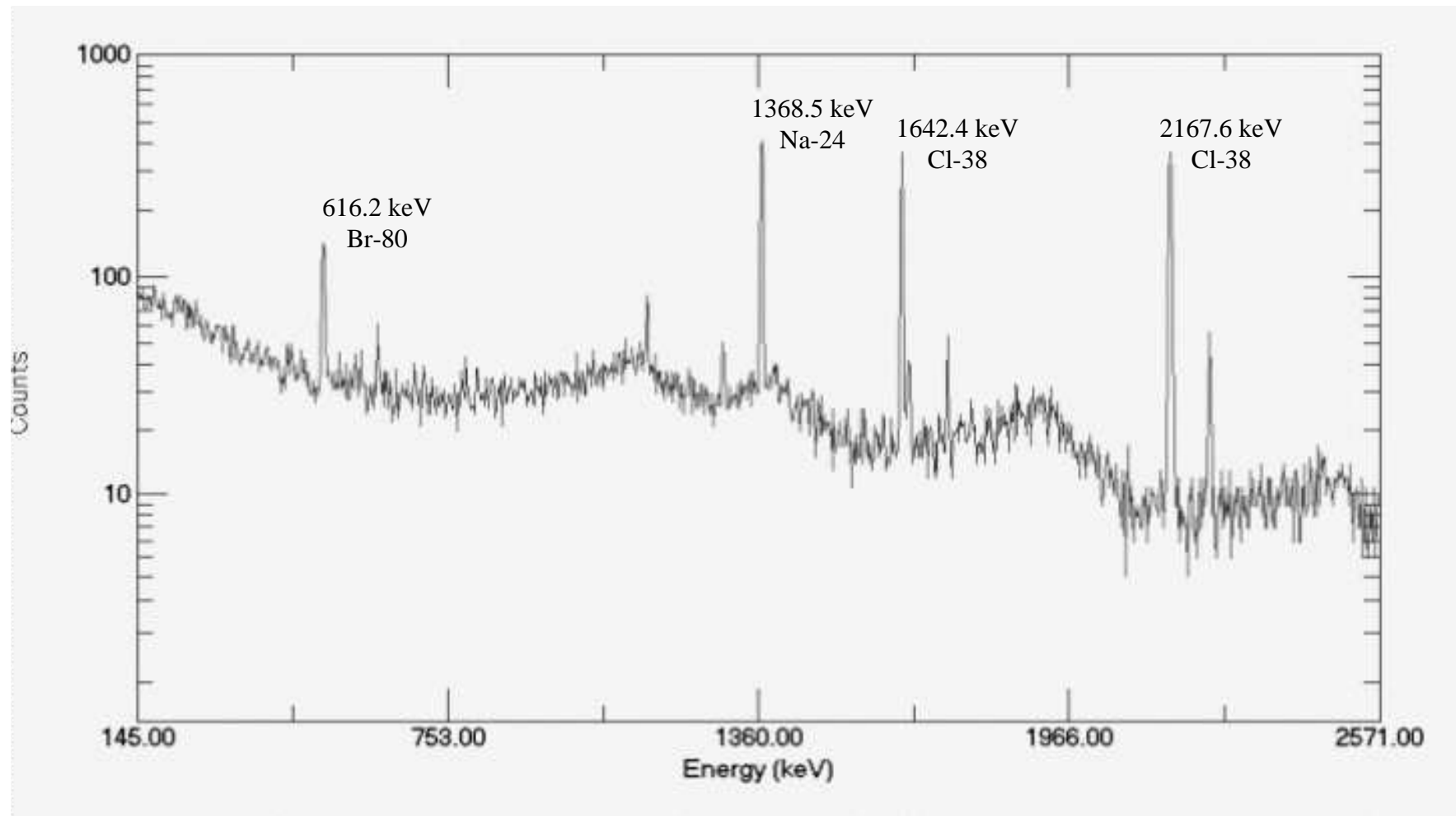
Μεταξύ των μεγεθών τα οποία εκφράζουν την απόδοση μίας διάταξης ανίχνευσης φωτονίων, το σημαντικότερο είναι η απόδοση φωτοκορυφής (ή απόλυτη απόδοση φωτοκορυφής), η οποία εκφράζει την ικανότητα ενός ανιχνευτή να ανιχνεύει πλήρως την ενέργεια ενός φωτονίου συγκεκριμένης αρχικής ενέργειας. Στην περίπτωση αυτή, το φωτόνιο κατά την αλληλεπίδραση με τον ανιχνευτή αποθέτει σε αυτόν ολόκληρη την ενέργειά του. Όλα τα φωτόνια της ίδιας αρχικής ενέργειας που αποθέτουν στον ανιχνευτή όλη την ενέργειά τους καταγράφονται στο ενεργειακό φάσμα που συλλέγεται κάτω από την αντίστοιχη φωτοκορυφή. Ο λόγος του πλήθους των φωτονίων που αποδίδουν στον ανιχνευτή όλη την ενέργειά τους και συνεπώς καταγράφονται κάτω από τη φωτοκορυφή (επιφάνεια της φωτοκορυφής), προς το συνολικό πλήθος των φωτονίων που εκπέμπονται από την πηγή φωτονίων, ορίζεται ως απόδοση φωτοκορυφής (full energy peak efficiency - FEPE). Στην παρούσα εργασία, η απόδοση φωτοκορυφής είναι το μέγεθος εκείνο που επιτρέπει τον ποσοτικό προσδιορισμό ενός ραδιενεργού ισοτόπου που ανιχνεύεται κατά την ανάλυση ενός δείγματος, μέσω της ανάλυσης του ενεργειακού φάσματος των ακτίνων-γ που αυτό εκπέμπει.

Στο σχήμα 2.3 παρατίθεται ένα ενεργειακό φάσμα ακτίνων-γ, όπως έχει αναλυθεί στη διάρκεια μετρήσεων γ-φασματοσκοπίας. Το συγκεκριμένο φάσμα αφορά στην ανάλυση βιολογικού δείγματος με την τεχνική της νετρονικής ενεργοποίησης. Ανάμεσα στις πολλές αιχμές που διακρίνονται στο φάσμα, ξεχωρίζουν τέσσερις, οι οποίες έχουν ταυτοποιηθεί, έχει δηλαδή προσδιοριστεί το ισότοπο στο οποίο αντιστοιχούν (σημειώνεται πάνω από κάθε φωτοκορυφή η ενέργειά της και το αντίστοιχο ισότοπο).

Εκτός από την απόδοση φωτοκορυφής, ορίζεται και η ολική απόδοση (total efficiency). Η ολική απόδοση εκφράζει την ικανότητα ενός ανιχνευτή να ανιχνεύει έστω και ένα κλάσμα της ενέργειας ενός φωτονίου συγκεκριμένης αρχικής ενέργειας. Το φωτόνιο κατά την αλληλεπίδρασή του με το υλικό του ανιχνευτή αποθέτει σε αυτόν κλάσμα της ενέργειάς του, π.χ. μετά από σκέδαση Compton. Το φωτόνιο αυτό θα καταγραφεί στο ενεργειακό φάσμα που συλλέγεται από τον ανιχνευτή σε θέση που αντιστοιχεί σε ενέργεια χαμηλότερη της αρχικής ενέργειας του φωτονίου. Η ολική απόδοση ισούται με το λόγο του πλήθους των φωτονίων που αποδίδουν στον ανιχνευτή τουλάχιστον ένα κλάσμα της ενέργειάς τους και συνεπώς καταγράφονται στο φάσμα σε τυχαία θέση, προς το συνολικό πλήθος των φωτονίων που εκπέμπονται από την πηγή φωτονίων.

Πέραν των δύο αποδόσεων που αναφέρθηκαν, ορίζεται επίσης, ο λόγος της απόδοσης φωτοκορυφής προς την ολική απόδοση (peak to total ratio).

Η διαδικασία πειραματικού υπολογισμού των αποδόσεων ανίχνευσης και των αντίστοιχων σφαλμάτων περιγράφεται αναλυτικά στο Παράρτημα Α της παρούσας εργασίας.



Σχήμα 2.3 Τυπικό ενεργειακό φάσμα ακτίνων-γ από ανάλυση βιολογικού δείγματος

2.3 Εξισώσεις υπολογισμού στοιχειακών συγκεντρώσεων

2.3.1 Εξίσωση ANE

Όπως έχει περιγραφεί αναλυτικά στο 1^ο Κεφάλαιο (παράγραφοι 1.1 και 1.2), η διαδικασία ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση περιλαμβάνει την ακτινοβολήση του δείγματος σε πεδίο νετρονίων, τη μέτρηση της ακτινοβολίας-γ που εκπέμπεται από το δείγμα σε κατάλληλη ανιχνευτική διάταξη και την επεξεργασία των μετρήσεων με στόχο τον -ποιοτικό και ποσοτικό- προσδιορισμό των στοιχείων.

Η ανάλυση βασίζεται στη μέτρηση του αριθμού των πυρηνικών διασπάσεων. Ο αριθμός των ενεργοποιημένων πυρήνων $N(t_{irr}, t_{dec})$ τη χρονική στιγμή έναρξης της μέτρησης της ακτινοβολίας-γ θα είναι ίσος με

$$N(t_{irr}, t_{dec}) = R \times N_0 \times \lambda^{-1} \times (1 - e^{-\lambda t_{irr}}) \times e^{-\lambda t_{dec}}$$

ενώ ο αριθμός των πυρήνων $\Delta N(t_{irr}, t_{dec}, t_{count})$ που θα διασπώνται στη διάρκεια της μέτρησης της ακτινοβολίας-γ θα είναι ίσος με

$$\Delta N(t_{irr}, t_{dec}, t_{count}) = R \times N_0 \times \lambda^{-1} \times (1 - e^{-\lambda t_{irr}}) \times e^{-\lambda t_{dec}} \times (1 - e^{-\lambda t_{count}})$$

Με βάση τα παραπάνω και συνυπολογίζοντας όλες τις παραμέτρους που εμπλέκονται στη διαδικασία της ανάλυσης, προκύπτει η σχέση υπολογισμού της συγκέντρωσης C [$gr \cdot gr^{-1}$] ενός στοιχείου στο υπό μελέτη δείγμα στην «κλασική» ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση (ANE) [Overwater (1994), Bode (1996), Das (1999)]:

$$C = \frac{A}{a_\gamma \cdot f_t \cdot f_p \cdot \varepsilon} \times \frac{M}{a \cdot N_A \cdot G \cdot f_a} \times \frac{\lambda}{\sigma \cdot \phi} \times \frac{1}{(1 - e^{-\lambda \cdot t_{irr}}) e^{-\lambda \cdot t_{dec}} (1 - e^{-\lambda \cdot t_{count}})} \quad (2.11)$$

όπου

N_0 = ο αριθμός των αρχικών πυρήνων-στόχων

R = ο ρυθμός διάσπασης ανά πυρήνα που ενσωματώνει νετρόνιο

A = το εμβαδό της αντίστοιχης φωτοκορυφής του φάσματος (net counts)
 a_γ = ο αριθμός των εκπεμπόμενων ακτίνων- γ ανά διάσπαση (γ -ray abundance / yield)
 ε = απόδοση ανίχνευσης ακτίνων- γ
 ϕ = ροή νετρονίων [$\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$]
 M = ατομικό βάρος [$\text{gr} (\text{gr mol})^{-1}$]
 a = ισοτοπική αφθονία (isotopic abundance)
 N_A = αριθμός Avogadro [$(\text{gr mol})^{-1}$]
 G = μάζα υλικού [gr]
 f_t = παράγοντας απωλειών νεκρού χρόνου (dead time loss factor)
 f_p = παράγοντας απωλειών λόγω pile-up (pile-up loss factor)
 f_a = παράγοντας αυτο-απορρόφησης νετρονίων (neutron self-absorption factor)
 λ = σταθερά διάσπασης/αποδιέγερσης [min^{-1}]
 σ = μικροσκοπική ενεργός διατομή (microscopic cross section) [cm^2]
 t_{irr} = χρόνος ακτινοβόλησης [min]
 t_{dec} = χρόνος διάσπασης/αποδιέγερσης [min]
 t_{count} = χρόνος μέτρησης [min]

Η σχέση 2.11, ωστόσο, μπορεί να εφαρμοστεί για τον υπολογισμό των στοιχειακών συγκεντρώσεων με την προϋπόθεση ότι στο συγκεκριμένο δείγμα τα φαινόμενα αυτο-θωράκισης των νετρονίων και αυτο-απορρόφησης των φωτονίων είναι αμελητέα και μπορούν να αγνοηθούν, κάτι που δεν ισχύει στην περίπτωση δειγμάτων μεγάλου όγκου.

2.3.2 Εξίσωση ANE-ΔΜΟ

Στα πλαίσια συνεπώς της ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση δειγμάτων μεγάλου όγκου η παραπάνω εξίσωση δε μπορεί να χρησιμοποιηθεί ως έχει, δεδομένου ότι ως «μεγάλο δείγμα» ορίζεται κάθε ποσότητα υλικού στην οποία τα φαινόμενα της αυτο-θωράκισης νετρονίων και της αυτο-απορρόφησης των ακτίνων- γ δεν είναι αμελητέα και επομένως δεν μπορούν να αγνοηθούν, καθώς επηρεάζουν τόσο τη διαδικασία όσο και την ακρίβεια των αποτελεσμάτων της ανάλυσης. Για την ποσοτικοποίηση λοιπόν των αποτελεσμάτων της ανάλυσης και τον υπολογισμό των στοιχειακών συγκεντρώσεων στο μεγάλο δείγμα, χρειάζεται να ληφθούν υπ' όψιν οι παράμετροι που διαφοροποιούν την ανάλυση μεγάλων δειγμάτων από τη «συμβατική» τεχνική ανάλυσης μικρών δειγμάτων. Οι κύριοι παράγοντες διαφοροποίησης αφορούν στα μεγέθη της νετρονικής ροής κατά τη διαδικασία

ακτινοβόλησης, της χωρικής κατανομής της ενεργότητας, της απόδοσης του ανιχνευτή κατά την ανίχνευση της εκπεμπόμενης από το δείγμα ακτινοβολίας-γ καθώς και της εξασθένησης της ακτινοβολίας-γ μέσα στο υλικό του δείγματος. Επιπλέον, χρειάζεται να συνυπολογιστεί η επίδραση της ύπαρξης τυχόν ανομοιογενειών στον όγκο του δείγματος. Για όλες τις παραπάνω παραμέτρους χρειάζεται επομένως να εφαρμοστούν ανάλογοι διορθωτικοί συντελεστές ώστε να είναι δυνατή η ποσοτικοποίηση των αποτελεσμάτων της ανάλυσης, μέσω της - κατάλληλα τροποποιημένης για μεγάλα δείγματα- εξίσωσης υπολογισμού συγκεντρώσεων (Σχέση 2.11). Η προσέγγιση αυτή, η οποία βασίζεται στη χρήση της σχέσης 2.11, ονομάζεται μέθοδος απόλυτης βαθμονόμησης και είναι η μέθοδος που εφαρμόστηκε στα πλαίσια της παρούσας ΔΔ.

2.3.3 Σχετική βαθμονόμηση

Εκτός από την μέθοδο απόλυτης βαθμονόμησης, οι στοιχειακές συγκεντρώσεις σε ένα δείγμα μπορούν να προσδιοριστούν και μέσω της σχετικής βαθμονόμησης. Η μέθοδος αυτή χρησιμοποιεί ως δείγμα «αναφοράς» ένα δείγμα γνωστής σύστασης και υπολογίζει τη συγκέντρωση του στοιχείου που ενδιαφέρει στο άγνωστο δείγμα συναρτήσει της αντίστοιχης συγκέντρωσης στο γνωστό δείγμα, συσχετίζοντας τους λόγους των συγκεντρώσεων με τους λόγους των καταγραφόμενων φωτοκορυφών για τα δύο δείγματα, μετρημένα στην ίδια γεωμετρία. Το πλεονέκτημα της μεθόδου είναι ότι δεν χρειάζεται να είναι γνωστές ή να προσδιοριστούν πειραματικά οι τιμές μιας σειράς παραμέτρων που εμφανίζονται στη σχέση 2.11, γεγονός που καθιστά πιο «εύκολο» τον προσδιορισμό των στοιχειακών συγκεντρώσεων. Επιπλέον, λόγω της σχετικής σύγκρισης του άγνωστου προς το γνωστό δείγμα (λόγος τιμών), εξαλείφονται σφάλματα κατά τον υπολογισμό μεγεθών όπως η αυτο-θωράκιση των νετρονίων, η αυτο-απορρόφηση των φωτονίων και η απόδοση φωτοκορυφής του ανιχνευτή. Ωστόσο, και σε αυτή την περίπτωση χρειάζεται να ληφθούν υπ' όψιν οι διορθωτικοί παράγοντες εφ' όσον πρόκειται για δείγματα μεγάλου όγκου.

Η σχέση 2.12 περιγράφει τη διαδικασία υπολογισμού της μάζας ενός στοιχείου στο άγνωστο δείγμα (m_{unk}) μέσω της σχετικής βαθμονόμησης με βάση την τιμή της μάζας του ίδιου στοιχείου σε ένα γνωστής σύστασης δείγμα (m_{std}):

$$m_{unk} = m_{std} \frac{(A_{unk})}{(A_{std})} R_{\theta} R_{\phi} R_{En} R_{\sigma} R_{nss} R_{\varepsilon} R_{\gamma ss} R_{inh} \quad (2.12)$$

όπου

A_{unk} και A_{std} = το εμβαδόν της αντίστοιχης φωτοκορυφής του φάσματος (net counts) για το άγνωστο και το γνωστό δείγμα αντίστοιχα,

R_{θ} = λόγος ισοτοπικής αφθονίας (isotopic abundance) του υπό μελέτη στοιχείου στο άγνωστο δείγμα προς την αντίστοιχη τιμή για το γνωστό δείγμα (συνήθως = 1),

R_{ϕ} = λόγος ροής θερμικών νετρονίων στο άγνωστο δείγμα προς την αντίστοιχη τιμή για το γνωστό δείγμα

R_{En} = λόγος ενεργειακής κατανομής νετρονίων στο άγνωστο δείγμα προς την αντίστοιχη τιμή για το γνωστό δείγμα

R_{σ} = λόγος ενεργού διατομής ενεργοποίησης στο ενεργειακό φάσμα νετρονίων για το άγνωστο και το γνωστό δείγμα

R_{nss} = λόγος αυτο-θωράκισης νετρονίων στο άγνωστο δείγμα προς την αντίστοιχη τιμή για το γνωστό δείγμα

R_{ε} = λόγος απόδοσης φωτοκορυφής για το άγνωστο δείγμα ως προς το γνωστό δείγμα

$R_{\gamma ss}$ = λόγος αυτο-απορρόφησης φωτονίων στο άγνωστο δείγμα προς την αντίστοιχη τιμή για το γνωστό δείγμα

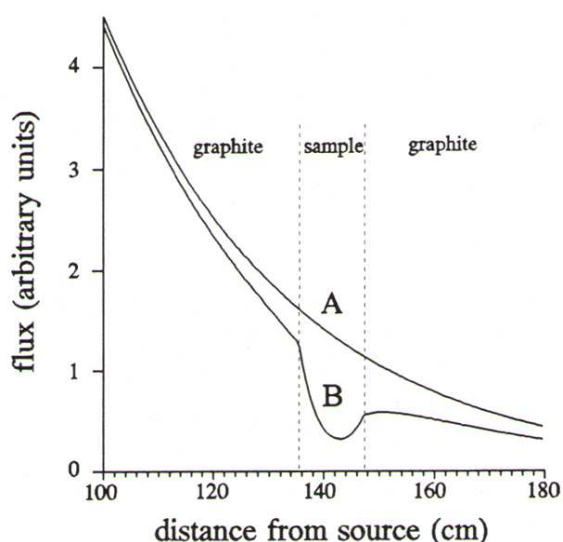
R_{inh} = λόγος επίδρασης ανομοιογενειών στο άγνωστο δείγμα ως προς το γνωστό δείγμα

Οι απαιτούμενοι συντελεστές διόρθωσης καθώς και τα αντίστοιχα φαινόμενα περιγράφονται αναλυτικά στη συνέχεια του παρόντος Κεφαλαίου.

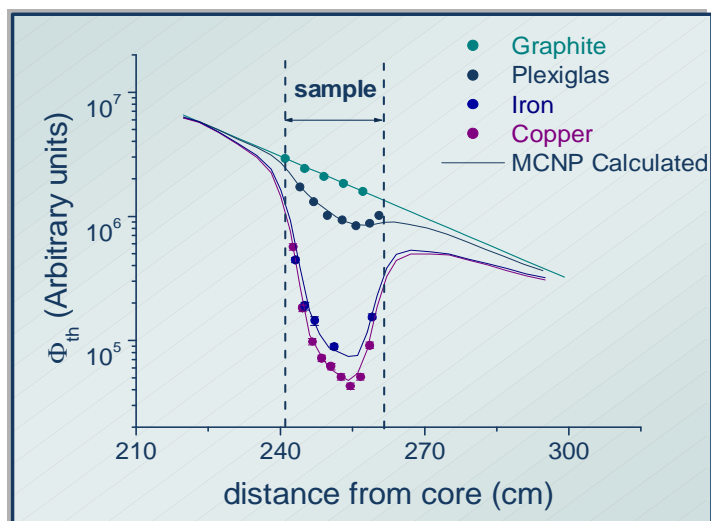
2.4 Διορθώσεις

Οι παράμετροι που διαφοροποιούν την ανάλυση αντικειμένων μεγάλου όγκου από την «κλασική» ανάλυση μικρών δειγμάτων διακρίνονται σε δύο κατηγορίες: αυτές που αφορούν στα νετρόνια, δηλαδή την ακτινοβολήση, και αυτές που αφορούν στα φωτόνια, δηλαδή την ανίχνευση της εκπεμπόμενης ακτινοβολίας-γ.

Ξεκινώντας από τη διαδικασία ακτινοβόλησης, η εισαγωγή του δείγματος μεγάλου όγκου στη θέση ακτινοβόλησης (στη θερμική στήλη) προκαλεί σημαντική διαταραχή του πεδίου νετρονίων στη συγκεκριμένη θέση, τόσο στο χώρο που καταλαμβάνει το δείγμα όσο και στην περιοχή γύρω από το δείγμα. Αυτή η διαταραχή είναι αποτέλεσμα της σκέδασης και απορρόφησης των νετρονίων μέσα στον όγκο του ακτινοβολούμενου δείγματος. Στο Σχήμα 2.4 απεικονίζεται η ροή των νετρονίων στη θερμική στήλη συναρτήσει της απόστασης από την πηγή νετρονίων (καρδιά αντιδραστήρα) για δύο περιπτώσεις κυλινδρικών δειγμάτων: (Α) δείγμα γραφίτη και (Β) δείγμα νερού [Overwater (1994)]. Η διαταραχή της ροής στη «γειτονιά» του δείγματος έχει μελετηθεί για μια σειρά υλικών που χρησιμοποιούνται συχνά στην ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση [Τζίκα (2005)]. Στο Σχήμα 2.5 απεικονίζεται η σύγκριση των πειραματικών τιμών με τις τιμές που προσδιορίστηκαν με χρήση προσομοιώσεων με τον κώδικα MCNP [Tzika & Stamatelatos (2004)].

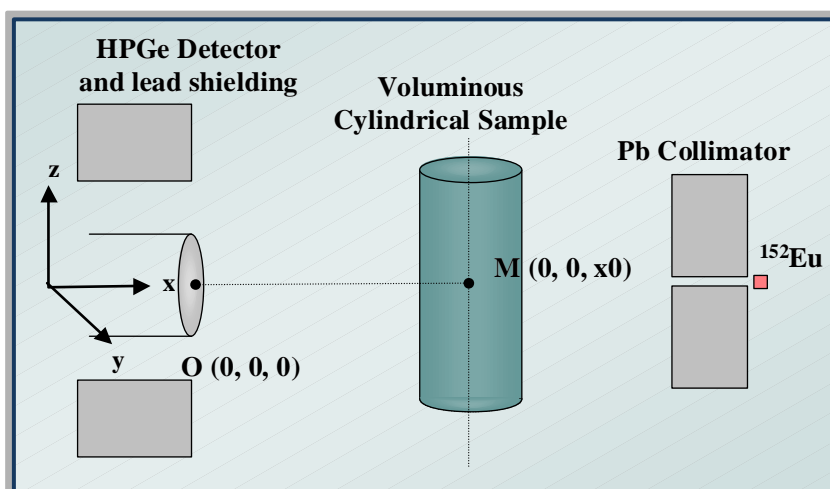


Σχήμα 2.4 Διαταραχή νετρονικής ροής μέσα και γύρω από το κυλινδρικό δείγμα για εισαγωγή στη θερμική στήλη (Α) δείγματος γραφίτη και (Β) δείγματος νερού



Σχήμα 2.5 Διαταραχή νετρονικής ροής μέσα και γύρω από κυλινδρικά δείγματα όπως υπολογίστηκε πειραματικά και με χρήση προσομοιώσεων

Σε ότι αφορά τη γ-φασματοσκοπία, η ανίχνευση των ακτίνων-γ που προέρχονται από το ενεργοποιημένο δείγμα μεγάλου όγκου διαφοροποιείται από την αντίστοιχη διαδικασία σε περίπτωση σημειακής πηγής, καθώς η εκτεταμένη γεωμετρία της πηγής συνεπάγεται διαφορετική απόδοση ανίχνευσης από αυτή της σημειακής γεωμετρίας. Επιπλέον, στην περίπτωση του μεγάλου δείγματος πρέπει να ληφθεί υπ' όψιν και η απορρόφηση των ακτίνων-γ μέσα στο υλικό του δείγματος, φαινόμενο που δεν απασχολεί στις περιπτώσεις σημειακών πηγών (Σχήμα 2.6). Στις διαφοροποιήσεις τέλος, πρέπει να προστεθούν οι παράμετροι της ανομοιογένειας του υπό μελέτη υλικού και της ακανόνιστης ενδεχομένως γεωμετρίας του μεγάλου δείγματος.



Σχήμα 2.6 Δισδιάστατη αναπαράσταση της μέτρησης της ακτινοβολίας-γ κυλινδρικού δείγματος μεγάλου όγκου

Επομένως, για να είναι δυνατή η ποσοτικοποίηση των αποτελεσμάτων, χρειάζεται να εφαρμοστούν διορθώσεις για όλα τα προαναφερθέντα φαινόμενα: την αυτο-θωράκιση των θερμικών νετρονίων κατά τη διαδικασία ακτινοβόλησης καθώς και την αυτο-απορρόφηση των ακτίνων-γ, την ανομοιογένεια του δείγματος και το γεωμετρικό παράγοντα που σχετίζονται με τη φασματοσκοπική ανάλυση. Οι συγκεκριμένοι παράγοντες, όπως θα περιγραφεί αναλυτικά και στη συνέχεια, εξαρτώνται από τη διάταξη ακτινοβόλησης, το σύστημα ανίχνευσης της ακτινοβολίας-γ και τα συγκεκριμένα χαρακτηριστικά του δείγματος.

2.4.1 Μεθοδολογίες διορθώσεων

Διαφορετικές τεχνικές βαθμονόμησης έχουν προταθεί για τη διόρθωση και ποσοτικοποίηση των αποτελεσμάτων της ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση. Οι Beeley and Garrett (1993) χρησιμοποίησαν τη μέθοδο συγκριτικής βαθμονόμησης (comparative method), σύμφωνα με την οποία η σύσταση του άγνωστου δείγματος προσδιορίζεται με βάση τη γνωστή σύσταση δειγμάτων αναφοράς (standard samples). Τα δείγματα γνωστής σύστασης ακτινοβολήθηκαν στο ίδιο πεδίο νετρονίων με τα άγνωστα δείγματα και ακολούθως η εκπεμπόμενη ακτινοβολία-γ μετρήθηκε σε κατάλληλη διάταξη. Παρόμοια μεθοδολογία χρησιμοποιήθηκε και από την ερευνητική ομάδα στο Περού για την ανάλυση κεραμικών αρχαιολογικών αντικειμένων [Montoya (2010)].

Οι Nair et al. (2003) ανέπτυξαν τη μέθοδο του «εσωτερικού προτύπου» (internal monostandard method) για τον προσδιορισμό σχετικών στοιχειακών συγκεντρώσεων. Σύμφωνα με τη συγκεκριμένη προσέγγιση, ένα από τα στοιχεία που υπάρχει στο υπό μελέτη δείγμα χρησιμοποιείται ως δείκτης σύγκρισης (comparator). Για τη μετατροπή των σχετικών συγκεντρώσεων σε απόλυτες τιμές απαραίτητη προϋπόθεση είναι η εκ των προτέρων γνώση της συγκέντρωσης ενός συστατικού του δείγματος. Η προτεινόμενη μέθοδος αν και παρέχει τη δυνατότητα ανάλυσης δειγμάτων με ακανόνιστα σχήματα, συναντά, ωστόσο, περιορισμούς στην περίπτωση που απαιτείται ανάλυση υψηλής ακρίβειας, όπως έδειξαν πειραματικές μετρήσεις της ίδιας ομάδας.

Οι Overwater et al. (1993) πρότειναν τη χρήση συντελεστών διόρθωσης που προκύπτουν μέσω σύγκρισης της απόδοσης του ανιχνευτή για σημειακή πηγή και για

πηγή όγκου, θεωρώντας ότι η πηγή όγκου αποτελείται από σειρά σημειακών πηγών. Επιπλέον, προσομοίωσαν την ανιχνευτική διάταξη χρησιμοποιώντας τεχνικές Monte Carlo. Στην περίπτωση, ωστόσο, της ακτινοβόλησης, χρησιμοποιείται η αναλυτική λύση της εξίσωσης διάχυσης νετρονίων για τις γεωμετρικές παραμέτρους του δείγματος [Overwater & Hoogenboom (1994)], η οποία εισάγει ορισμένους περιορισμούς, όπως η προϋπόθεση ισοτροπικού πεδίου νετρονικής ροής και πλήθους γεγονότων σκέδασης μέσα στο δείγμα. Επιπλέον, η εφαρμογή της λύσης της εξίσωσης διάχυσης σε δύο διαστάσεις προϋποθέτει ότι η διαρροή νετρονίων κατά την τρίτη διάσταση μπορεί να θεωρηθεί αμελητέα, γεγονός που μπορεί να οδηγήσει στην εισαγωγή σφάλματος [Overwater (1994)].

Η δυνατότητα εφαρμογής της τεχνικής k_0 για την ανάλυση δειγμάτων μεγάλου όγκου εξετάστηκε από τους Blaauw et al. (1997) στον Ολλανδικό αντιδραστήρα. Η μελέτη αυτή έδειξε ότι είναι δυνατό να επιτευχθεί ακρίβεια στην ανάλυση των μεγάλων δειγμάτων ανάλογη με αυτή που επιτυγχάνεται με τη συμβατική, ήδη καθιερωμένη, τεχνική ανάλυσης μικρών δειγμάτων.

Οι Tzika et al. (2004) επέκτειναν την τεχνική αυτή πραγματοποιώντας λεπτομερή προσομοίωση των διαδικασιών ακτινοβόλησης και φασματοσκοπίας- γ με χρήση του Monte Carlo κώδικα MCNP (Monte Carlo Neutron Particle), εισάγοντας τη χρήση προσομοιώσεων για τη μελέτη των φαινομένων αυτο-θωράκισης των νετρονίων και αυτο-απορρόφησης των ακτίνων- γ μέσα στον όγκο του μεγάλου δείγματος. Η προτεινόμενη μέθοδος διαθέτει συγκριτικά πλεονεκτήματα καθώς εξασφαλίζει καλύτερη αναπαραγωγή του πραγματικού πεδίου νετρονίων κατά την ακτινοβόληση του δείγματος αλλά και των αλληλεπιδράσεων των φωτονίων με την ύλη κατά την ανίχνευση της εκπεμπόμενης από το δείγμα ακτινοβολίας- γ . Επιπλέον, παρέχει ευελιξία στην περιγραφή της τρισδιάστατης γεωμετρίας του δείγματος ενώ ταυτόχρονα προσφέρει τη δυνατότητα επέκτασης των υπολογισμών σε διαφορετικές διατάξεις, γεωμετρίες, υλικά.

2.4.2 Εφαρμογή μεθόδου διορθώσεων

Η μέθοδος διορθώσεων που χρησιμοποιήθηκε στα πλαίσια της παρούσας ΔΔ στηρίζεται στη χρήση προσομοιώσεων με κώδικες Monte Carlo [Tzika et al. (2004), Stamatelatos & Tzika (2007)]. Πιο συγκεκριμένα, ο κώδικας MCNP χρησιμοποιήθηκε για τη μοντελοποίηση των διατάξεων ακτινοβολήσης και ανίχνευσης της ακτινοβολίας-γ και για τον προσδιορισμό των αντίστοιχων συντελεστών διόρθωσης.

Ο συντελεστής διόρθωσης αυτο-θωράκισης νετρονίων f_n ορίζεται ως ο λόγος της υπολογισμένης μέσης ροής θερμικών νετρονίων στον όγκο του δείγματος προς την αντίστοιχη υπολογισμένη μέση ροή στην εξωτερική του επιφάνεια, με βάση τη σχέση:

$$f_n = \frac{\overline{\Phi}_v}{\overline{\Phi}_s} \quad (\text{Σχέση 2.13})$$

όπου

$\overline{\Phi}_v$ = η υπολογισμένη μέσω προσομοιώσεων μέση ροή θερμικών νετρονίων στον όγκο του δείγματος

$\overline{\Phi}_s$ = η υπολογισμένη μέσω προσομοιώσεων μέση ροή θερμικών νετρονίων στην εξωτερική του επιφάνεια

Για τον υπολογισμό στη συνέχεια της πραγματικής ροής θερμικών νετρονίων μέσα στον όγκο του μεγάλου δείγματος, Φ_v , ο συντελεστής f_n συνδυάζεται με την πειραματικά μετρημένη μέση τιμή της ροής θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος, Φ_{s-e} , με βάση τη σχέση:

$$\Phi_v = \Phi_{s-e} \times f_n \quad (\text{Σχέση 2.14})$$

όπου

Φ_{s-e} : η πειραματικά μετρημένη μέση τιμή της ροής θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος και

f_n : ο υπολογισμένος μέσω προσομοιώσεων συντελεστής διόρθωσης για την αυτο-θωράκιση των νετρονίων στο μεγάλο δείγμα

Προκειμένου επομένως να προσδιορίσει ο πειραματιστής την πραγματική ροή θερμικών νετρονίων μέσα στον όγκο του μεγάλου δείγματος -που είναι και το ζητούμενο μέγεθος, το απαραίτητο για τον υπολογισμό των στοιχειακών συγκεντρώσεων μέσω της σχέσης 2.11-, αρκεί να μετρήσει πειραματικά τη μέση ροή θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος και να υπολογίσει μέσω προσομοιώσεων τον συντελεστή f_h .

Αντίστοιχα, ο συντελεστής διόρθωσης αυτο-απορρόφησης φωτονίων f_γ ορίζεται ως ο λόγος της απόδοσης φωτοκορυφής για τη μελετούμενη γεωμετρία όγκου προς την αντίστοιχη απόδοση για τη γεωμετρία αναφοράς, με βάση τη σχέση:

$$f_\gamma = \frac{eff_{volumesource}}{eff_{reference}} \quad (\text{Σχέση 2.15})$$

όπου

$eff_{volumesource}$ = η υπολογισμένη μέσω προσομοιώσεων απόδοση φωτοκορυφής για τη μελετούμενη γεωμετρία όγκου

$eff_{reference}$ = η υπολογισμένη μέσω προσομοιώσεων απόδοση για τη γεωμετρία αναφοράς

Όσον αφορά στη διαδικασία ανίχνευσης της ακτινοβολίας- γ , για τον υπολογισμό της πραγματικής απόδοσης για την υπό μελέτη γεωμετρία χρησιμοποιήθηκε η σχετική μέθοδος «μεταφοράς απόδοσης» (efficiency transfer method) [Piton et al. (2000)]. Σύμφωνα με αυτή, η απόδοση φωτοκορυφής του ανιχνευτή Γερμανίου για το μεγάλο δείγμα προσδιορίζεται σε σχέση με την πειραματικά μετρούμενη απόδοση για μία γεωμετρία αναφοράς και για δεδομένη ενέργεια φωτονίων. Πιο συγκεκριμένα, ο συντελεστής μεταφοράς απόδοσης etf (efficiency transfer factor), ισούται με το λόγο της πραγματικής απόδοσης για την υπό μελέτη γεωμετρία όγκου προς την πειραματικά μετρούμενη απόδοση του ανιχνευτή για την πηγή αναφοράς (Σχέση 2.16). Η εφαρμογή της συγκεκριμένης μεθόδου αυξάνει την ακρίβεια των αποτελεσμάτων της φασματοσκοπικής ανάλυσης και εξασφαλίζει επιπλέον σημαντική οικονομία χρόνου, αποφεύγοντας τις αλεπάλληλες χρονοβόρες βαθμονομήσεις με σειρά διαφορετικών πηγών [Piton et al. (2000)].

$$etf = \frac{eff_{real-volume}}{eff_{exp-ref}} \quad (\text{Σχέση 2.16})$$

όπου

$eff_{real-volume}$ = η πραγματική απόδοση φωτοκορυφής για τη μελετούμενη γεωμετρία όγκου

$eff_{exp-ref}$ = η πειραματικά μετρούμενη απόδοση του ανιχνευτή για την πηγή αναφοράς

Στα πλαίσια της παρούσας ΔΔ, ως συντελεστής μεταφοράς θεωρήθηκε ο συντελεστής διόρθωσης αυτο-απορρόφησης φωτονίων f_γ , ο οποίος υπολογίστηκε με χρήση προσομοιώσεων με βάση τη σχέση 2.15. Ο συντελεστής αυτός εφαρμόστηκε στη συνέχεια στην πειραματικά μετρούμενη απόδοση του ανιχνευτή για την πηγή αναφοράς (Σχέση 2.16) προκειμένου να προσδιοριστεί η πραγματική απόδοση φωτοκορυφής για τη μελετούμενη γεωμετρία όγκου.

Η μέθοδος που έχει αναπτυχθεί στο εργαστήριο του ελληνικού ερευνητικού αντιδραστήρα για κυλινδρικά δείγματα και παρέχει τη δυνατότητα υπολογισμού των συντελεστών διόρθωσης για δείγματα γνωστής και άγνωστης σύστασης, βασίζεται στη χρήση του κώδικα MCNP για τη μοντελοποίηση των διατάξεων ακτινοβολίας και ανίχνευσης της ακτινοβολίας-γ και τον προσδιορισμό των αντίστοιχων συντελεστών διόρθωσης για μια σειρά υλικών που παρουσιάζουν ιδιαίτερο ενδιαφέρον για τις αναλύσεις με νετρονική ενεργοποίηση. Στο Σχήμα 2.7 παρουσιάζεται ο συντελεστής αυτο-θωράκισης νετρονίων, f_n , όπως έχει υπολογιστεί με τον κώδικα MCNP για κυλινδρικά δείγματα, ως συνάρτηση της αδιάστατης παραμέτρου x_0 [Tzika et al. (2004)]. Η παράμετρος x_0 εκφράζει το μέσο μέγεθος του δείγματος σε μονάδες μήκους διάχυσης θερμικών νετρονίων μέσα στο συγκεκριμένο υλικό του δείγματος και δίνεται από τη σχέση:

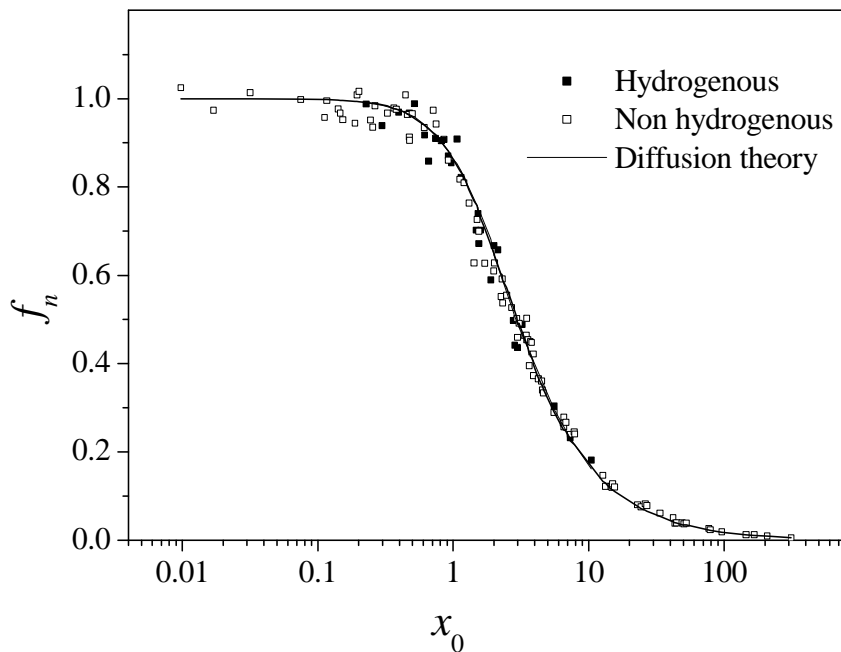
$$x_0 = \frac{r \times h}{(r + h) \times L} \quad (\text{Σχέση 2.17})$$

όπου

r: η ακτίνα του δείγματος

h: το ύψος του δείγματος και

L: το μήκος διάχυσης θερμικών νετρονίων μέσα στο συγκεκριμένο υλικό.



Σχήμα 2.7 Συντελεστής διόρθωσης αυτο-θωράκισης νετρονίων f_n συναρτήσει της αδιάστατης παραμέτρου x_0 [από Tzika et al. (2004)]

Στο Σχήμα 2.8 παρουσιάζεται –επίσης για κυλινδρικά δείγματα- ο συντελεστής διόρθωσης της απόδοσης ανίχνευσης ακτίνων- γ , f_γ , συναρτήσει της αδιάστατης μεταβλητής μ_0 [Tzika et al. (2004)]. Η μεταβλητή μ_0 εκφράζει το μέσο μέγεθος του δείγματος σε μονάδες μήκους μέσης ελεύθερης διαδρομής των φωτονίων μέσα στο συγκεκριμένο υλικό, για τη δεδομένη ενέργεια φωτονίων. Η τιμή της δίνεται από τη σχέση:

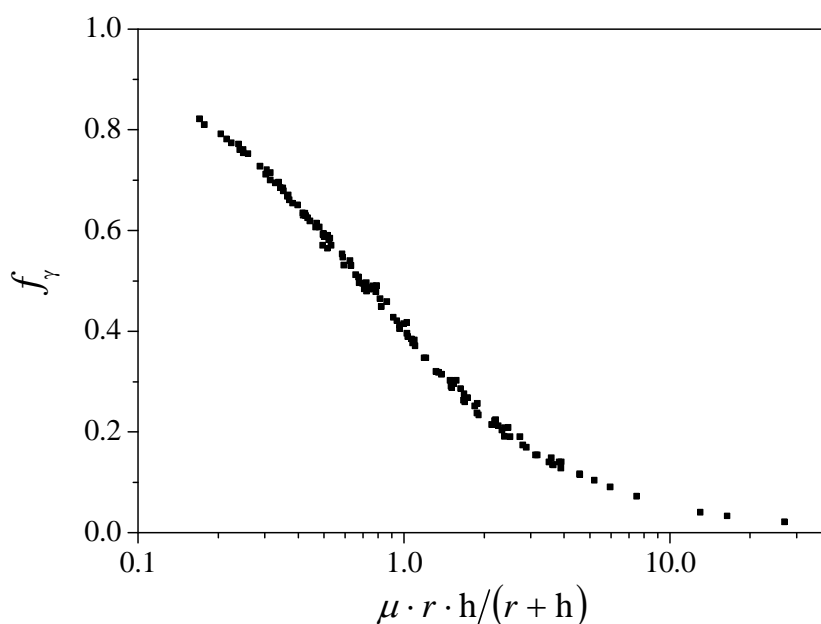
$$\mu_0 = \frac{\mu \times r \times h}{r + h} \quad (\text{Σχέση 2.18})$$

όπου

μ : ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης για το υλικό του δείγματος

r : η ακτίνα και

h : το ύψος του δείγματος



Σχήμα 2.8 Συντελεστής διόρθωσης απόδοσης αντίχενυσης ακτίνων-γ f_γ συναρτήσει της αδιάστατης παραμέτρου μ_0 [από Tzika et al. (2004)]

Οι γραφικές παραστάσεις των Σχημάτων 2.7 και 2.8 μπορούν να χρησιμοποιηθούν για τον προσδιορισμό των συντελεστών διόρθωσης για δείγματα διαφορετικών σχημάτων και διαστάσεων, με μοναδική προϋπόθεση να είναι γνωστή η στοιχειακή σύσταση ή έστω να είναι γνωστά τα βασικά στοιχεία που συνθέτουν το υλικό του δείγματος (matrix elements).

Στην περίπτωση δείγματος άγνωστης σύστασης, η εφαρμογή της μεθόδου προϋποθέτει συνδυασμό προσομοιώσεων και πειραματικών μετρήσεων. Συγκεκριμένα, είναι απαραίτητος ο πειραματικός προσδιορισμός της ροής θερμικών νετρονίων στην εξωτερική επιφάνεια του μεγάλου δείγματος κατά τη διαδικασία ακτινοβόλησης και του γραμμικού συντελεστή εξασθένησης του υπό μελέτη υλικού μέσω μετρήσεων διέλευσης ακτίνων-γ (transmission measurements). Ακολούθως οι συντελεστές διόρθωσης f_n και f_γ προσδιορίζονται μέσω των καμπυλών των Σχημάτων 2.7-2.8 και συνδυάζονται με τα πειραματικά μετρημένα μεγέθη βάσει των σχέσεων 2.14-2.16 προκειμένου να προσδιοριστούν τα ζητούμενα μεγέθη (ροή νετρονίων στον όγκο του μεγάλου δείγματος και απόδοση αντίχενυσης ακτίνων-γ για τη συγκεκριμένη γεωμετρία όγκου).

Η χρήση προσομοιώσεων για τον υπολογισμό των συντελεστών διόρθωσης παρουσιάζει σημαντικά πλεονεκτήματα έναντι των υπολοίπων μεθόδων. Εξασφαλίζει τη λεπτομερή περιγραφή του πεδίου νετρονίων αλλά και του πεδίου ακτίνων-γ καθώς και την ευελιξία στη γεωμετρική απεικόνιση του μεγάλου δείγματος. Ο παράγοντας αυτός είναι ιδιαίτερα σημαντικός, αφού η ακριβής προσομοίωση της γεωμετρίας του προβλήματος έχει σαν αποτέλεσμα μεγαλύτερη ακρίβεια κατά τον υπολογισμό των διορθωτικών παραγόντων. Επιπλέον, οι υπολογισμοί μπορούν να προσαρμοστούν σε οποιοδήποτε δείγμα, ανεξαρτήτως γεωμετρικών χαρακτηριστικών και σύστασης, κάτι που αποτελεί βασικό πλεονέκτημα στην περίπτωση της ανάλυσης αντικειμένων με «ασύμμετρα», «μη τυπικά» σχήματα, όπως είναι αυτά που συχνά απαντώνται στις μελέτες αρχαιολογικών κειμηλίων, περιβαλλοντικών δειγμάτων, γεωλογικών υλικών ή στερεών αποβλήτων.

Στα πλαίσια της παρούσας ΔΔ χρησιμοποιήθηκαν οι Monte Carlo κώδικες προσομοίωσης MCNP (Monte Carlo Neutron Particle) και PENELOPE ((PENetration and Energy LOss of Positrons and Electrons), οι οποίοι περιγράφονται αναλυτικά στο 4^ο Κεφάλαιο.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 3^ο – ΠΕΙΡΑΜΑΤΙΚΕΣ ΔΙΑΤΑΞΕΙΣ

Στα πλαίσια της παρούσας διατριβής χρησιμοποιήθηκαν δύο πειραματικές διατάξεις για τις αναλύσεις δειγμάτων μεγάλου όγκου με νετρονική ενεργοποίηση: η πρώτη είναι εγκατεστημένη στον ελληνικό ερευνητικό πυρηνικό αντιδραστήρα στο Ινστιτούτο Πυρηνικής Τεχνολογίας & Ακτινοπροστασίας (ΙΠΤ-Α) του ΕΚΕΦΕ ‘Δημόκριτος’ στην Αθήνα και η δεύτερη στον ερευνητικό πυρηνικό αντιδραστήρα του Reactor Institute Delft (RID) στην πόλη Delft της Ολλανδίας.

Οι δύο διατάξεις, που περιγράφονται αναλυτικά στη συνέχεια, αποτελούνται από δύο βασικά μέρη:

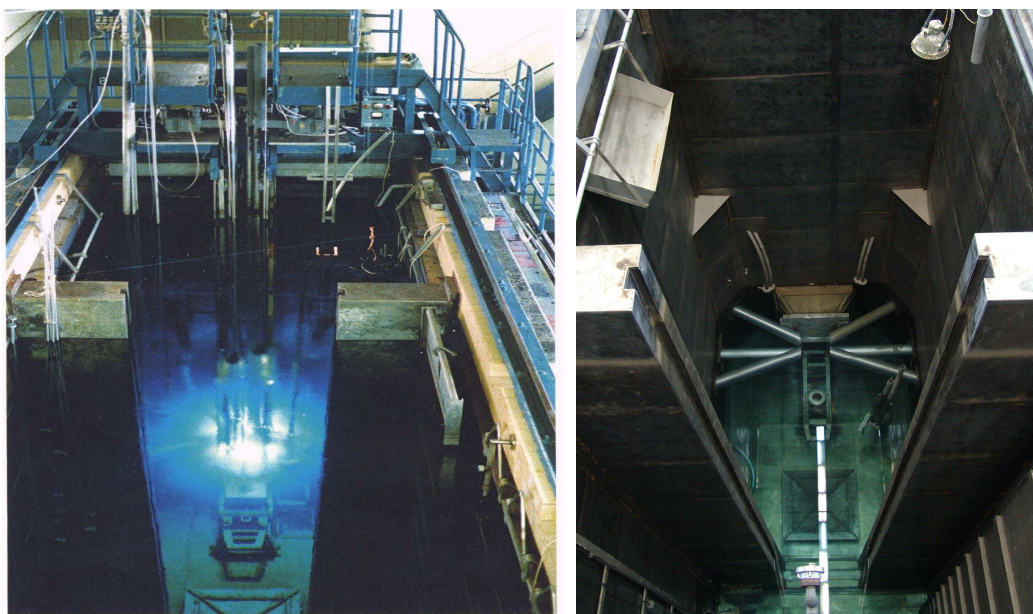
- α) τη διάταξη ακτινοβόλησης, όπου τα δείγματα ακτινοβολούνται σε πεδίο νετρονίων, και
- β) τη διάταξη ανίχνευσης, όπου πραγματοποιείται η ανίχνευση των ακτίνων-γ.

3.1 Πειραματική διάταξη GRR-1, ΕΚΕΦΕ ‘Δημόκριτος’

3.1.1. Διάταξη ακτινοβόλησης

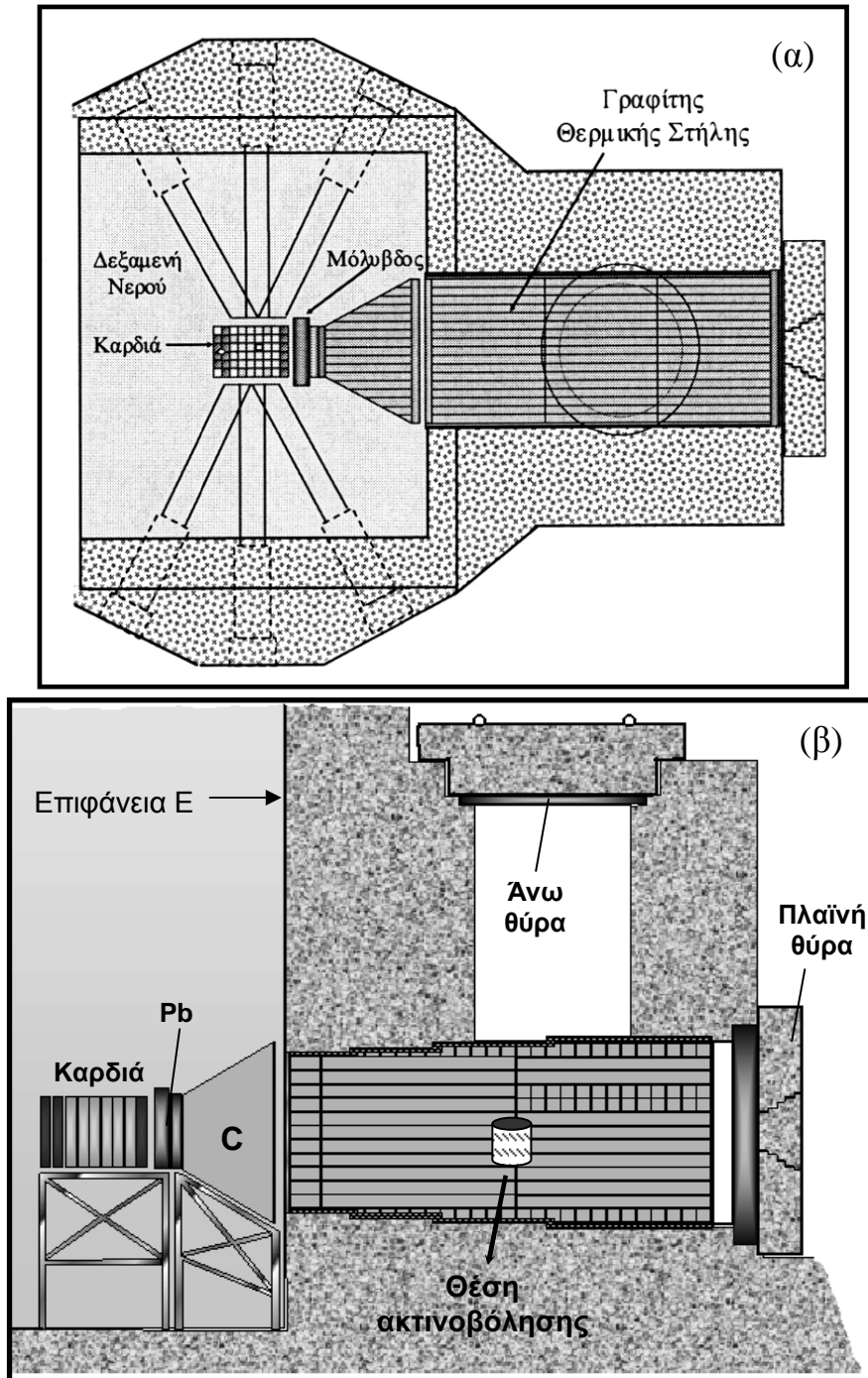
Ο Ελληνικός Ερευνητικός Πυρηνικός Αντιδραστήρας (Greek Research Reactor – GRR-1) είναι τύπου ανοιχτής δεξαμενής, θερμικής ισχύος 5MW (Σχήμα 3.1). Το σχάσιμο υλικό (καύσιμο) είναι εμπλουτισμένο ^{235}U ενώ ως μέσο επιβράδυνσης και ταυτόχρονα ως ψυκτικό μέσο χρησιμοποιείται νερό. Κατά την περίοδο 1999-2004 στα πλαίσια του διεθνούς προγράμματος ‘Reduced Enrichment for Test and Research Reactors’ (RETRR) το καύσιμο του αντιδραστήρα μετατράπηκε από υψηλού εμπλουτισμού (93%) σε χαμηλού εμπλουτισμού (29.75%) ^{235}U . Ως ανακλαστές νετρονίων χρησιμοποιούνται στοιχεία Βηρυλλίου (Be), τα οποία έχουν τοποθετηθεί στις 2 πλευρές του πυρήνα. Η βάση του πυρήνα (καρδιά) αποτελείται από ένα πλέγμα αλουμινίου 54 θέσεων, το οποίο επιτρέπει την τοποθέτηση των στοιχείων καυσίμου, των ράβδων ελέγχου, των ειδικών στοιχείων ακτινοβόλησης («παγίδες») καθώς και των στοιχείων ανακλαστή. Η διάταξη του πυρήνα του αντιδραστήρα (reactor core) επιτρέπει ακτινοβόληση δειγμάτων σε θερμικά, επιθερμικά και ταχέα νετρόνια, παρέχοντας δυνατότητες για παραγωγή μακροβίων ισοτόπων και αναλύσεις με νετρονική ενεργοποίηση. Παράλληλα, 6 πειραματικοί αγωγοί που «καταλήγουν» στην καρδιά του αντιδραστήρα,

εξασφαλίζουν δέσμες νετρονίων για τη διεξαγωγή μιας σειράς πειραμάτων, όπως για παράδειγμα σκέδασης ή περίθλασης νετρονίων.



Σχήμα 3.1 Η δεξαμενή του πυρηνικού αντιδραστήρα του ΕΚΕΦΕ 'Δημόκριτος' (α) πλήρης με νερό κατά τη διάρκεια λειτουργίας και (β) άδεια στη διάρκεια επισκευών

Η θερμική στήλη του ελληνικού αντιδραστήρα, η οποία χρησιμοποιείται για την ακτινοβολήση των δειγμάτων μεγάλου όγκου αποτελείται από ράβδους γραφίτη (reactor grade), έχει μήκος 282 cm, πλάτος 130 cm και ύψος 130 cm (Σχήμα 3.2). Όπως φαίνεται και στο Σχήμα 3.2, μεταξύ της θερμικής στήλης και της καρδιάς του αντιδραστήρα παρεμβάλλεται ένα ακόμα σώμα κωνικού σχήματος, μήκους 60 cm, το οποίο αποτελεί ουσιαστικά προέκταση της θερμικής στήλης. Ο κώνος αποτελείται από ράβδους γραφίτη και περιβάλλεται από φύλλα αλουμινίου. Η θερμική στήλη θωρακίζεται με βαρυντικό σκυρόδεμα. Ως επιπλέον θωράκιση χρησιμοποιείται ένα στρώμα Βοραλουμίνιο (Boral™) πάχους 1 cm καθώς και ανοξειδωτο ατσάλι πάχους 1.2 cm τα οποία περιβάλλουν το γραφίτη. Επίσης, για λόγους θωράκισης από την ακτινοβολία-γ, δύο πλάκες μολύβδου συνολικού πάχους 20 cm, έχουν τοποθετηθεί μεταξύ της καρδιάς του αντιδραστήρα και της κωνικής προέκτασης της θερμικής στήλης καθώς και στην θύρα πρόσβασης της στήλης. Η θέση ακτινοβολήσης, στην οποία τοποθετούνται τα προς ανάλυση μεγάλα δείγματα, απεικονίζεται στο Σχήμα 3.2. Το κέντρο του μεγάλου δείγματος απέχει 240 cm από την επιφάνεια της καρδιάς του αντιδραστήρα και βρίσκεται σε ύψος που αντιστοιχεί στο ήμισυ του ύψους των στοιχείων καυσίμου.



Σχήμα 3.2 Διδιάστατη αναπαράσταση της θερμικής στήλης και της καρδιάς του πυρηνικού αντιδραστήρα του ΕΚΕΦΕ 'Δημόκριτος' (α) κάτοψη (β) κάθετη τομή

Η θερμική στήλη του αντιδραστήρα διαθέτει σημαντικά πλεονεκτήματα που την καθιστούν ιδανική διάταξη για την ακτινοβόληση μεγάλων δειγμάτων. Καταρχήν η ροή θερμικών νετρονίων στη θερμική στήλη είναι της τάξης του $10^9 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ στην επιφάνεια εισόδου (επιφάνεια E) και $\sim 4 \times 10^6 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ στη θέση ακτινοβόλησης, για

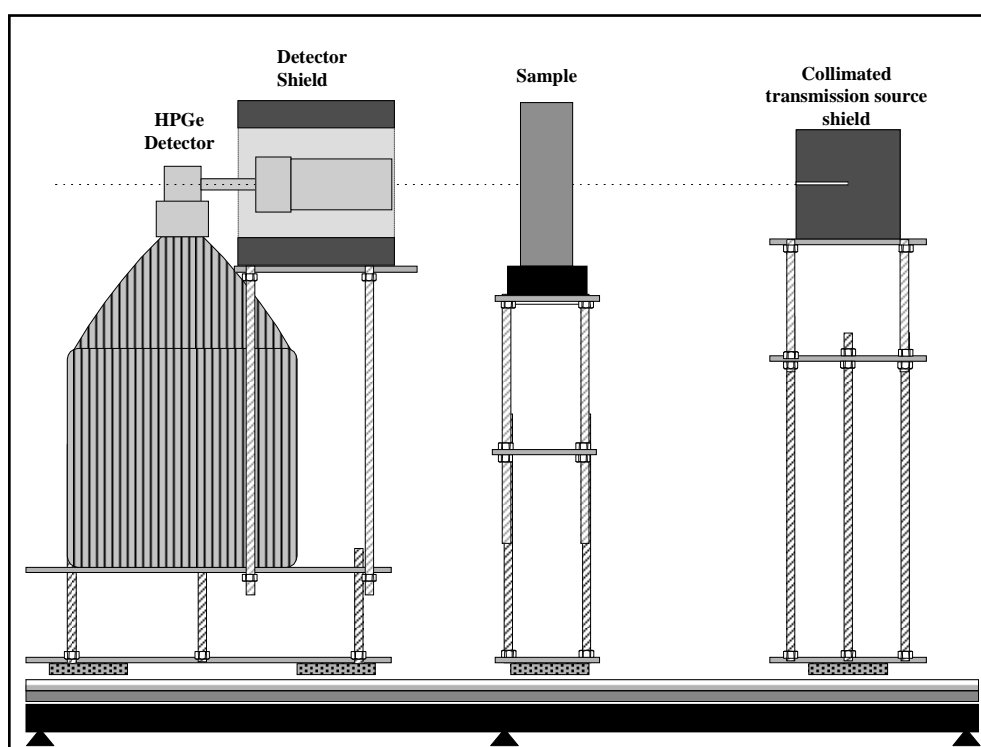
ισχύ λειτουργίας του αντιδραστήρα ίση με 5 MW [Τζίκια (2005)], τιμή που θεωρείται επαρκής για τους σκοπούς της ANE-ΔΜΟ. Επιπλέον, στη θέση ακτινοβόλησης ο λόγος της θερμικής προς την επιθερμική ροή νετρονίων είναι ~300, απουσία δείγματος, γεγονός που σημαίνει ότι η διόρθωση για τη θερμοποίηση των νετρονίων μέσα στον όγκο του δείγματος είναι μικρή και σε ορισμένες περιπτώσεις μπορεί να θεωρηθεί αμελητέα. Οι τυπικές διαστάσεις των δειγμάτων που μπορούν να τοποθετηθούν στην θέση ακτινοβόλησης είναι ύψους έως και 40 cm και διαμέτρου έως και 15 cm. Ωστόσο, ο σχεδιασμός της διάταξης εξασφαλίζει σημαντική ευελιξία καθώς επιτρέπει την τροποποίηση των διαστάσεων του διάκενου στο γραφίτη προκειμένου να εξυπηρετηθούν δείγματα μεγαλύτερων διαστάσεων, σε περιπτώσεις που αυτό απαιτείται από την εκάστοτε εφαρμογή. Παρέχει, επίσης, τη δυνατότητα «ξηρής ακτινοβόλησης» και επομένως δεν απαιτείται η εμβάπτιση του δείγματος στην δεξαμενή του αντιδραστήρα και η τοποθέτησή του ακολούθως σε υδατοστεγή δειγματοφορέα. Επιπλέον, η αξιοποίηση της θερμικής στήλης δεν έχει χρονικούς περιορισμούς, εφόσον δεν παρεμποδίζει την ταυτόχρονη λειτουργία του πυρηνικού αντιδραστήρα και δεν επηρεάζει τη χρήση άλλων πειραματικών διατάξεων. Ο σχεδιασμός της διάταξης επιτρέπει την πρόσβαση στη θερμική στήλη οριζόντια μέσω συρταρωτής θύρας από σκυρόδεμα και μολύβι, ενώ έχει προβλεφθεί και κάθετη πρόσβαση από το καπάκι του βαρυντικού σκυροδέματος (άνω θύρα), η οποία θα μπορεί μελλοντικά να αξιοποιηθεί (Σχήμα 3.3).



Σχήμα 3.3 Απόψεις της θερμικής στήλης του αντιδραστήρα GRR-1 και των θυρών οριζόντιας και κάθετης πρόσβασης στη θέση ακτινοβόλησης

3.1.2. Διάταξη ανίχνευσης ακτινοβολίας-γ

Η πειραματική διάταξη ανίχνευσης ακτινοβολίας-γ αναπτύχθηκε με βάση τις απαιτήσεις και τις προδιαγραφές που θέτει η ANE-ΔΜΟ ώστε να επιτρέπει τον χειρισμό μεγάλων δειγμάτων ποικίλων σχημάτων και διαστάσεων. Η διάταξη, που απεικονίζεται διδιάστατα στο Σχήμα 3.4, περιλαμβάνει έναν ομοαξονικό ημιαγωγό ανιχνευτή Γερμανίου τύπου p υψηλής καθαρότητας (High Purity Germanium - HPGe), ένα δειματοφορέα κατάλληλο για την τοποθέτηση μεγάλων δειγμάτων καθώς και σύστημα πηγής-κατευθυντήρα που παρέχει τη δυνατότητα πραγματοποίησης μετρήσεων διέλευσης ακτίνων-γ μέσα στο υλικό του δείγματος (transmission measurements). Ο ανιχνευτής περιβάλλεται από μολύβδινη θωράκιση πάχους 5 cm ενώ η πηγή που χρησιμοποιείται για τις μετρήσεις διέλευσης ακτίνων-γ θωρακίζεται με μόλυβδο πάχους 10 cm. Το σύστημα διαθέτει παράλληλο κυλινδρικό κατευθυντήρα διαμέτρου 0.5 mm ο οποίος μπορεί να ανοιγοκλείνει ώστε να εξασφαλίζει πλήρη θωράκιση της πηγής κατά τη διάρκεια των μετρήσεων ενεργότητας του εκάστοτε δείγματος.



Σχήμα 3.4. Διδιάστατη αναπαράσταση της διάταξης φασματοσκοπίας-γ μεγάλων δειγμάτων του GRR-1

Ο δειγματοφορέας πάνω στον οποίο τοποθετείται το μεγάλο δείγμα είναι περιστρεφόμενη τράπεζα τύπου 20600RT, η κίνηση της οποίας ελέγχεται μέσω ηλεκτρονικού υπολογιστή με χρήση κατάλληλου λογισμικού, επιτρέποντας τη συνεχή ή σταδιακή περιστροφή της τράπεζας, άρα και του δείγματος. Ο δειγματοφορέας διαθέτει ακόμα δυνατότητες κατακόρυφης μετακίνησης, παρέχοντας καθ' ύψος προσαρμογή του επιπέδου της τράπεζας σε σχέση με τον άξονα του ανιχνευτή. Όπως φαίνεται και από το Σχήμα 3.4, και τα τρία τμήματα της ανιχνευτικής διάταξης - ανιχνευτής, δειγματοφορέας, σύστημα πηγής-κατευθυντήρα- είναι τοποθετημένα πάνω σε ράγες αλουμινίου οι οποίες επιτρέπουν την οριζόντια κίνηση καθενός από τα τρία τμήματα και τη μεταβολή της σχετικής τους απόστασης. Η διάταξη παρέχει επίσης τη δυνατότητα προσαρμογής ενός κατευθυντήρα –κατασκευασμένου επίσης από μόλυβδο- μπροστά στον ανιχνευτή, ώστε να είναι δυνατή η πραγματοποίηση μετρήσεων κατευθυνόμενης σάρωσης (collimated scanning measurements).

Ο ανιχνευτής Γερμανίου είναι τύπου GEM 80, κατασκευασμένος από την εταιρεία EG&G ORTEC. Η ονομαστική διάμετρος του κρυστάλλου Γερμανίου είναι 81.5 mm και το μήκος του 57.5 mm (Παράρτημα Β). Η σχετική απόδοση του ανιχνευτή, όπως αυτή προσδιορίζεται σε σχέση με την απόδοση ανίχνευσης ακτίνων-γ ενός ανιχνευτή ιωδιούχου νατρίου (NaI (TI)) μεγέθους 3'x 3', είναι ίση με 85 %. Η διακριτική ικανότητα του ανιχνευτή, η οποία ορίζεται ως το εύρος μιας κορυφής αναφοράς στο ήμισυ του ύψους της (Full Width at Half Maximum-FWHM) [Knoll (2000)], είναι ίση με 1.66 keV για την φωτοκορυφή 1333 keV του ^{60}Co ενώ ο λόγος φωτοκορυφής προς Compton (peak to Compton ratio) είναι ίσος με 89:1. Για να αποφευχθεί η υπερθέρμανση του κρυστάλλου και να εξασφαλιστεί παράλληλα η σταθερή λειτουργία του συστήματος στην κατάλληλη θερμοκρασία, ο ανιχνευτής συνδέεται με ειδικά κατασκευασμένο δοχείο παροχής υγρού αζώτου.

Η ανιχνευτική διάταξη συμπληρώνεται με ένα πλήρως αυτοματοποιημένο σύστημα ηλεκτρονικών και λογισμικού, που περιλαμβάνει ηλεκτρονική διάταξη ενίσχυσης και ψηφιοποίησης του σήματος του ανιχνευτή, αναλογικό προ-φίλτρο (profilter), αναλυτή ύψους παλμών (multi-channel analyzer) καθώς και μια ηλεκτρονική μονάδα διόρθωσης των απωλειών λόγω νεκρού χρόνου (loss free counting mode). Η συλλογή και ανάλυση του φάσματος των ακτίνων-γ πραγματοποιείται με χρήση εξειδικευμένων λογισμικών φασματοσκοπίας, όπως είναι το Gamma Vision και το Gamma-W (των εταιρειών EG&G ORTEC - USA και Gesellschaft fur Kernspektrometrie - Germany, αντίστοιχα).

3.2 Πειραματική διάταξη RID, Delft, Ολλανδία

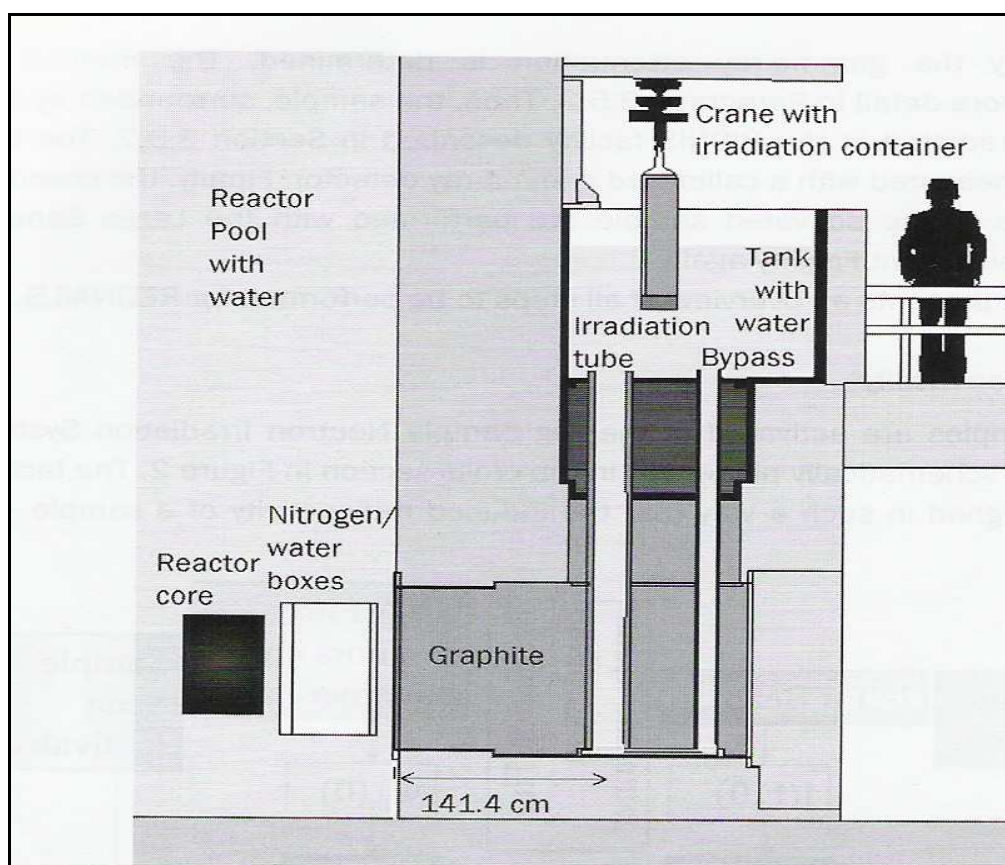
3.2.1. Διάταξη ακτινοβόλησης

Η διάταξη ακτινοβόλησης μεγάλων δειγμάτων (Big Sample Neutron Irradiation Facility - BISNIS) είναι εγκατεστημένη στη θερμική στήλη του Ολλανδικού ερευνητικού πυρηνικού αντιδραστήρα HOR (Hoger Onderwijs Reactor) του Ινστιτούτου RID στο Delft της Ολλανδίας. Ο αντιδραστήρας HOR είναι τύπου ανοιχτής δεξαμενής, θερμικής ισχύος 2 MW. Το καύσιμο είναι ^{235}U χαμηλού εμπλουτισμού (< 20%) ενώ ως επιβραδυντικό μέσο χρησιμοποιείται νερό. Η καρδιά του αντιδραστήρα αποτελείται από 20 στοιχεία καυσίμου τύπου MTR (Materials Test Reactor) και 4 στοιχεία ελέγχου. Σειρά στοιχείων Βηρυλλίου (Be) έχουν τοποθετηθεί στις 3 πλευρές του πυρήνα, λειτουργώντας ως ανακλαστές νετρονίων. Ο αντιδραστήρας παρέχει τη δυνατότητα νετρονικής ακτινοβόλησης σε μια σειρά θέσεων και διατάξεων, που αξιοποιούνται για την παραγωγή ραδιοϊσοτόπων και την ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση. Επιπλέον, στην καρδιά του αντιδραστήρα είναι εγκατεστημένοι 6 πειραματικοί αγωγοί-χωρισμένοι σε 2 δέσμες των 3 αγωγών σε αντικριστή θέση- οι οποίοι χρησιμοποιούνται κυρίως για τη διεξαγωγή πειραμάτων σκέδασης νετρονίων.

Η διάταξη BISNIS, η οποία απεικονίζεται στο Σχήμα 3.5, αποτελείται από ένα σύστημα κατακόρυφων αγωγών από αλουμίνιο, που είναι «βυθισμένοι» μέσα σε συμπαγή μπλοκ γραφίτη και συνδέονται στο άνω μέρος με δεξαμενή κατασκευασμένη από ανοξείδωτο ατσάλι. Τόσο η δεξαμενή όσο και οι δύο κατακόρυφοι αγωγοί είναι πλήρεις με νερό για λόγους θωράκισης του εξωτερικού χώρου από τα σκεδαζόμενα νετρόνια και την ακτινοβολία-γ. Οι δύο αγωγοί, ύψους περίπου 3.25 m, εδράζονται στο επίπεδο της θερμικής στήλης και επικοινωνούν μεταξύ τους στο κατώτερο τμήμα τους. Ο αγωγός με την μεγαλύτερη διάμετρο, που βρίσκεται πλησιέστερα στην καρδιά του αντιδραστήρα, αποτελεί ουσιαστικά τον αγωγό ακτινοβόλησης, μέσα στον οποίο «βυθίζεται» -με χρήση κατάλληλων συστημάτων με τροχαλίες- το μεγάλο δείγμα προκειμένου να ακτινοβοληθεί. Ο δεύτερος αγωγός χρησιμοποιείται, στη βάση των «συγκοινωνούντων δοχείων», ως οδός μεταφοράς και αποθήκευσης για τον όγκο του νερού που εκτοπίζεται από τον πρώτο αγωγό όταν σε αυτόν «βυθίζεται» το προς ακτινοβόληση δείγμα. Η δεξαμενή, που έχει ύψος ~1.5 m, περιβάλλεται από σκυρόδεμα πάχους 30 cm, το οποίο

εξασφαλίζει επαρκή θωράκιση από την ακτινοβολία-γ, δεδομένου ότι, εκτός από χώρο προετοιμασίας και εισαγωγής του μεγάλου δείγματος στη θέση ακτινοβόλησης, η δεξαμενή χρησιμεύει και ως χώρος αποθήκευσης του ενεργοποιημένου δείγματος μετά την ακτινοβόληση.

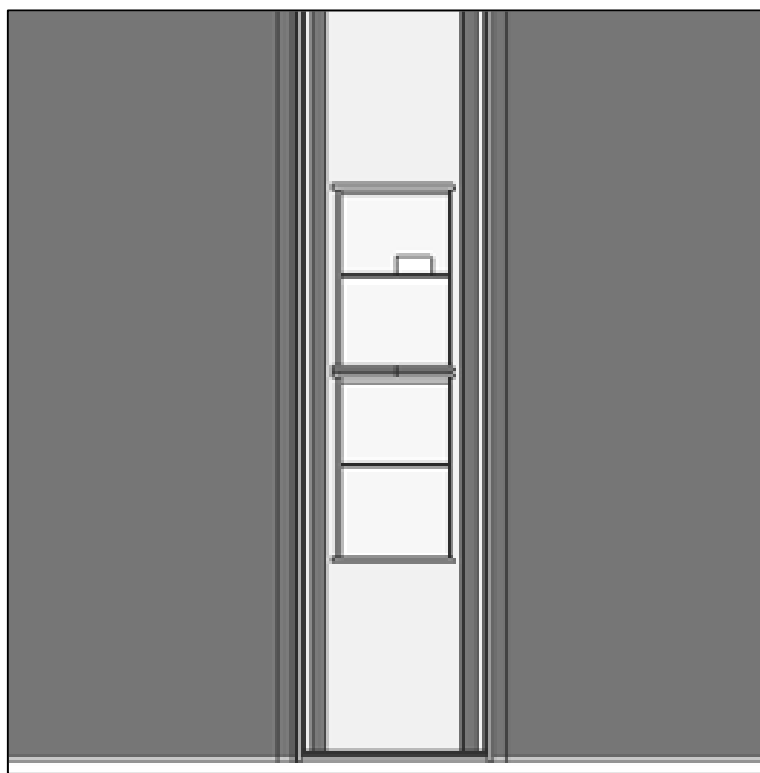
Όπως φαίνεται και στο Σχήμα 3.5, μεταξύ της θερμικής στήλης και της καρδιάς του αντιδραστήρα παρεμβάλλονται 3 «δοχεία», τα οποία είναι εγκατεστημένα μέσα στη δεξαμενή του αντιδραστήρα. Τα δοχεία αυτά (πλάτους 3, 6.5 και 55 cm) χρησιμοποιούνται για τη μεταβολή της νετρονικής ροής στη θερμική στήλη, καθώς μπορούν να πληρωθούν είτε με νερό είτε με αέριο άζωτο, επηρεάζοντας με τον τρόπο αυτό τη ροή νετρονίων στη θερμική στήλη.



Σχήμα 3.5 Δισδιάστατη αναπαράσταση (διατομή) της θερμικής στήλης και της καρδιάς του Ολλανδικού πυρηνικού αντιδραστήρα του RID [Baas (2004)]

Η εσωτερική διάμετρος του αγωγού ακτινοβόλησης είναι ίση με 22.0 cm στο σημείο σύνδεσης με τη δεξαμενή και 20.6 cm στη θέση ακτινοβόλησης. Συνεπώς, στη

συγκεκριμένη διάταξη μπορούν να ακτινοβοληθούν –κυλινδρικά κυρίως- δείγματα, ύψους έως και 1 m και διαμέτρου έως και 15 cm. Τα προς ακτινοβόληση δείγματα στερεώνονται μέσα σε πλέγμα πολυαιθυλενίου, για να αποφευχθεί η μετακίνησή τους κατά τη διάρκεια της ακτινοβόλησης. Ακολούθως, τοποθετούνται μέσα σε δεύτερο πλέγμα πάνω στο οποίο στερεώνονται τα ελάσματα που χρησιμοποιούνται για τη μέτρηση της νετρονικής ροής [Overwater (1994)], και στη συνέχεια σε τρίτο συμπαγές δοχείο πολυαιθυλενίου (δοχείο ακτινοβόλησης) το οποίο «βυθίζεται» μέσα στον αγωγό ακτινοβόλησης της θερμικής στήλης (Σχήμα 3.6). Σημειώνεται ότι το πάχος του νερού που περιβάλλει τα δοχεία ακτινοβόλησης όταν αυτά είναι βυθισμένα στον αγωγό ακτινοβόλησης είναι 3mm. Η κατασκευή της διάταξης παρέχει τη δυνατότητα περιστροφής –με τη βοήθεια κατάλληλου μηχανισμού- του εσωτερικού πλέγματος άρα και των δειγμάτων ως προς τον κατακόρυφο άξονα, διατηρώντας ταυτόχρονα σταθερό το δεύτερο πλέγμα στο οποίο στερεώνονται τα ελάσματα μέτρησης της ροής.



Σχήμα 3.6 Δισδιάστατη αναπαράσταση μεγάλων δειγμάτων μέσα στον αγωγό ακτινοβόλησης

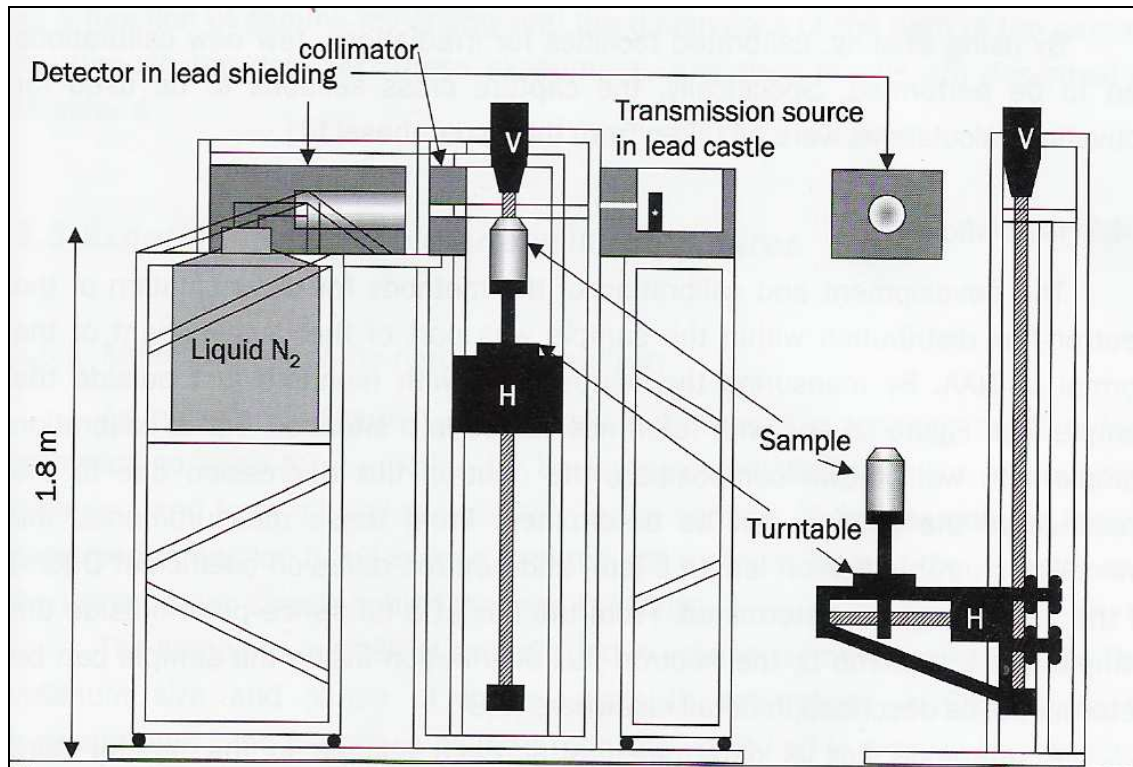
Η ροή των θερμικών νετρονίων στη θέση ακτινοβολήσης του BISNIS είναι της τάξης των $5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ενώ ο λόγος θερμικής προς επιθερμική ροή νετρονίων στην ίδια θέση είναι ~ 3300 . Επιπλέον, η συγκεκριμένη διάταξη, όντας εγκατεστημένη στη θερμική στήλη του αντιδραστήρα που είναι πλήρης με γραφίτη, εξασφαλίζει πλήρως θερμοποιημένα νετρόνια στο σημείο ακτινοβολήσης, ελαχιστοποιώντας την ανάγκη διόρθωσης για τη θερμοποίηση των νετρονίων μέσα στον όγκο του δείγματος [Bode (1996), Overwater et al. (1996)].

3.2.2. Διάταξη ανίχνευσης ακτινοβολίας-γ

Η διάταξη φασματοσκοπίας-γ που χρησιμοποιείται στις περιπτώσεις μεγάλων δειγμάτων αποτελείται από έναν ανιχνευτή Γερμανίου υψηλής καθαρότητας (HPGe), έναν περιστρεφόμενο δειγματοφορέα καθώς και σύστημα πηγής-κατευθυντήρα που παρέχει τη δυνατότητα πραγματοποίησης μετρήσεων εξασθένησης των ακτίνων-γ μέσα στο υλικό του δείγματος (Σχήμα 3.7). Ο ανιχνευτής περιβάλλεται από μολύβδινη θωράκιση και συνδέεται με δοχείο παροχής υγρού αζώτου. Η διάταξη παρέχει τη δυνατότητα προσαρμογής ενός κατευθυντήρα –κατασκευασμένου επίσης από μόλυβδο- μπροστά στον ανιχνευτή, ώστε να είναι δυνατή η πραγματοποίηση μετρήσεων κατευθυνόμενης σάρωσης (collimated scanning measurements). Κατάλληλοι μηχανισμοί κίνησης που ελέγχονται μέσω υπολογιστή, είναι προσαρμοσμένοι στο δειγματοφορέα, επιτρέποντας κατακόρυφη, οριζόντια αλλά και περιστροφική κίνηση του φορέα και κατά συνέπεια του δείγματος. Η πηγή ^{152}Eu που χρησιμοποιείται για τις μετρήσεις διέλευσης ακτίνων-γ θωρακίζεται μέσα σε κατασκευή από μόλυβδο, η οποία διαθέτει κατευθυντήρα που μετακινείται στην κατάλληλη θέση προκειμένου να δημιουργηθεί στενή δέσμη σάρωσης.

Ο ανιχνευτής Γερμανίου είναι κυλινδρικός τύπου GEM 90210-P. Η ονομαστική διάμετρος του κρυστάλλου Γερμανίου είναι 75.5 mm και το μήκος του 97.1 mm (Παράρτημα Β). Η σχετική απόδοση του ανιχνευτή, όπως αυτή προσδιορίζεται σε σχέση με την απόδοση ανίχνευσης ακτίνων-γ ενός ανιχνευτή ιωδιούχου νατρίου (NaI (Tl)) μεγέθους 3'x 3', είναι ίση με 96 %. Η διακριτική ικανότητα του ανιχνευτή, η οποία ορίζεται ως το εύρος μιας κορυφής αναφοράς στο ήμισυ του ύψους της (Full Width at Half Maximum-FWHM) [Knoll (2000)], είναι ίση με 1.82 keV για την φωτοκορυφή 1333 keV του ^{60}Co ενώ ο λόγος φωτοκορυφής προς Compton (peak to Compton ratio) είναι ίσος με 97:1 [Bode et al. (1997)].

Η διάταξη περιλαμβάνει ακόμα σύστημα ηλεκτρονικών, γεννήτρια παλμών, προ-ενισχυτή (preamplifier) και υπολογιστή με κατάλληλο λογισμικό συλλογής και επεξεργασίας των φασματοσκοπικών δεδομένων.



Σχήμα 3.7. Δισδιάστατη αναπαράσταση της διάταξης φασματοσκοπίας-γ μεγάλων δειγμάτων του RID [Baas (2004)]

3.3 Κριτική σύγκριση διατάξεων GRR-1 & RID

Τα κυριότερα χαρακτηριστικά των διατάξεων ακτινοβόλησης και φασματοσκοπίας- γ που χρησιμοποιήθηκαν στα πλαίσια της παρούσας $\Delta\Delta$ παραθέτονται συγκριτικά στους Πίνακες 3.1 και 3.2, αντίστοιχα.

	GRR-1	RID
Αντιδραστήρας	Τύπου ανοιχτής δεξαμενής	Τύπου ανοιχτής δεξαμενής
Ισχύς αντιδραστήρα	5 MW	2 MW
Διάταξη ακτινοβόλησης	Θερμική στήλη	Θερμική στήλη
Ροή θερμικών νετρονίων στη θέση ακτινοβόλησης	$4 \times 10^6 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	$5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$
Λόγος θερμικής προς επιθερμική ροή νετρονίων	~300	~3300
Δείγματα	Κυρίως κυλινδρικά	Κυρίως κυλινδρικά
Διαστάσεις δείγματος	ύψος έως και 40 cm και διάμετρος έως και 15 cm	ύψος έως και 1 m και διάμετρος έως και 15 cm
Πρόσβαση/ εισαγωγή δείγματος	Οριζόντια	Κατακόρυφη
Τροποποίηση ροής	-	Δοχεία νερού / αζώτου

Πίνακας 3.1 Χαρακτηριστικά των διατάξεων ακτινοβόλησης που χρησιμοποιήθηκαν

	GRR-1	RID
Ανιχνευτής	Γερμανίου - HPGe	Γερμανίου - HPGe
Σχετική απόδοση	85 %	96 %
FWHM	1.66 keV	1.82 keV
Peak to Compton ratio	89:1	97:1
Μήκος Κρυστάλλου	57.5 mm	97.1 mm
Διάμετρος κρυστάλλου	81.5 mm	75.5 mm
Κίνηση δειματοφορέα	Περιστροφή / κατακόρυφα / οριζόντια	Περιστροφή / κατακόρυφα / οριζόντια

Πίνακας 3.2 Χαρακτηριστικά των ανιχνευτικών διατάξεων που χρησιμοποιήθηκαν

Όπως φαίνεται και από τους παραπάνω πίνακες, οι δύο πειραματικές εγκαταστάσεις παρουσιάζουν αρκετές ομοιότητες, έχουν ωστόσο και σημαντικές διαφορές. Και οι δύο διατάξεις ακτινοβολήσης, για παράδειγμα, είναι εγκατεστημένες σε θερμικές στήλες αντιδραστήρων ίδιου τύπου. Η ροή θερμικών νετρονίων στη θέση ακτινοβολήσης της θερμικής στήλης του GRR-1 έχει αρκετά χαμηλότερη τιμή (κατά 2 τάξεις μεγέθους) από την αντίστοιχη του RID, γεγονός που οφείλεται αφενός στη μεγαλύτερη απόσταση του δείγματος από την καρδιά του αντιδραστήρα αφετέρου στην απουσία δοχείου αζώτου στη διάταξη του GRR-1. Η αυξημένη θερμική ροή στη διάταξη του RID συνεπάγεται μικρότερο χρόνο ακτινοβολήσης άρα και μεγαλύτερο αριθμό δειγμάτων που μπορούν να ακτινοβοληθούν στον ίδιο χρόνο, σε σύγκριση με τον GRR-1. Επιπλέον, η θέση της θερμικής στήλης του RID και ο τρόπος εισαγωγής του δείγματος στον αγωγό ακτινοβολήσης παρέχουν τη δυνατότητα για συνεχείς ακτινοβολήσεις και μεγαλύτερο κατά συνέπεια ρυθμό αναλύσεων σε κάθε κύκλο ακτινοβολήσης, επιτρέποντας την τυποποίηση της διαδικασίας. Από την άλλη, στο GRR-1 η εισαγωγή του δείγματος γίνεται «χειροκίνητα» μέσω της πλαϊνής θύρας, κάτι που εξασφαλίζει μεγαλύτερη ευελιξία τόσο στην επιλογή της θέσης ακτινοβολήσης άρα και της ροής, όσο και στο μέγεθος και σχήμα των δειγμάτων.

Όσον αφορά στις διατάξεις ανίχνευσης της ακτινοβολίας- γ , αποτελούνται και οι δύο από ανιχνευτές ίδιου τύπου (υπερκαθαρού Γερμανίου). Αξίζει βέβαια να σημειωθεί ότι οι ανιχνευτές Γερμανίου χρησιμοποιούνται σχεδόν αποκλειστικά στην ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση, ακριβώς επειδή συνδυάζουν πολύ καλή διακριτική ικανότητα και ικανοποιητική απόδοση. Ο ανιχνευτής του RID έχει υψηλότερη απόδοση από αυτόν του GRR-1, παρουσιάζει χειρότερη όμως διακριτική ικανότητα. Και οι δύο διατάξεις παρέχουν τη δυνατότητα προσαρμογής μολύβδινου κατευθυντήρα μπροστά στον ανιχνευτή, ώστε να είναι δυνατή η πραγματοποίηση μετρήσεων κατευθυνόμενης σάρωσης (collimated scanning measurements). Τέλος, μεγάλες είναι οι ομοιότητες και στη γενική δομή των ανιχνευτικών διατάξεων, στους δειγματοφορείς και τα συστήματα μετρήσεων διέλευσης ακτίνων- γ .

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 4^ο – ΠΡΟΣΟΜΟΙΩΣΕΙΣ MONTE CARLO

Η χρήση προσομοιώσεων είναι ένα σημαντικό εργαλείο που αξιοποιείται - όπως ήδη περιγράφηκε στο 2ο Κεφάλαιο- κατά τη διαδικασία υπολογισμού των συντελεστών διόρθωσης αυτο-θωράκισης των νετρονίων και αυτο-απορρόφησης των φωτονίων, παρέχοντας μεγάλη ευελιξία και ταυτόχρονα λεπτομέρεια στο χειρισμό πολύπλοκων γεωμετριών και σύνθετων προβλημάτων. Στο παρόν κεφάλαιο, παρουσιάζεται η τεχνική προσομοίωσης Monte Carlo καθώς και οι κώδικες που χρησιμοποιήθηκαν στα πλαίσια της παρούσας ΔΔ. Το κεφάλαιο ολοκληρώνεται με την περιγραφή της διαδικασίας προσομοίωσης των πειραματικών διατάξεων.

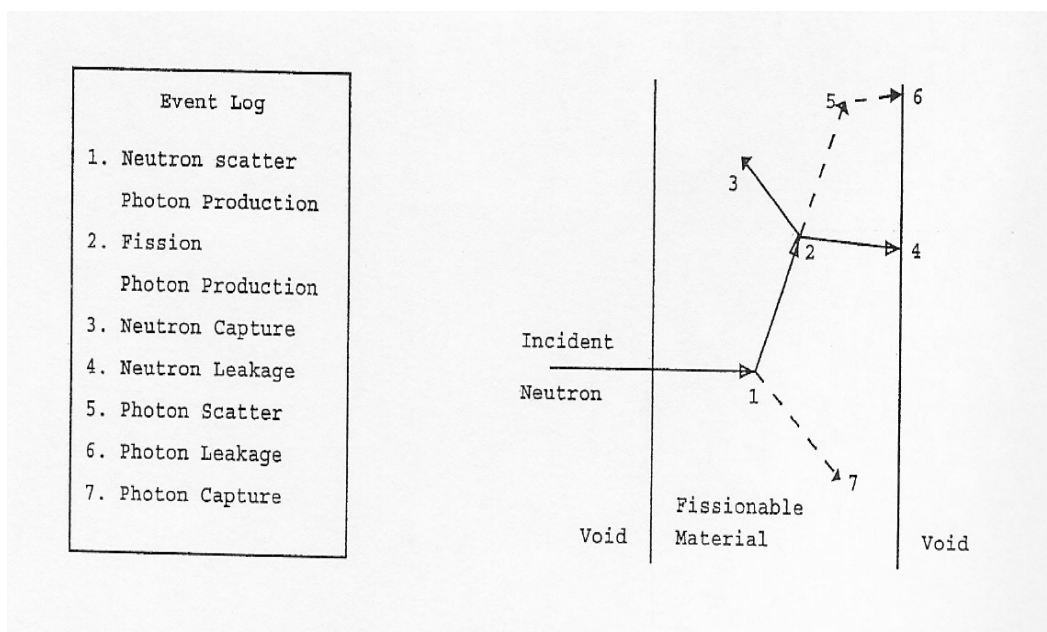
4.1 Η τεχνική προσομοίωσης Monte Carlo

Στην προσομοίωση της μεταφοράς της ακτινοβολίας στην ύλη με τη μέθοδο Monte Carlo, η ιστορία ενός σωματιδίου αντιμετωπίζεται ως μια τυχαία ακολουθία από ελεύθερες διαδρομές, όπου κάθε μία ολοκληρώνεται με μια αλληλεπίδραση του σωματιδίου. Η αλληλεπίδραση αυτή μπορεί να οδηγήσει σε αλλαγή της διεύθυνσης κίνησης του σωματιδίου, σε απώλεια μέρους της ενέργειάς του και –σε ορισμένες περιπτώσεις- σε παραγωγή δευτερογενών σωματιδίων. Η επανάληψη της διαδικασίας συνεχίζεται μέχρι να χάσει το σωματίδιο όλη την ενέργειά του ή να εξέλθει των προκαθορισμένων ορίων του συστήματος. Με το πέρας της ιστορίας, καταγράφονται τα διάφορα φυσικά μεγέθη που αφορούν τη διάδοση του σωματιδίου (π.χ. ενέργεια που απέθεσε σε συγκεκριμένη θέση στο χώρο, γωνία εισόδου ή εξόδου από ορισμένη επιφάνεια κ.α.). Η διαδικασία προσομοίωσης μιας ιστορίας στηρίζεται σε μοντέλα αλληλεπίδρασης σωματιδίων με την ύλη, τα οποία λαμβάνουν υπ' όψιν τους φυσικούς νόμους και μηχανισμούς που διέπουν μια αλληλεπίδραση. Υπό την προϋπόθεση ότι ο αριθμός των παραγόμενων ιστοριών είναι αρκετά μεγάλος, οι μέσες τιμές των φυσικών μεγεθών που καταγράφονται με την ολοκλήρωση κάθε ιστορίας προσεγγίζουν τις αντίστοιχες πραγματικές τιμές με ικανοποιητική ακρίβεια.

Η δημιουργία μίας ιστορίας στηρίζεται στη διαδικασία της στατιστικής δειγματοληψίας, η οποία υλοποιείται με την επιλογή τυχαίων αριθμών, μία διαδικασία που μπορεί να θωρηθεί αντίστοιχη με τη ρίψη ενός ζαριού, εξ ου και η

ονομασία “Monte Carlo”. Σε ότι αφορά τη μεταφορά των σωματιδίων, η τεχνική Monte Carlo είναι εξαιρετικά ρεαλιστική, θα μπορούσε να θεωρηθεί ότι μπορεί να προσομοιώσει πλήρως ένα πείραμα. Συνίσταται στην παρακολούθηση της πορείας καθενός από τα σωματίδια που προέρχονται από μια πηγή ακτινοβολίας, ακολουθώντας όλη τη διαδρομή της «ζωής» ενός σωματιδίου μέσα στην ύλη έως το «θάνατό» του σε κάποια τερματική κατηγορία (απορρόφηση, διαφυγή κλπ.).

Τα διακριτά πιθανά γεγονότα που αποτελούν μια διαδικασία αλληλεπίδρασης του σωματιδίου με την ύλη προσομοιώνονται διαδοχικά. Με βάση προκαθορισμένες κατανομές πιθανότητας (Probability Distribution Functions) τα χαρακτηριστικά του σωματιδίου ή του φωτονίου επιλέγονται με τυχαία δειγματοληψία σε κάθε βήμα «ζωής»-πορείας του σωματιδίου. Ένα παράδειγμα «ιστορίας» ενός σωματιδίου μέσα στην ύλη απεικονίζεται στο Σχήμα 4.1.



Σχήμα 4.1 Σχηματική αναπαράσταση αλληλεπίδρασης σωματιδίου με την ύλη

Στο Σχήμα 4.1 περιγράφεται το τυχαίο περιστατικό πρόσπτωσης ενός νετρονίου σε μία πλάκα υλικού. Επιλογή τυχαίων αριθμών μεταξύ του 0 και του 1 καθορίζουν σε κάθε βήμα που ακριβώς θα λάβει χώρα μία αλληλεπίδραση και τι είδους θα είναι αυτή, με βάση πάντα τους φυσικούς νόμους και τις πιθανότητες που χαρακτηρίζουν τις αλληλεπιδράσεις και τα υλικά που εμπλέκονται.

Στο συγκεκριμένο παράδειγμα, περιγράφεται μία υποθετική ιστορία, η οποία αρχίζει με μια σκέδαση νετρονίου (συμβάν 1). Το νετρόνιο σκεδάζεται στην διεύθυνση που φαίνεται, η οποία έχει επιλεγεί τυχαία από συνάρτηση που εκφράζει τη γωνιακή κατανομή σκέδασης νετρονίου συγκεκριμένης ενέργειας από τον πυρήνα του υλικού που αποτελεί το μέσο διάδοσης. Λόγω της σκέδασης παράγεται και ένα φωτόνιο, το οποίο προσωρινά «αποθηκεύεται» για να αναλυθεί αργότερα. Ακολούθως προκύπτει σχάση (συμβάν 2) με αποτέλεσμα το «θάνατο» -τερματισμό της πορείας- του εισερχόμενου νετρονίου και την «παραγωγή» δύο νέων, εξερχόμενων νετρονίων και ενός φωτονίου. Το φωτόνιο καθώς και το ένα νετρόνιο «αποθηκεύονται» για μεταγενέστερη ανάλυση. Το έτερο νετρόνιο δεσμεύεται -διαδικασία νετρονικής σύλληψης- (συμβάν 3) και η διαδρομή του τερματίζεται. Το «αποθηκευμένο» νετρόνιο τώρα ανακτάται και μετά από τυχαία, πάντα, επιλογή διαφεύγει από την πλάκα (συμβάν 4). Το παραγόμενο από τη διάσπαση φωτόνιο σκεδάζεται (συμβάν 5) και εξέρχεται της πλάκας (συμβάν 6). Το εναπομείναν φωτόνιο, που είχε «παραχθεί» από την αρχική σύγκρουση (συμβάν 1) και είχε «αποθηκευτεί», παρακολουθείται τώρα έως τη σύλληψή του (συμβάν 7). Η ιστορία του αρχικού νετρονίου ολοκληρώνεται στο σημείο αυτό. Μην έχοντας άλλα σωματίδια σε αναμονή, η ιστορία τερματίζεται. Στη συνέχεια, ξεκινάει νέα ιστορία με νέο νετρόνιο που εισέρχεται στην πλάκα. Με την παρακολούθηση και ολοκλήρωση όλο και περισσότερων τέτοιων ιστοριών, και την καταγραφή για κάθε ιστορία διαφόρων πληροφοριών που επιλέγει ο χρήστης, όπως την ενέργεια και τη γωνία του εξερχόμενου φωτονίου και νετρονίου, την ενέργεια που αποτίθεται σε μία θέση κλπ, είναι δυνατή εκτίμηση μίας σειράς μεγεθών και κατανομών για τα χαρακτηριστικά των εμπλεκόμενων σωματιδίων. Τα μεγέθη που ενδιαφέρουν καταγράφονται μαζί με εκτιμήσεις της στατιστικής ακρίβειας (αβεβαιότητας) των αποτελεσμάτων.

Όπως φαίνεται από τα παραπάνω, η τεχνική Monte Carlo μπορεί να χρησιμοποιηθεί για την θεωρητική «επανάληψη» μιας στατιστικής διαδικασίας, όπως είναι η αλληλεπίδραση σωματιδίων με την ύλη, και είναι χρήσιμη ιδιαίτερα για σύνθετα προβλήματα που δε μπορούν να περιγραφούν με υπολογιστικούς κώδικες, οι οποίοι κάνουν χρήση ντετερμινιστικών μεθόδων και αναλυτικών σχέσεων. Η τεχνική είναι ιδανική για την επίλυση πολύπλοκων, τρισδιάστατων προβλημάτων και χρησιμοποιείται ευρέως για την επίλυση σύνθετων φυσικών προβλημάτων σε πολλά

πεδία της έρευνας και της τεχνολογίας, όπως για υπολογισμούς θωρακίσεων και ανιχνευτικών συστημάτων, δοσιμετρικούς υπολογισμούς κλπ.

Πληθώρα κωδίκων βασισμένων στη μέθοδο Monte Carlo, έχει αναπτυχθεί τα τελευταία χρόνια, οι περισσότεροι εκ των οποίων συνεχώς αναβαθμίζονται-εμπλουτίζονται με νέες εκδόσεις. Ενδεικτικά αναφέρονται οι κώδικες: ETRAN [Beger & Seltzer (1968)], EGS4 [Nelson et al. (1985)], GEANT3 [Brun et al. (1987)], CYLTRAN [Halbleib & Mehlhorn (1986)], ITS3 [Halbleib et al. (1992)], MCNP4 [Briesmeister (1997)], EGSnrc [Kawrakow (2000)], EFFTRAN [Vidmar (2005)], PENELOPE [Salvat et al. (1996)]. Οι παραπάνω Κώδικες Monte Carlo χρησιμοποιούνται ευρύτατα για την προσομοίωση πολύπλοκων γεωμετριών και αποτελούν μοναδικό εργαλείο για την επίλυση προβλημάτων όπου είναι εξαιρετικά δύσκολη ή αδύνατη η διεξαγωγή πειραμάτων. Χρησιμοποιούνται ευρέως σε τομείς όπως η πυρηνική τεχνολογία, η ακτινοπροστασία, η βιοϊατρική και η πυρηνική ιατρική.

Πλήθος εφαρμογών των μεθόδων προσομοίωσης Monte Carlo αφορά στη βαθμονόμηση ανιχνευτικών διατάξεων φωτονίων και πιο συγκεκριμένα στον υπολογισμό της απόδοσης φωτοκορυφής και της ολικής απόδοσης των ανιχνευτών [Karamanis (2003), Rodenas et al. (2000), Hernandez & El-Daoushy (2003), Saegusa et al. (2004), Vidmar & Likar (2005)] και στην προσομοίωση πεδίων νετρονίων [Tzika & Stamatelatos (2004)].

Στα πλαίσια της παρούσας ΔΔ, για τον υπολογισμό των συντελεστών διόρθωσης, επιλέχθηκε να χρησιμοποιηθούν δύο κώδικες: ο κώδικας MCNP (έκδοση 5) και ο κώδικας PENELOPE (οι εκδόσεις του 2005 και του 2008).

4.2 Ο κώδικας MCNP

Ο κώδικας προσομοίωσης MCNP δημιουργήθηκε για τη μελέτη προβλημάτων μεταφοράς φωτονίων, ηλεκτρονίων, νετρονίων καθώς και συνδυασμών τους (φωτόνια-νετρόνια και ηλεκτρόνια-φωτόνια) μέσα από πολύπλοκα γεωμετρικά σχήματα και υλικά. Αναπτύχθηκε το 1963, σε πρώτη ακόμα μορφή και με πολύ περιορισμένες δυνατότητες, αρχικά με την ονομασία MCS, από ομάδα επιστημόνων του εθνικού εργαστηρίου Los Alamos των ΗΠΑ. Στην πορεία των ετών ο κώδικας βελτιώθηκε και εμπλουτίστηκε, φτάνοντας στη σημερινή μορφή και ονομασία του - Monte Carlo N-Particle- περικλείοντας τη δυνατότητα προσομοίωσης N σωματιδίων. Η έκδοση MCNP5 που χρησιμοποιήθηκε στα πλαίσια της παρούσας ΔΔ, κυκλοφόρησε από το εργαστήριο του Los Alamos το 2003, εμπλουτισμένη με μια σειρά βελτιώσεις και αναβαθμίσεις (ενημερωμένες βιβλιοθήκες, βελτιωμένη γραφική απεικόνιση του προβλήματος) [X-5 Monte Carlo Team (2003)].

Ο κώδικας MCNP, ο οποίος έχει αναπτυχθεί σε γλώσσα FORTRAN, μπορεί να χειριστεί φωτόνια και ηλεκτρόνια με ενέργειες που κυμαίνονται από 1 keV έως 1000 MeV και νετρόνια με ενέργειες από 10^{-11} MeV έως 20 MeV. Για την εκτέλεσή του απαιτείται καταρχήν η αναλυτική περιγραφή του προβλήματος εκ μέρους του χρήστη, μέσω κατάλληλα διαμορφωμένου αρχείου εισόδου. Ο κώδικας "διαβάζει" το αρχείο εισόδου, επεξεργάζεται τα δεδομένα που περιέχονται σε αυτό και ξεκινάει στη συνέχεια την εκτέλεση των ιστοριών. Προκειμένου να δημιουργήσει τις ιστορίες των σωματιδίων που προσομοιώνονται, ο κώδικας χρησιμοποιεί δεδομένα από βιβλιοθήκες ενεργών διατομών, οι οποίες περιλαμβάνουν πληροφορία για αντιδράσεις αλληλεπίδρασης φωτονίων, ηλεκτρονίων και νετρονίων με την ύλη. Με την ολοκλήρωση του προκαθορισμένου από το χρήστη αριθμού ιστοριών, υπολογίζει τα ζητούμενα μεγέθη και καταγράφει τα αποτελέσματα στο αρχείο εξόδου. Σημειώνεται ότι ο κώδικας MCNP παρέχει τη δυνατότητα προσομοίωσης ιδιαίτερα περίπλοκων προβλημάτων και γεωμετριών, συμπεριλαμβανομένων και πηγών όγκου.

Η περιγραφή της δομής του κώδικα καθώς και των εικονικών ανιχνευτών που χρησιμοποιεί παρουσιάζονται στο Παράρτημα Γ, όπου παραθέτονται ενδεικτικά παραδείγματα αρχείων εισόδου και εξόδου καθώς και δισδιάστατες απεικονίσεις που έχουν παραχθεί με χρήση των γραφικών εργαλείων. Αναλυτικότερη περιγραφή του κώδικα MCNP μπορεί να βρεθεί στη βιβλιογραφία [X-5 Monte Carlo Team (2003)].

4.3 Ο κώδικας PENELOPE

Ο κώδικας PENELOPE δημιουργήθηκε για την προσομοίωση των αλληλεπιδράσεων β-σωματιδίων και φωτονίων με την ύλη. Αναπτύχθηκε από τους F. Salvat, J. M. Fernandez-Varea και J. Sempau στο Πανεπιστήμιο της Βαρκελώνης (1996). Την πρώτη αυτή έκδοση του κώδικα έχουν ακολουθήσει πολλές νέες - εμπλουτισμένες κυρίως σε επίπεδο βιβλιοθηκών- εκδόσεις. Η ονομασία του κώδικα προέρχεται από τα αρχικά των λέξεων PENetration and Energy LOSS of Positrons and Electrons. Πρόκειται για ένα κώδικα που είχε αρχικά σχεδιασθεί για να προσομοιώνει τη διάδοση ποζιτρονίων και ηλεκτρονίων μέσα στην ύλη, μέσα από σύνθετες κατασκευές αποτελούμενες από ποικίλα υλικά. Η δυνατότητα προσομοίωσης φωτονίων προστέθηκε λίγο αργότερα και γι' αυτό δεν περιέχεται στην ονομασία του κώδικα.

Η διαδικασία της προσομοίωσης, η οποία μπορεί να εφαρμοστεί για εύρος ενεργειών από 50 eV έως 1 GeV, απαιτεί αρχικά την αναλυτική περιγραφή του προς εξέταση προβλήματος. Τα απαραίτητα για την προσομοίωση δεδομένα παρέχονται από το χρήστη μέσω κατάλληλα διαμορφωμένων αρχείων εισόδου. Λαμβάνοντας υπόψη αφ' ενός τα αρχικά δεδομένα αφ' ετέρου τους φυσικούς νόμους και μηχανισμούς που διέπουν μια αλληλεπίδραση, ο κώδικας «δημιουργεί» το πλήθος ιστοριών που επιλέγει ο χρήστης. Μετά την ολοκλήρωση της σειράς των ιστοριών, το πρόγραμμα δίνει στο χρήστη τα αποτελέσματα των ζητούμενων μεγεθών.

Ο αλγόριθμος της προσομοίωσης βασίζεται στο μοντέλο σκεδάσεων (scattering model), το οποίο συνδυάζει αριθμητικές βάσεις δεδομένων με αναλυτικά μοντέλα της ενεργού διατομής για διάφορους μηχανισμούς αλληλεπιδράσεων. Ο κώδικας, που είναι γραμμένος σε γλώσσα FORTRAN, αποτελείται από ένα σύνολο υπορουτινών, οι οποίες αναλαμβάνουν να πραγματοποιήσουν την προσομοίωση των αλληλεπιδράσεων της ακτινοβολίας με την ύλη. Για τον πλήρη έλεγχο της προσομοίωσης και για την πλήρη πρόσβαση σε όλες τις πληροφορίες και βάσεις δεδομένων, ο χρήστης πρέπει να «γράψει» το δικό του Κυρίως Πρόγραμμα. Αυτό το Κυρίως Πρόγραμμα θα πρέπει να ελέγχει την εξέλιξη της ιστορίας-τροχιάς (track) του κάθε σωματιδίου κατά την προσομοίωση και να καταχωρεί σε αρχεία τις ποσότητες που ενδιαφέρουν το χρήστη.

Στο πακέτο που διανέμεται ο κώδικας υπάρχουν, για τη διευκόλυνση του χρήστη, τρία έτοιμα Κυρίως Προγράμματα, τα οποία μπορούν βέβαια να

εφαρμοστούν για συγκεκριμένες γεωμετρίες, αλλά και να τροποποιηθούν κατάλληλα για άλλες γεωμετρίες. Παρ'όλα αυτά, κανένα από τα έτοιμα Κυρίως Προγράμματα δε μπορεί να χειριστεί περιπτώσεις όπου η εκπομπή των σωματιδίων γίνεται από πηγή όγκου καθώς και τα τρία προβλέπουν μόνο προσομοιώσεις σημειακών πηγών. Στην περίπτωση που επιθυμείται η προσομοίωση πηγής όγκου, ο χρήστης πρέπει να συγκροτήσει το δικό του κώδικα ή να τροποποιήσει σχετικά έναν από τους διαθέσιμους Κώδικες Χρήστη.

Σημειώνεται ότι στην παρούσα ΔΔ χρησιμοποιήθηκαν οι βελτιωμένες και εμπλουτισμένες εκδόσεις του 2005 και του 2008.

Στο Παράρτημα Γ παρουσιάζονται τα αρχεία εισόδου, τύπου .in και .geo, τα αρχεία εξόδου, οι εικονικοί ανιχνευτές καθώς και ενδεικτικά παραδείγματα δισδιάστατων και τρισδιάστατων απεικονίσεων μέσω των γραφικών προγραμμάτων του κώδικα PENELOPE.

Αναλυτικότερη περιγραφή του κώδικα PENELOPE, όλων των υπο-ρουτίνων και αρχείων του, καθώς και λεπτομερής παρουσίαση της διαδικασίας υπολογισμού των αποδόσεων ενός ανιχνευτή χρησιμοποιώντας τα δεδομένα που περιέχονται στο αρχείο εξόδου, μπορεί να αναζητηθεί στη βιβλιογραφία [Salvat et al. (2008), Βασιλοπούλου (2008)].

4.4 Μοντελοποίηση πειραματικών διατάξεων

Η προσομοίωση των πειραματικών διατάξεων είναι, όπως έχει συζητηθεί στο 2^ο Κεφάλαιο, απαραίτητη προκειμένου να υπολογιστούν οι συντελεστές διόρθωσης για την αυτο-θωράκιση των νετρονίων και την αυτο-απορρόφηση των νετρονίων στον όγκο του μεγάλου δείγματος. Η διαδικασία αυτή προϋποθέτει την ανάπτυξη μοντέλων στα οποία περιγράφονται αναλυτικά τόσο οι διατάξεις ακτινοβολήσης και ανίχνευσης της ακτινοβολίας-γ όσο και το υπό ανάλυση δείγμα.

Στη συνέχεια του Κεφαλαίου επιχειρείται η συνοπτική παρουσίαση των γενικών αρχών και της διαδικασίας μοντελοποίησης των πειραματικών διατάξεων με χρήση κωδίκων προσομοίωσης.

4.4.1 Μοντελοποίηση της διάταξης ακτινοβόλησης

Βασικές συνιστώσες στην ανάπτυξη του μοντέλου της διάταξης ακτινοβόλησης είναι η περιγραφή της γεωμετρίας και της πηγής νετρονίων. Για την περιγραφή της γεωμετρίας αξιοποιούνται οι διαστάσεις και τα χαρακτηριστικά της θερμικής στήλης (μήκος, πλάτος, ύψος θερμικής στήλης, υλικά κλπ.), συμπεριλαμβανομένης και της θέσης ακτινοβόλησης του μεγάλου δείγματος, που σε κάθε περίπτωση είναι γνωστά. Σε ότι αφορά την πηγή νετρονίων, ο ορισμός της δεν είναι μονοσήμαντος καθώς η επιλογή της εξαρτάται από το χρήστη. Ανάλογα με τη διάταξη που επιθυμεί να περιγράψει, ο χρήστης μπορεί για παράδειγμα να επιλέξει τη χρήση σημειακής ή επιφανειακής πηγής, ισοτροπικής (προς όλες τις κατευθύνσεις) ή προς μια κατεύθυνση κίνησης των σωματιδίων. Συνήθως, για την προσομοίωση της ακτινοβόλησης μεγάλων δειγμάτων σε θερμικές στήλες αντιδραστήρων επιλέγεται η χρήση επιφανειακών πηγών νετρονίων, οι οποίες θεωρούνται ότι «ταυτίζονται» χωρικά με την πρόσθια (προς την καρδιά του αντιδραστήρα) επιφάνεια της θερμικής στήλης, δηλαδή την επιφάνεια εισόδου των νετρονίων στη θερμική στήλη.

Στα πλαίσια της παρούσας εργασίας, η ανάπτυξη του μοντέλου της θερμικής στήλης και η προσομοίωση της διαδικασίας ακτινοβόλησης συνολικά, βασίστηκε στα στοιχεία των διατάξεων που περιγράφηκαν στο 3^ο Κεφάλαιο. Σημειώνεται ότι ανάλογα με την εφαρμογή, στο μοντέλο προστίθεται το εκάστοτε ακτινοβολούμενο δείγμα, το οποίο επίσης περιγράφεται με μεγάλη λεπτομέρεια. Αναλυτικότερη παρουσίαση της διαδικασίας προσομοίωσης καθώς και παράδειγμα τέτοιου μοντέλου, συμπεριλαμβανομένου του μεγάλου δείγματος, περιέχονται στα επόμενα Κεφάλαια.

4.4.2 Μοντελοποίηση της ανιχνευτικής διάταξης

Σε ότι αφορά την προσομοίωση της διαδικασίας ανίχνευσης της ακτινοβολίας- γ , τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά που απαιτούνται για την ανάπτυξη του μοντέλου δεν είναι πάντοτε γνωστά. Το πρόβλημα αφορά κυρίως την περιγραφή του ανιχνευτή, δεδομένου ότι οι διαστάσεις των υπόλοιπων τμημάτων της ανιχνευτικής διάταξης (θωράκιση, πηγή, κατευθυντήρας κλπ.) είναι εύκολο να μετρηθούν, αν δεν είναι ήδη γνωστές.

Στην περίπτωση, ωστόσο, των ανιχνευτών Γερμανίου, που συνήθως χρησιμοποιούνται στις φασματοσκοπικές διατάξεις της ANE-ΔΜΟ, υπάρχουν

κάποιες παράμετροι που δεν είναι εκ των προτέρων γνωστές και χρειάζεται να προσδιοριστούν. Η σημαντικότερη παράμετρος είναι ο ενεργός όγκος του κρυστάλλου Γερμανίου (active crystal volume). Μολονότι οι ανιχνευτές αυτού του τύπου αποτελούνται από έναν κρύσταλλο εξ' ολοκλήρου από Γερμάνιο, εξαιτίας του τρόπου κατασκευής τους, υπάρχουν περιοχές μέσα στον κρύσταλλο, στις οποίες αν γίνει αλληλεπίδραση ενός φωτονίου δεν δημιουργείται σήμα, το οποίο θα οδηγήσει στην καταγραφή του από το ανιχνευτικό σύστημα. Η περιοχή αυτή, η οποία είναι συνήθως ένα εξωτερικό περιμετρικό στρώμα του κρυστάλλου Γερμανίου, ονομάζεται "dead layer" (νεκρό στρώμα). Η ύπαρξη αυτής της περιοχής είναι συνέπεια της διαδικασίας κατασκευής του ανιχνευτή και του σχηματισμού της ζώνης αντιστάθμισης (intrinsic region), η οποία δημιουργείται μέσα στον ανιχνευτή κατά την αντίστροφη πόλωσή του και η οποία αποτελεί την ενεργό περιοχή του. Το πάχος του dead layer εξαρτάται από τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του ανιχνευτή, το είδος και το βάθος της επαφής (P+ contact ή N+ contact) και την εφαρμοζόμενη υψηλή τάση πόλωσης του ανιχνευτή (High Voltage).

Επισημαίνεται ότι συνήθως το πάχος του dead layer δεν είναι γνωστό με ακρίβεια ούτε και απαραίτητα σταθερό σε όλη την επιφάνεια του ανιχνευτή. Στις περισσότερες περιπτώσεις, στο πιστοποιητικό που διατίθεται από τον κατασκευαστή δίνονται μόνο οι συνολικές διαστάσεις του ανιχνευτή, χωρίς να προσδιορίζεται ο «ενεργός» όγκος του ανιχνευτή, είναι δηλαδή γνωστές οι διαστάσεις που περιγράφουν τον ολικό όγκο του κρυστάλλου Γερμανίου -που περιλαμβάνει τόσο τον «ενεργό» κρύσταλλο όσο και το dead layer- αλλά άγνωστα τα ακριβή όρια και οι διαστάσεις των δύο αυτών περιοχών.

Ακόμα όμως κι αν όλες οι απαιτούμενες διαστάσεις δίνονται από τον κατασκευαστή, είναι σκόπιμο να ελέγχονται και να επαληθεύονται από τον πειραματιστή, αφού συχνά διαπιστώνονται αποκλίσεις των τιμών που υπολογίζονται από τις «ονομαστικές» τιμές που αναφέρονται στα πιστοποιητικά των ανιχνευτών. Τέτοιες ασυμφωνίες μπορεί να οφείλονται, για παράδειγμα, σε ανακριβή στοιχεία που δίνονται από τους κατασκευαστές (κατ'εκτίμηση τιμές), σε διαφοροποιήσεις με την πάροδο του χρόνου κάποιων χαρακτηριστικών (π.χ. του dead layer) λόγω της χρήσης του ανιχνευτή ή σε ατελείς συγκεντρώσεις φορτίου [Le Petit et al. (2006), Chatzispiloglou et al. (2011)]. Πολλές ερευνητικές εργασίες πραγματεύονται το ζήτημα αυτό, αναδεικνύοντας ταυτόχρονα τη σημασία της όσο το δυνατόν πληρέστερης περιγραφής της διάταξης, προκειμένου τα αποτελέσματα της

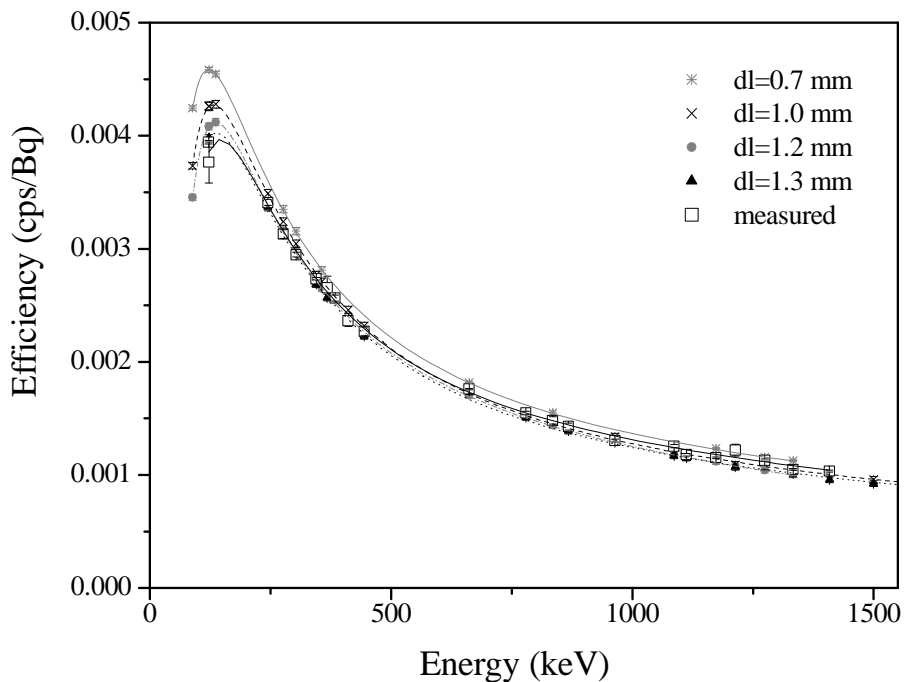
προσομοίωσης να είναι ακριβή και να αντανakλούν την πραγματικότητα ενώ η μέθοδος που συνήθως προτείνεται είναι ο προσδιορισμός των άγνωστων γεωμετρικών χαρακτηριστικών με πειραματικές μεθόδους [Ródenas et al. (2003), Dryak & Kovar (2006), Vidmar et al. (2007)].

Στα πλαίσια της παρούσας ΔΔ, οι ακριβείς διαστάσεις του κάθε ανιχνευτή και ιδιαίτερος το πάχος του dead layer προσδιορίστηκαν ημι-εμπειρικά, μέσω σύγκρισης πειραματικών μετρήσεων και υπολογισμών προσομοιώσεων [Tzika et al. (2008, 2010), Vasilopoulou et al. (2010)]. Σημαντική στατιστικά διαφορά μεταξύ των αποτελεσμάτων του πειράματος και της προσομοίωσης αποδίδεται στο γεγονός ότι οι διαστάσεις που δοκιμάστηκαν δεν ανταποκρίνονται στην πραγματικότητα και θα πρέπει να τροποποιηθούν αναλόγως. Η τελική συμφωνία μεταξύ των τιμών πειράματος-προσομοίωσης υποδεικνύει ότι το γεωμετρικό μοντέλο που χρησιμοποιήθηκε και επομένως οι διαστάσεις του ανιχνευτή ανταποκρίνονται στην πραγματικότητα.

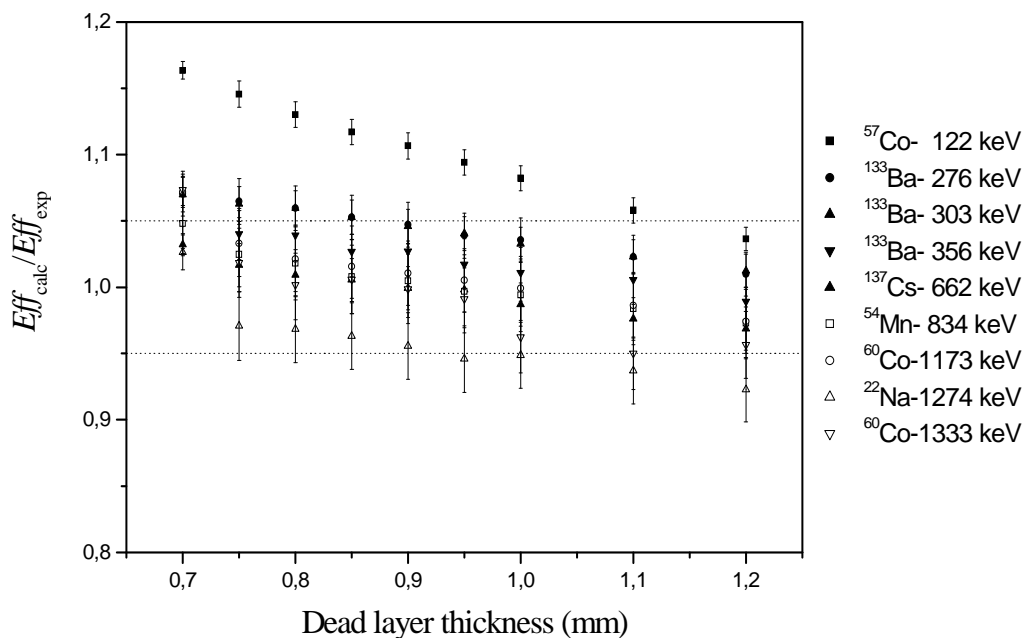
Σημειώνεται ότι ως τιμές «εκκίνησης» στη διαδικασία προσδιορισμού μέσω προσομοιώσεων θεωρήθηκαν οι τυπικές τιμές που αναγράφονται στα πιστοποιητικά των ανιχνευτών που χρησιμοποιήθηκαν (Παράρτημα Β). Επιπλέον, επισημαίνεται ότι οι πειραματικές μετρήσεις και προσομοιώσεις, και κατ'επέκταση ο προσδιορισμός των διαστάσεων που εξασφαλίζουν βέλτιστη συμφωνία μεταξύ των δύο αποτελεσμάτων, πραγματοποιήθηκαν τόσο για σημειακές πηγές όσο και για πηγές όγκου.

Στη συνέχεια παρουσιάζονται τα αποτελέσματα μελέτης που αφορά τον HPGe ανιχνευτή μεγάλων δειγμάτων του GRR-1. Η συγκεκριμένη μελέτη περιλαμβάνει πειραματικές μετρήσεις με χρήση σημειακών πηγών (^{22}Na , ^{54}Mn , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{152}Eu) και προσομοιώσεις με τον κώδικα MCNP.

Στο Σχήμα 4.2 απεικονίζονται οι υπολογισμένες μέσω προσομοιώσεων αποδόσεις αντίχενωσης ακτίνων-γ συναρτήσει της ενέργειας των φωτονίων για μια σειρά τιμές του πάχους του dead layer καθώς και η αντίστοιχη πειραματικά μετρημένη απόδοση για σημειακή πηγή σε απόσταση 25 cm από την επιφάνεια του ανιχνευτή. Η επίδραση του πάχους του dead layer στην απόδοση αντίχενωσης ακτίνων-γ παρουσιάζεται στο Σχήμα 4.3, όπου ο λόγος της υπολογισμένης μέσω προσομοιώσεων απόδοσης (Eff_{calc}) προς την πειραματικά προσδιορισμένη απόδοση (Eff_{exp}) έχει εκφραστεί ως συνάρτηση του πάχους του dead layer για μια σειρά ενεργειών φωτονίων.



Σχήμα 4.2 Σύγκριση υπολογισμένων μέσω προσομοιώσεων αποδόσεων με πειραματικά μετρημένη απόδοση ανίχνευσης ακτίνων-γ συναρτήσει της ενέργειας των φωτονίων για διάφορες τιμές πάχους dead layer



Σχήμα 4.3 Επίδραση του πάχους του dead layer στην απόδοση ανίχνευσης ακτίνων-γ για μια σειρά ενεργειών φωτονίων

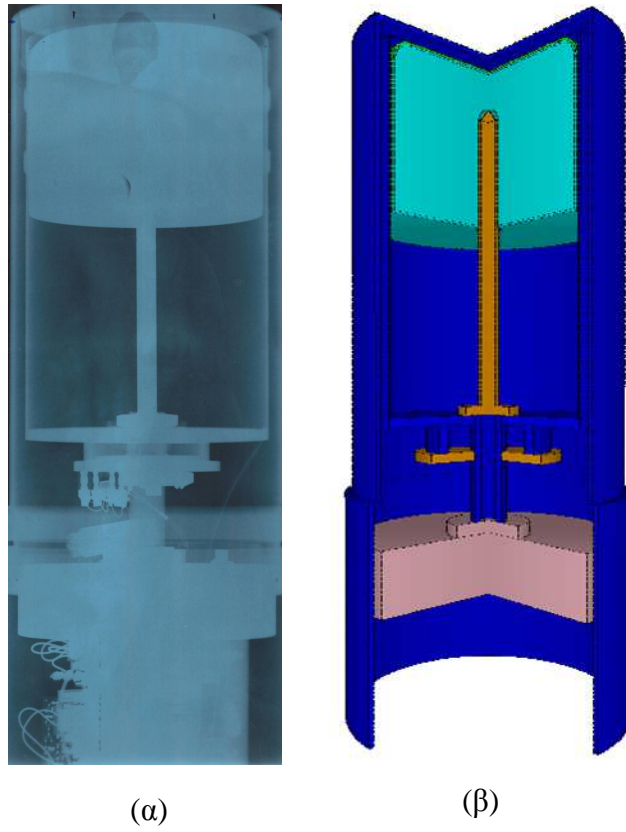
Από τα δύο αυτά Σχήματα, φαίνεται ότι στις υψηλότερες ενέργειες υπάρχει καλύτερη συμφωνία μεταξύ πειραματικών μετρήσεων και προσομοιώσεων σε σχέση με τη χαμηλότερη περιοχή ενεργειών (ιδιαίτερα μεταξύ 100 – 250 keV), για όλα τα πάχη dead layer που δοκιμάστηκαν. Επιπλέον, στις χαμηλότερες ενέργειες φωτονίων παρατηρείται μεγαλύτερη επίδραση του πάχους του dead layer στην τιμή της απόδοσης. Συμπεραίνεται επίσης ότι, για τη συγκεκριμένη διάταξη πηγής-ανιχνευτή, βέλτιστη συμφωνία μεταξύ πειραματικών τιμών και προσομοιώσεων εντοπίζεται για dead layer με πάχος μεταξύ 0.9 και 1.0 mm.

Αξίζει στο σημείο αυτό να σημειωθεί ότι το «βέλτιστο» πάχος που προσδιορίστηκε -με κριτήριο πάντα τη βέλτιστη συμφωνία μεταξύ πειραματικών τιμών και προσομοιώσεων- απέχει σημαντικά από την «ονομαστική» τιμή dead layer (0.7 mm) που δίνει ο κατασκευαστής στο αντίστοιχο πιστοποιητικό (Παράρτημα Β). Στην περίπτωση μάλιστα που το πάχος θεωρήθηκε ίσο με 0.7 mm παρατηρήθηκαν οι μεγαλύτερες αποκλίσεις μεταξύ προσομοιώσεων και πειραματικών τιμών.

Τα αποτελέσματα της μελέτης αποδεικνύουν ότι η χωρίς έλεγχο υιοθέτηση και χρήση των «ονομαστικών» τιμών που παρέχει ο κατασκευαστής μπορεί να οδηγήσει σε σημαντικά σφάλματα και επιβεβαιώνουν την αναγκαιότητα προσδιορισμού ή έστω επιβεβαίωσης των τιμών αυτών από τον πειραματιστή.

Μέσω της ημι-εμπειρικής διαδικασίας σύγκρισης προσομοιώσεων και πειραματικών μετρήσεων που παρουσιάστηκε, προσδιορίζεται τελικά η τιμή του πάχους του dead layer αλλά και κάθε άλλης παραμέτρου που είτε δεν είναι γνωστή είτε κρίνεται ότι χρειάζεται να επαναπροσδιοριστεί. Ακολούθως, με βάση τις τιμές αυτές αναπτύσσεται το μοντέλο της ανιχνευτικής διάταξης, όπου λεπτομερώς περιγράφεται η γεωμετρία (ανιχνευτής, θωράκιση, δείγμα κλπ.) και τα χαρακτηριστικά του προβλήματος (ενέργειες φωτονίων κ.α.).

Στο Σχήμα 4.4 απεικονίζεται η ακτινογραφία με ακτίνες-X του ανιχνευτή HPGe του GRR-1 (Σχήμα 4.4α) καθώς και το αντίστοιχο λεπτομερές μοντέλο που αναπτύχθηκε με χρήση του κώδικα MCNP [Chatzispiloglou et al. (2011)] βάσει της διαδικασίας που περιγράφηκε (Σχήμα 4.4β).



Σχήμα 4.4 Ο ανιχνευτής HPGe του GRR-1 (α) σε ακτινογραφία ακτίνων-X και (β) το αντίστοιχο μοντέλο MCNP (τριδιάστατη τομή)

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 5^ο – ΜΕΛΕΤΗ ΑΝΟΜΟΙΟΓΕΝΕΙΩΝ

Οι διορθώσεις που παρουσιάστηκαν στο 2^ο Κεφάλαιο και αφορούν στην αυτο-θωράκιση των νετρονίων και στην αυτο-απορρόφηση των φωτονίων στον όγκο του μεγάλου δείγματος, αντανακλούν τη διαφοροποίηση της νετρονικής ροής και της απόδοσης ανίχνευσης της ακτινοβολίας-γ για το μεγάλο δείγμα σε σχέση με την υποθετική περίπτωση σημειακής πηγής που βρίσκεται στο κέντρο του μεγάλου δείγματος, για την οποία δεν τίθεται ζήτημα αυτο-απορρόφησης νετρονίων ή φωτονίων.

Τονίζεται ότι η εφαρμογή αυτών των συντελεστών διόρθωσης δε λαμβάνει υπ' όψιν την ύπαρξη τυχόν ανομοιογενειών στην κατανομή των στοιχείων μέσα στον όγκο του δείγματος, αλλά αντιμετωπίζει το υπό ανάλυση δείγμα ως μακροσκοπικά ομογενές υλικό. Η υπόθεση αυτή, που ουσιαστικά συνεπάγεται την παράβλεψη της ύπαρξης ανομοιογενειών στο υλικό του δείγματος, μπορεί να επηρεάσει τα αποτελέσματα της ανάλυσης και να οδηγήσει σε σημαντικά σφάλματα κατά τον υπολογισμό των συγκεντρώσεων [Overwater & Bode (1998), Tzika et al. (2007)].

Ανάλογα με το ποια στοιχεία αφορούν, οι ανομοιογένειες διακρίνονται σε δύο κατηγορίες:

- ο ανομοιογένειες σύστασης (matrix inhomogeneities), ανομοιογένειες δηλαδή στην κατανομή των βασικών στοιχείων (matrix elements) του δείγματος, και
- ο ανομοιογένειες ιχνοστοιχείων (trace inhomogeneities), που σχετίζονται με την ανομοιογενή κατανομή των ιχνοστοιχείων (trace elements) στον όγκο του δείγματος.

Στα πλαίσια της παρούσας ΔΔ αποφασίστηκε να μελετηθεί η επίδραση των ανομοιογενειών στην ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση μεγάλων δειγμάτων. Για τον σκοπό αυτό παρασκευάστηκε ανομοιογενές δείγμα αναφοράς (reference sample), το οποίο αναλύθηκε σύμφωνα με το πρωτόκολλο ανάλυσης δειγμάτων μεγάλου όγκου, προκειμένου να διερευνηθούν πειραματικά οι δυνατότητες και οι περιορισμοί της τεχνικής της ANE-ΔΜΟ στην ειδική περίπτωση ανομοιογενών υλικών.

5.1 Πειραματική διαδικασία

5.1.1 Προετοιμασία δείγματος

Το δείγμα αναφοράς (reference sample) που αναλύθηκε ήταν κυλινδρικού σχήματος. Για την προετοιμασία του χρησιμοποιήθηκε κυλινδρικό δοχείο ύψους 20 cm, εξωτερικής διαμέτρου 12 cm και πάχους τοιχωμάτων 0.3 cm, κατασκευασμένο από Perspex. Δίσκος, από το ίδιο υλικό, ακτίνας 11.4 cm και πάχους 0.3 cm, τοποθετήθηκε εσωτερικά στο ήμισυ του ύψους του δοχείου ($h=10$ cm) επιτρέποντας την τοποθέτηση στερεών σωμάτων (ανομοιογενειών) σε επιλεγμένες θέσεις. Στο συγκεκριμένο πείραμα ως ανομοιογένεια επιλέχθηκε να χρησιμοποιηθεί συμπαγής κύλινδρος, αποτελούμενος από κράμα Αλουμινίου-Ψευδαργύρου (Al-Zn) γνωστής σύστασης (NIST, Standard Reference Material 1258-I, aluminum alloy 6011 modified). Η διάμετρος του κύλινδρου ήταν 3.5 cm, το ύψος του 1.9 cm και η μάζα του ίση με 50.07 gr. Ο κύλινδρος τοποθετήθηκε στον εσωτερικό δίσκο έκκεντρα, σε απόσταση 2.2 cm από τον άξονα του κυλινδρικού δείγματος (Σχήμα 5.1α). Ακολούθως, στο κυλινδρικό δοχείο προστέθηκε σκόνη χαλαζία (Quartz, Sigma-Aldrich, silicon dioxide powder) έως ότου γεμίσει πλήρως ο όγκος του (Σχήμα 5.1β). Η συνολική μάζα του δείγματος ήταν 2.979 kg. Το δοχείο σφραγίστηκε με ειδική ταινία, η οποία είχε ελεγχθεί μέσω ακτινοβολήσης με νετρόνια ώστε να επιβεβαιωθεί ότι δεν περιέχει ιχνοστοιχεία των οποίων η ενεργοποίηση θα μπορούσε να επηρεάσει τα αποτελέσματα των μετρήσεων. Η σύσταση των υλικών που χρησιμοποιήθηκαν δίνεται στο Παράρτημα Δ.



Σχήμα 5.1 α) Ο κυλινδρικός δίσκος τοποθετημένος στο εσωτερικό του δείγματος και β) το δείγμα πλήρες με σκόνη χαλαζία (Quartz)

5.1.2 Ακτινοβόληση δείγματος

Η ακτινοβόληση του δείγματος πραγματοποιήθηκε στις πειραματικές εγκαταστάσεις του Ολλανδικού αντιδραστήρα HOR και πιο συγκεκριμένα στη διάταξη BISNIS της θερμικής στήλης, η οποία έχει ήδη περιγραφεί αναλυτικά στο 3^ο Κεφάλαιο της παρούσας ΔΔ. Το δείγμα τοποθετήθηκε στο πλέγμα πολυαιθυλενίου (Σχήμα 5.2α) και στη συνέχεια στο δοχείο ακτινοβόλησης, το οποίο είναι κατασκευασμένο επίσης από πολυαιθυλένιο, ενώ περιμετρικά του δοχείου τοποθετήθηκαν -σε σταθερό πλέγμα- 80 ελάσματα ψευδαργύρου για τη μέτρηση της ροής νετρονίων.

Στη συνέχεια, το δοχείο βυθίστηκε στον αγωγό ακτινοβόλησης (Σχήμα 5.2β), όπου το δείγμα ακτινοβολήθηκε για 24 ώρες σε ροή θερμικών νετρονίων ίση με $5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Σημειώνεται ότι στη θέση ακτινοβόλησης ο λόγος θερμικής προς επιθερμική ροή νετρονίων είναι της τάξης του 3300.

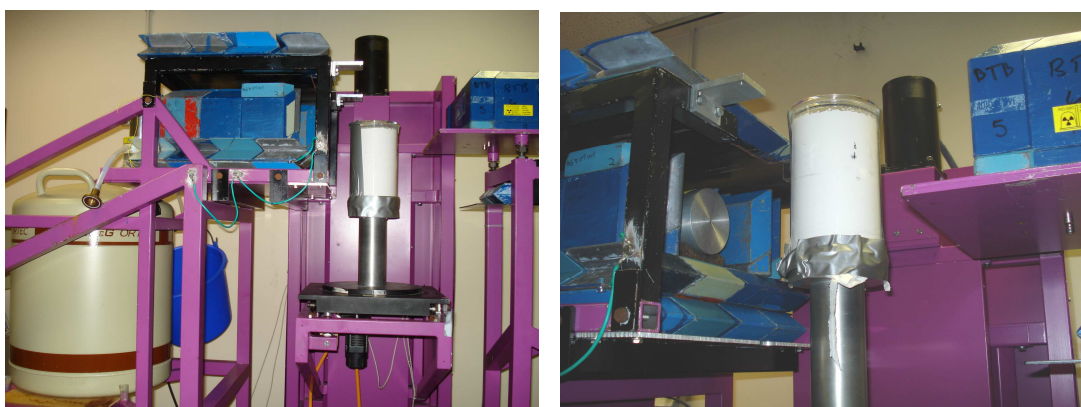


Σχήμα 5.2 α) το δείγμα μέσα στο πλέγμα πολυαιθυλενίου β) το δοχείο που περιέχει το δείγμα κατά τη βύθισή του στον αγωγό ακτινοβόλησης

5.1.3 Ανίχνευση ακτινοβολίας δείγματος

Μετά την παρέλευση 36 ωρών από το πέρας της ακτινοβόλησης (decay time), το δείγμα μεταφέρθηκε στη διάταξη φασματοσκοπίας- γ προκειμένου να μετρηθεί η εκπεμπόμενη από αυτό ακτινοβολία. Η εκτενής περιγραφή της ανιχνευτικής διάταξης έχει ήδη γίνει στο 3^ο Κεφάλαιο. Το δείγμα τοποθετήθηκε στο δειγματοφορέα, σε απόσταση 20 cm από τον ανιχνευτή Γερμανίου (απόσταση του κατακόρυφου άξονα του κυλινδρικού δείγματος από την εξωτερική επιφάνεια του κυλινδρικού ανιχνευτή). Η μέτρηση του δείγματος έγινε για 1 ώρα. Κατά τη διάρκεια της μέτρησης, το δείγμα περιστρεφόταν γύρω από τον άξονα συμμετρίας του, για να εξασφαλιστεί η ελαχιστοποίηση της ανομοιογενούς κατανομής της ενεργότητας ως προς τον κατακόρυφο άξονα (Σχήμα 5.3).

Σημειώνεται ότι τα φάσματα που καταγράφηκαν διορθώθηκαν για την ακτινοβολία υποβάθρου. Ένα ενδεικτικό φάσμα από τη μέτρηση της ακτινοβολίας- γ του ανομοιογενούς δείγματος αναφοράς παρατίθεται στο Παράρτημα Ε (Σχήμα Ε.1).



Σχήμα 5.3 Το δείγμα μεγάλου όγκου κατά τη διάρκεια μέτρησής του στην ανιχνευτική διάταξη

Στον Πίνακα 5.1 παρουσιάζονται τα ισότοπα που χρησιμοποιήθηκαν στην ανάλυση των φασμάτων, οι αντίστοιχοι χρόνοι ημιζωής και οι ενέργειες των φωτοκορυφών τους καθώς και το % ποσοστό των εκπεμπόμενων ακτίνων- γ ανά διάσπαση (γ -ray abundance / yield) [Reus & Westmeier (1983)].

Ισότοπο	Χρόνος ημιζωής	Ενέργεια (keV)	Yield (%)
⁷⁶ As	26.3 h	657.0	6.1
⁶⁴ Cu	12.7 h	1345.8	0.5
¹⁵² Eu	9.32 h	963.4	11.9
⁷² Ga	14.1 h	1861.1	5.3
⁴² K	12.4 h	1525.0	18.3
¹⁴⁰ La	40.3 h	925.2	7.1
⁴⁶ Sc	83.8 days	1120.5	100.0
¹⁵³ Sm	46.7 h	103.2	28.3
¹⁸⁷ W	23.9 h	685.8	31.6
⁶⁹ Zn	13.8 h	438.6	94.8

Πίνακας 5.1 Ισότοπα, χρόνοι ημιζωής, ενέργειες φωτοκορυφών που αναλύθηκαν και % ποσοστό εκπεμπόμενων ακτίνων-γ ανά διάσπαση (yield)

Παράλληλα, σε κατάλληλη διάταξη φασματοσκοπίας-γ με ανιχνευτή Γερμανίου, μετρήθηκαν τα ελάσματα ψευδαργύρου προκειμένου να εκτιμηθεί η νετρονική ροή κατά την ακτινοβόληση. Με βάση τις τιμές της ροής στις διάφορες θέσεις περιμετρικά του μεγάλου δείγματος, η μέση τιμή της νετρονικής ροής στην επιφάνεια του μεγάλου δείγματος, Φ_s , και το αντίστοιχο σφάλμα υπολογίστηκαν ως εξής:

$$\Phi_s = (3.45 \pm 0.05) \times 10^8 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$$

5.1.4 Στοιχειακή ανάλυση των υλικών του δείγματος (μέσω ANE)

Η επιβεβαίωση των αποτελεσμάτων της ανάλυσης του μεγάλου δείγματος έγινε μέσω σύγκρισης των τιμών με τα αποτελέσματα της συμβατικής τεχνικής νετρονικής ενεργοποίησης μικρών δειγμάτων, η οποία θεωρήθηκε ως η μέθοδος αναφοράς. Για το σκοπό αυτό αναλύθηκαν 10 δείγματα μέσης μάζας (340.0 ± 0.1) mg. Από αυτά, τα 5 ήταν δείγματα σκόνης χαλαζία (Quartz - SiO_2) και τα υπόλοιπα 5 δείγματα του υλικού Perspex, από το οποίο αποτελούνταν το δοχείο που χρησιμοποιήθηκε για την κατασκευή του μεγάλου δείγματος. Σημειώνεται ότι κατά την προετοιμασία των δειγμάτων, προσδιορίστηκε το ποσοστό υγρασίας της σκόνης χαλαζία (Quartz - SiO_2), το οποίο βρέθηκε ίσο με 0.03%. Η διαδικασία περιελάμβανε τη ζύγιση συγκεκριμένης ποσότητας υλικού πριν και μετά την ξήρανσή της για 1.5 ώρα σε ειδικό φούρνο στους $100\text{ }^\circ\text{C}$. Ακολούθως, τα μικρά δείγματα τοποθετήθηκαν σε κατάλληλα φιαλίδια πολυαιθυλενίου, τα οποία σφραγίστηκαν και δόθηκαν για ακτινοβόληση (Σχήμα 5.4). Η ακτινοβόληση των δειγμάτων πραγματοποιήθηκε σε ροή θερμικών νετρονίων ίση με $5 \times 10^{12}\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$ ενώ η μέτρησή τους στη διάταξη φασματοσκοπίας γ έγινε μετά από διάστημα 4 και 18 ημερών (decay time). Η επεξεργασία και ανάλυση των αντίστοιχων φασμάτων γ -ακτινοβολίας διεξήχθη βάσει του πρωτοκόλλου ανάλυσης δειγμάτων με νετρονική ενεργοποίηση του εργαστηρίου RID [Blaauw (1996)]. Επισημαίνεται ότι το εργαστήριο έχει σύστημα ανάλυσης πιστοποιημένο κατά ISO-IEC 17025.



Σχήμα 5.4 α) Τα δείγματα και β) η βολίδα ακτινοβόλησης

5.1.5 Προσομοιώσεις

Για την προσομοίωση των διατάξεων ακτινοβόλησης και φασματοσκοπίας- γ και τον προσδιορισμό των αντίστοιχων συντελεστών διόρθωσης αυτο-θωράκισης των νετρονίων και αυτο-απορρόφησης των φωτονίων, χρησιμοποιήθηκε ο κώδικας Monte Carlo MCNP5 [X-5 Monte Carlo Team (2003)] και οι βιβλιοθήκες ενεργών διατομών Evaluated Nuclear Data File (ENDF/B-VI) [Rose (1991)].

A. Νετρόνια

Σε ότι αφορά στη διαδικασία ακτινοβόλησης, η ροή θερμικών νετρονίων μέσα στον όγκο του μεγάλου δείγματος, Φ_v , προσδιορίστηκε με βάση τη σχέση

$$\Phi_v = \Phi_{s-e} \times f_n \quad (\text{Σχέση 5.1})$$

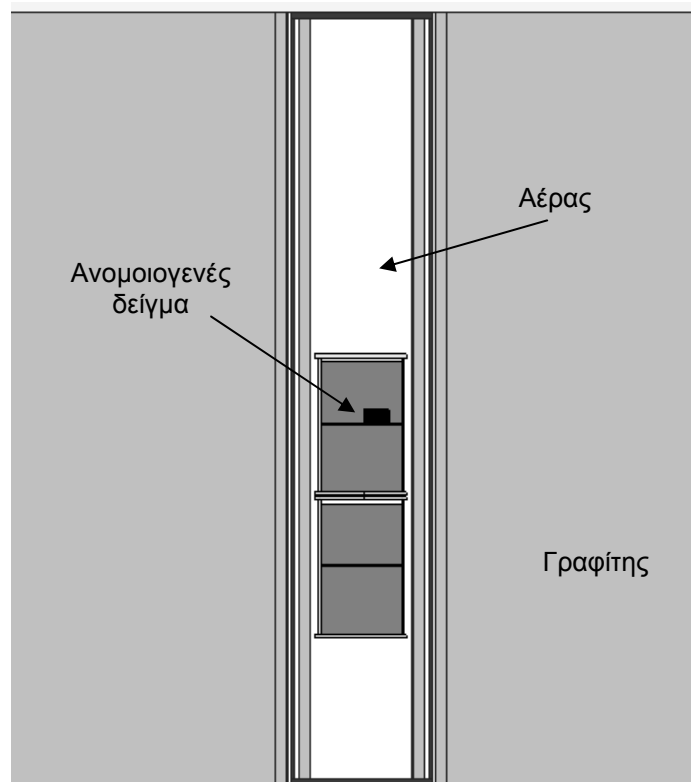
όπου

Φ_{s-e} : η πειραματικά μετρημένη μέση τιμή της ροής θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος και

f_n : ο υπολογισμένος μέσω προσομοιώσεων συντελεστής διόρθωσης για την αυτο-θωράκιση των νετρονίων στο μεγάλο δείγμα

Ο συντελεστής διόρθωσης f_n δίνει το λόγο της μέσης ροής θερμικών νετρονίων στον όγκο του δείγματος προς την αντίστοιχη μέση ροή στην εξωτερική του επιφάνεια. Το μοντέλο της διάταξης ακτινοβόλησης που αναπτύχθηκε με τον κώδικα MCNP περιλάμβανε τη θερμική στήλη, το δοχείο ακτινοβόλησης και το μεγάλο δείγμα (Σχήμα 5.5).

Λαμβάνοντας υπ' όψιν τη μεγάλη τιμή του λόγου θερμικής προς επιθερμική ροή νετρονίων (~3300), η συνιστώσα των επιθερμικών νετρονίων θεωρήθηκε αμελητέα και δε λήφθηκε υπ' όψιν στον ορισμό της πηγής νετρονίων. Έτσι, στις προσομοιώσεις της διαδικασίας ακτινοβόλησης θεωρήθηκε θερμική δέσμη νετρονίων που προσπίπτει στην επιφάνεια της στήλης. Χρειάζεται, ωστόσο, να επισημανθεί ότι σε διατάξεις που παρουσιάζουν σημαντική ροή επιθερμικών νετρονίων, η θεώρηση αυτή δε θα ίσχυε καθώς θα έπρεπε να ληφθεί υπ' όψιν στον ορισμό της πηγής και η επιθερμική συνιστώσα. Προκαταρκτικοί υπολογισμοί με τον κώδικα MCNP έδειξαν ότι η κατανομή της θερμικής ροής στο δείγμα δεν εξαρτάται από τη γωνιακή κατανομή των νετρονίων που προσπίπτουν στην θερμική στήλη.



Σχήμα 5.5 Διδιάστατη σχηματική αναπαράσταση του μοντέλου της διάταξης ακτινοβόλησης (εγκάρσια τομή)

Συγκεκριμένα, δεν παρατηρήθηκε στατιστικά σημαντική διαφορά στην αυτοαπορρόφηση των θερμικών νετρονίων στο δείγμα μεταξύ παράλληλης και συνημιτονοειδούς γωνιακής κατανομής των νετρονίων που προσπίπτουν στην επιφάνεια γραφίτη της στήλης. Το αποτέλεσμα αυτό εξηγείται από το μήκος της θερμικής στήλης της διάταξης BISNIS-RID που έχει σαν αποτέλεσμα τα νετρόνια που μεταφέρονται στο υλικό της στήλης (γραφίτης) να έχουν υποστεί μεγάλο αριθμό σκεδάσεων πριν προσπέσουν στο δείγμα και επομένως η «αρχική» τους γωνιακή κατανομή να έχει αμελητέα επίδραση στον συντελεστή αυτο-θωράκισης του δείγματος. Σημειώνεται ότι το μήκος της συγκεκριμένης θερμικής στήλης (~142 cm) αντιστοιχεί σε περίπου 3 μήκη διάχυσης θερμικών νετρονίων στον γραφίτη (~54 cm) [Lamarsh (1983)]. Συνεπώς, η χρήση της παράλληλης δέσμης νετρονίων θεωρήθηκε επαρκής για να περιγράψει την πηγή κατά τους υπολογισμούς αυτοαπορρόφησης νετρονίων στο δείγμα. Για τον προσδιορισμό του συντελεστή διόρθωσης f_n χρησιμοποιήθηκαν οι εικονικοί ανιχνευτές F4 (track length estimates) του κώδικα.

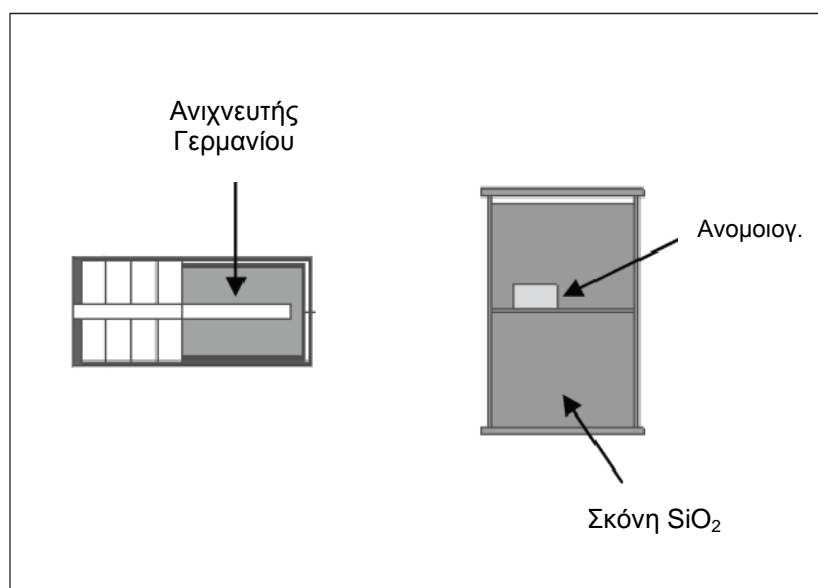
B. Φωτόνια

Όσον αφορά στη διαδικασία ανίχνευσης της ακτινοβολίας- γ και στον υπολογισμό του αντίστοιχου συντελεστή διόρθωσης f_{γ} , χρησιμοποιήθηκε η σχετική μέθοδος «μεταφοράς απόδοσης» (efficiency transfer method), η οποία στηρίζεται -όπως περιγράφηκε αναλυτικά στο 2ο Κεφάλαιο- στον προσδιορισμό του λόγου της πραγματικής απόδοσης για την υπό μελέτη γεωμετρία προς την απόδοση του ανιχνευτή για μια πηγή αναφοράς και για δεδομένη ενέργεια φωτονίων. Στο συγκεκριμένο πείραμα, ως πηγή αναφοράς επιλέχθηκε να χρησιμοποιηθεί μια πηγή όγκου τύπου Marinelli, όγκου 500 mL, από πολυεστερικό πολυμερές πλαστικό (Σχήμα 5.6). Η επιλογή της πηγής Marinelli υπαγορεύτηκε από το γεγονός ότι η συγκεκριμένη γεωμετρία παρέχει μια πιο αντιπροσωπευτική προσέγγιση της γεωμετρίας του μεγάλου δείγματος από ότι μια σημειακή πηγή [Vidmar et al. (2010)]. Σημειώνεται ότι η πηγή Marinelli μετρήθηκε σε απόσταση 20 cm από τον ανιχνευτή (απόσταση του κέντρου της πηγής από την εξωτερική επιφάνεια του ανιχνευτή).



Σχήμα 5.6 Η πηγή όγκου Marinelli που χρησιμοποιήθηκε ως γεωμετρία αναφοράς

Ο συντελεστής διόρθωσης για την αυτο-απορρόφηση των φωτονίων στον όγκο του μεγάλου δείγματος, f_{γ} -ο οποίος ισούται με το λόγο της απόδοσης φωτοκορυφής για τη μελετούμενη γεωμετρία όγκου προς την αντίστοιχη απόδοση για τη γεωμετρία αναφοράς, υπολογίστηκε μέσω προσομοιώσεων του συστήματος πηγής-ανιχνευτή. Στο μοντέλο περιγράφηκε λεπτομερώς η ανιχνευτική διάταξη, η θωράκιση και η πηγή όγκου (Σχήμα 5.7). Για την εκτίμηση της απόδοσης φωτοκορυφής χρησιμοποιήθηκε ο εικονικός ανιχνευτής F8 (pulse height tally) του κώδικα.



Σχήμα 5.7 Δισδιάστατη αναπαράσταση του μοντέλου της διάταξης πηγής-ανιχνευτή (εγκάρσια τομή)

Οι συντελεστές διόρθωσης f_n και f_γ υπολογίστηκαν για τις ακόλουθες περιπτώσεις:

(α) Δείγμα αναφοράς (reference sample): το μοντέλο του δείγματος περιλάμβανε το δοχείο Perspex, τη σκόνη SiO_2 και την κυλινδρική ανομοιογένεια, που περιγράφηκαν αναλυτικά.

(β) Βασικό δείγμα (base sample): το δείγμα προσομοιώθηκε ως ομογενές υλικό που αποτελούνταν μόνο από σκόνη SiO_2 , υποθέτοντας ότι δεν υπάρχει καμία ανομοιογένεια στο εσωτερικό του.

(γ) Ομογενοποιημένο δείγμα (homogenized sample): το δείγμα προσομοιώθηκε ως ένα ομογενές μείγμα που, εκτός από τη σκόνη SiO_2 , περιείχε και τα στοιχεία της ανομοιογένειας κατανομημένα ομοιόμορφα μέσα στον όγκο του υλικού.

Επισημαίνεται ότι και στις τρεις περιπτώσεις, θεωρήθηκαν δείγματα των ίδιων εξωτερικών διαστάσεων, συνεπώς και του ίδιου ακριβώς όγκου. Η μελέτη των αποτελεσμάτων της ανάλυσης του βασικού και του ομογενοποιημένου δείγματος και η σύγκρισή τους με αυτά του δείγματος αναφοράς παρέχουν εκτίμηση των συστηματικών σφαλμάτων που εισάγονται στην ανάλυση λόγω της ύπαρξης της ανομοιογένειας.

5.1.6 Αποτελέσματα

5.1.6.1 Συντελεστές διόρθωσης f_n

Στον Πίνακα 5.2, παρουσιάζονται οι υπολογισμένοι μέσω προσομοίωσης συντελεστές διόρθωσης f_n , η πειραματικά μετρημένη μέση τιμή της ροής θερμικών νετρονίων πάνω στην επιφάνεια του μεγάλου δείγματος, Φ_{s-e} , οι υπολογισμένες τιμές της ροής θερμικών νετρονίων στον όγκο του δείγματος, Φ_v , καθώς και οι αντίστοιχες αβεβαιότητες, όπως αυτές υπολογίστηκαν σε επίπεδο 1σ , για κάθε μία από τις τρεις περιπτώσεις που εξετάστηκαν. Υπογραμμίζεται ότι στην περίπτωση του δείγματος αναφοράς, ο συντελεστής διόρθωσης νετρονίων f_n υπολογίστηκε ξεχωριστά για κάθε ένα από τα δύο υλικά, δηλαδή τη σκόνη SiO_2 και την ανομοιογένεια, προκειμένου να προσδιοριστεί η μέση τιμή της ροής στους αντίστοιχους διακριτούς όγκους (όγκος υλικού SiO_2 και όγκος που καταλαμβάνει η ανομοιογένεια).

Δείγμα	f_n	Φ_{s-e} ($\times 10^8 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$)	Φ_v ($\times 10^8 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$)
Αναφοράς			
(i) Σκόνη SiO_2	0.977 ± 0.010	3.45 ± 0.05	3.37 ± 0.06
(ii) Ανομοιογένεια	0.927 ± 0.021	3.45 ± 0.05	3.20 ± 0.09
Βάση	0.978 ± 0.009	3.45 ± 0.05	3.37 ± 0.06
Ομογενοποιημένο	0.974 ± 0.009	3.45 ± 0.05	3.36 ± 0.06

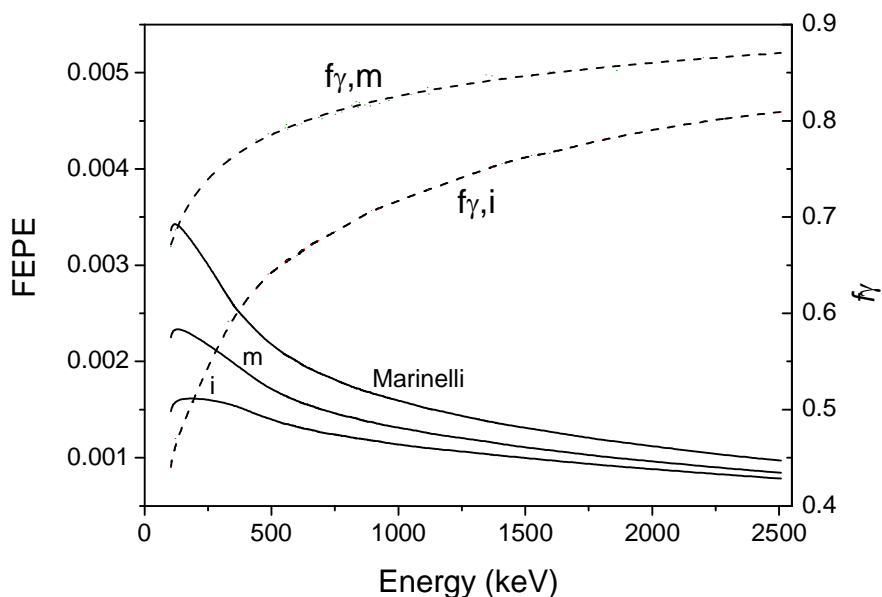
Πίνακας 5.2 Προσδιορισμένοι μέσω προσομοίωσης συντελεστές διόρθωσης νετρονίων, πειραματική μέση ροή θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια και υπολογισμένες ροές θερμικών νετρονίων στον όγκο του δείγματος μαζί με τις αβεβαιότητές τους (1σ) για τις τρεις περιπτώσεις που εξετάστηκαν

5.1.6.2 Συντελεστές διόρθωσης f_v

Οι συντελεστές διόρθωσης για την αυτο-απορρόφηση των φωτονίων στον όγκο του υλικού, f_v , προσδιορίστηκαν συναρτήσει της ενέργειας των φωτονίων. Στην περίπτωση του δείγματος αναφοράς, σε πλήρη αντιστοιχία με τη διαδικασία υπολογισμού του συντελεστή για τα νετρόνια, ο συντελεστής διόρθωσης για τα φωτόνια υπολογίστηκε ξεχωριστά για τα δύο υλικά, προκειμένου να προσδιοριστεί η απόδοση ανίχνευσης των φωτονίων που προέρχονται από τις αντίστοιχες περιοχές του δείγματος (όγκος σκόνης SiO_2 και όγκος ανομοιογένειας).

Στο Σχήμα 5.8 παρουσιάζονται οι αποδόσεις ανίχνευσης (full energy peak efficiency - FEPE) για την πηγή Marinelli και για το μεγάλο δείγμα καθώς και ο αντίστοιχος συντελεστής διόρθωσης f_γ στην περιοχή ενεργειών 100 έως 2500 keV. Σημειώνεται ότι στο συγκεκριμένο σχήμα απεικονίζονται μόνο οι καμπύλες απόδοσης και οι συντελεστές διόρθωσης για τα δύο τμήματα - συνιστώσες του δείγματος αναφοράς (σκόνη SiO_2 και ανομοιογένεια). Οι αντίστοιχες αποδόσεις για το δείγμα-βάση και για το ομογενοποιημένο δείγμα, αν και υπολογίστηκαν αναλυτικά, επιλέχθηκε να μην παρουσιαστούν στο εν λόγω σχήμα γιατί ταυτίζονται – μέσα στα όρια του στατιστικού σφάλματος- με τις καμπύλες που αφορούν στο υλικό SiO_2 του δείγματος αναφοράς. Η ταύτιση αυτή εξηγείται με βάση τις σχετικές διαστάσεις της ανομοιογένειας, καθώς αντανακλά το πολύ μικρό ποσοστό του συνολικού όγκου (0.8 %) και της συνολικής μάζας του δείγματος (1.6 %) που καταλαμβάνει η ανομοιογένεια.

Επισημαίνεται επίσης, ότι η περιστροφή του δείγματος κατά τη μέτρησή του στην ανιχνευτική διάταξη έχει ληφθεί υπ' όψιν στους υπολογισμούς. Ως εκ τούτου, η απόδοση φωτοκορυφής που παρουσιάζεται έχει προσδιοριστεί ως η μέση τιμή των αποδόσεων μιας σειράς στατικών καταστάσεων που αντιστοιχούν στις διαφορετικές θέσεις/φάσεις του δείγματος στη διάρκεια μιας πλήρους περιστροφής.



Σχήμα 5.8 Οι προσδιορισμένες μέσω προσομοίωσης καμπύλες απόδοσης ανίχνευσης για την πηγή Marinelli και για το δείγμα αναφοράς και οι αντίστοιχοι συντελεστές διόρθωσης f_γ , συναρτήσεως της ενέργειας των φωτονίων, για το υλικό SiO_2 (m) και την ανομοιογένεια (i) του δείγματος αναφοράς

Όπως φαίνεται στο Σχήμα 5.8, για δεδομένη ενέργεια φωτονίων, η εκτιμώμενη τιμή απόδοσης για την πηγή Marinelli είναι μεγαλύτερη από τις αντίστοιχες τιμές για τα δύο υλικά του μεγάλου δείγματος αναφοράς, τη σκόνη SiO₂ και την κυλινδρική ανομοιογένεια. Το γεγονός αυτό αντανακλά τις διαφοροποιήσεις που υπάρχουν μεταξύ των υλικών τόσο σε ότι αφορά στον όγκο τους όσο και στις ιδιότητές τους (π.χ. διαφορετικοί συντελεστές εξασθένησης των ακτίνων-γ μέσα σε κάθε υλικό). Επιπλέον, παρατηρείται ότι οι τιμές της απόδοσης αλλά και του συντελεστή διόρθωσης για την ανομοιογένεια είναι χαμηλότερες από αυτές του υλικού SiO₂ του δείγματος αναφοράς. Για παράδειγμα, για την ενέργεια των 328.8 keV (φωτοκορυφή ¹⁴⁰La), ο συντελεστής f_{γ} για το υλικό SiO₂ και την ανομοιογένεια, ισούται με 0.759 ± 0.002 και 0.592 ± 0.002 αντίστοιχα, ενώ για την ενέργεια των 1525 keV (φωτοκορυφή ⁴²K) παίρνει τις τιμές 0.846 ± 0.003 και 0.763 ± 0.004 , αντίστοιχα. Το αποτέλεσμα αυτό οφείλεται στο μέγεθος της εξασθένησης των ακτίνων-γ μέσα στο υλικό της ανομοιογένειας (κράμα Al-Zn), το οποίο είναι σαφώς μεγαλύτερο από αυτό του υλικού SiO₂. Πράγματι, παρ'ότι οι μαζικοί συντελεστές εξασθένησης των δύο υλικών έχουν συγκρίσιμες τιμές, παρατηρείται μεγάλη διαφορά μεταξύ των γραμμικών συντελεστών τους λόγω της σημαντικής διαφοροποίησης των αντίστοιχων πυκνοτήτων (1.25 g/cm^3 και 2.7 g/cm^3 για τα υλικά SiO₂ και Al-Zn, αντίστοιχα). Για παράδειγμα, ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης φωτονίων ενέργειας 122 keV και 1408 keV υπολογίστηκε μέσω του προγράμματος XCOM [Berger et al. (2010)] στο υλικό της ανομοιογένειας ίσος με 0.41 cm^{-1} και 0.14 cm^{-1} αντίστοιχα, ενώ στο υλικό SiO₂ ίσος με 0.19 cm^{-1} και 0.07 cm^{-1} αντίστοιχα. Μάλιστα, η διαφοροποίηση αυτή υπερκαλύπτει την επίδραση του γεωμετρικού παράγοντα, με βάση την οποία θα αναμενόταν χαμηλότερη τιμή απόδοσης για την περιορισμένης έκτασης ανομοιογένεια (0.8 % του συνολικού όγκου) σε σχέση με το πολύ μεγαλύτερο όγκο υλικό SiO₂ (73 % του συνολικού όγκου του δείγματος).

Η σύγκριση των συντελεστών διόρθωσης για τα νετρόνια και τα φωτόνια, υποδεικνύει ότι, για τα συγκεκριμένα δείγματα που εξετάστηκαν, η διόρθωση για την ανίχνευση των φωτονίων είναι η επικρατέστερη και πιο σημαντική, από άποψη μεγέθους. Επιπρόσθετα, παρατηρείται ότι το φαινόμενο αυτό ενισχύεται στις χαμηλότερες ενέργειες φωτονίων. Στην ενεργειακή περιοχή από 100 έως 2500 keV, για παράδειγμα, ο συντελεστής διόρθωσης f_{γ} για το δείγμα-βάση κυμαίνεται από 0.668 έως 0.869 ενώ ο αντίστοιχος συντελεστής διόρθωσης f_n έχει την τιμή 0.978. Τα αποτελέσματα αυτά βρίσκονται σε συμφωνία με τις διαπιστώσεις προηγούμενων

μελετών που υποστήριζαν ότι η διόρθωση για τα φωτόνια είναι η κυρίαρχη [Overwater & Bode (1998), Tzika et al. (2004) (2007)].

5.1.6.3 Στοιχειακή ανάλυση

Στους Πίνακες 5.3, 5.4 και 5.5 παρουσιάζεται η υπολογισμένη με την τεχνική της ANE-ΔΜΟ μάζα, η τιμή αναφοράς, η σχετική στατιστική απόκλιση (Relative Bias) και η τιμή του Z-score για κάθε στοιχείο, όπως αυτά υπολογίστηκαν για το δείγμα αναφοράς, το βασικό και το ομογενοποιημένο δείγμα, αντίστοιχα. Σημειώνεται ότι, για τα στοιχεία του υλικού SiO₂ ως τιμές αναφοράς χρησιμοποιήθηκαν οι μάζες που υπολογίστηκαν με χρήση της συμβατικής τεχνικής ANE των μικρών δειγμάτων, ενώ για τα στοιχεία της ανομοιογένειας τιμές αναφοράς θεωρήθηκαν οι μάζες που αναγράφονται στο Πιστοποιητικό Σύστασης του κυλινδρικού δίσκου (Standard Reference Material certificate – Παράρτημα Δ).

Η σχετική στατιστική απόκλιση επιλέχθηκε ως ένα μέτρο εκτίμησης της ακρίβειας και αξιοπιστίας της τεχνικής καθώς εκφράζει το μέγεθος της συμφωνίας των αποτελεσμάτων της ανάλυσης με τις τιμές αναφοράς. Η τιμή της υπολογίστηκε μέσω της ακόλουθης σχέσης:

$$\text{Relative Bias} = \frac{m_{LSNAA} - m_{Ref}}{m_{Ref}} \times 100 \% \quad (\text{Σχέση 5.2})$$

όπου

m_{LSNAA} : η μάζα που προσδιορίστηκε με την ANE-ΔΜΟ

m_{Ref} : η τιμή αναφοράς

Για την περαιτέρω σύγκριση των αποτελεσμάτων, υπολογίστηκε επίσης η τιμή του Z-score για κάθε στοιχείο. Το Z-score ισούται με τη διαφορά των τιμών ANE-ΔΜΟ και αναφοράς, διαιρεμένη με τις συνδυασμένες αβεβαιότητες των δύο τιμών. Στη συνέχεια, η τιμή του Z-score εκτιμάται, με βάση τα κριτήρια που παρουσιάζονται στο Παράρτημα Α, ως δείκτης που εκφράζει ικανοποιητική συμφωνία (για $|Z| \leq 2$), αμφίβολη συμφωνία (για $2 < |Z| \leq 3$) και μη ικανοποιητική συμφωνία (για $|Z| > 3$). Υπογραμμίζεται ότι οι συνδυασμένες αβεβαιότητες περιλαμβάνουν όλες τις πηγές σφάλματος που εντοπίστηκαν και σχετίζονται με την πειραματική διαδικασία, τις προσομοιώσεις και τα πυρηνικά δεδομένα. Πιο

συγκεκριμένα, έχουν ληφθεί υπ' όψιν οι αβεβαιότητες στις τιμές των ενεργών διατομών, της μάζας των υλικών και του δείγματος, της πειραματικά μετρούμενης ροής νετρονίων, της ενεργότητας της πηγής, της απόδοσης ανίχνευσης φωτονίων και των προσομοιώσεων Monte Carlo. Ανάμεσα σε όλες τις συνιστώσες, τη μεγαλύτερη συνεισφορά στη συνολική συνδυασμένη αβεβαιότητα διαπιστώθηκε ότι είχε το στατιστικό σφάλμα μέτρησης της ανίχνευσης φωτονίων (counting statistics), που έφτανε το 13.7 % στην περίπτωση του στοιχείου ^{75}As . Ακολουθούν τα σφάλματα στον υπολογισμό της απόδοσης ανίχνευσης φωτονίων (της τάξης του 5 %) και στον προσδιορισμό της νετρονικής ροής στον όγκο του δείγματος (~1.8 %) καθώς και το σφάλμα στην τιμή της ενεργού διατομής που κυμαίνεται από 0.4 % έως 2.9 %, ανάλογα με το ισότοπο.

Όπως φαίνεται στον Πίνακα 5.3, στην περίπτωση του δείγματος αναφοράς, σχεδόν για όλα τα στοιχεία παρατηρείται στατιστική συμφωνία μεταξύ της τιμής της ANE-ΔΜΟ και της τιμής αναφοράς, σε διάστημα εμπιστοσύνης 99 % (3 τυπικές αποκλίσεις). Επιπλέον, για όλα τα στοιχεία ισχύει $|Z| < 2$. Μοναδική εξαίρεση αποτελεί το στοιχείο Σαμάριο (Sm), για το οποίο η σχετική απόκλιση υπολογίζεται ίση με 18 % ενώ το Z-score έχει την τιμή -3.2. Οι διαφοροποιήσεις αυτές αποδίδονται στην απόκλιση μεταξύ της πειραματικά μετρούμενης και της υπολογιζόμενης μέσω προσομοίωσης τιμής της απόδοσης ανίχνευσης, που διαπιστώνεται για ενέργειες φωτονίων μικρότερες των 150 keV, ενεργειακή περιοχή στην οποία «ανήκει» και η φωτοκορυφή του Σαμαρίου. Επισημαίνεται ότι προκειμένου να επιτευχθεί μεγαλύτερη ακρίβεια στην ανάλυση στοιχείων που εκπέμπουν φωτόνια σε αυτό το εύρος ενεργειών, απαιτείται περαιτέρω βελτιστοποίηση του μοντέλου του ανιχνευτή Γερμανίου, στη βάση της βέλτιστης δυνατής συμφωνίας μεταξύ πειραματικά μετρούμενων και υπολογιζόμενων μέσω προσομοιώσεων τιμών της απόδοσης.

Σύμφωνα με τους Πίνακες 5.4 και 5.5, διαπιστώνεται ικανοποιητική συμφωνία μεταξύ των τιμών της ANE-ΔΜΟ και των τιμών αναφοράς για όλα τα στοιχεία του μητρικού πλέγματος (υλικό SiO_2), τόσο για το βασικό όσο και για το ομογενοποιημένο δείγμα. Σημαντικές, ωστόσο, αποκλίσεις που κυμαίνονται από 13 % έως 21 % παρατηρούνται για τα στοιχεία της ανομοιογένειας και στις δύο περιπτώσεις. Επιπλέον, ανάλογα μεγάλες είναι και οι τιμές του Z-score, υποδεικνύοντας μη ικανοποιητική συμφωνία, όπως άλλωστε αναμενόταν να παρατηρηθεί λόγω της ύπαρξης της ανομοιογένειας.

	Στοιχείο	Μάζα ANE-ΔΜΟ (mg)	Μάζα αναφοράς (mg)	Σχετική απόκλιση (%)	Z-score
Στοιχεία μητρικού υλικού	Sm	0.45 ± 0.03	0.55 ± 0.01	-18	-3.2
	As	0.98 ± 0.15	1.03 ± 0.03	-5	-0.3
	W	0.22 ± 0.03	0.23 ± 0.10	-7	-0.2
	Sc	0.362 ± 0.034	0.364 ± 0.004	-0.4	-0.1
	La	3.2 ± 0.2	3.5 ± 0.3	-10	-1.0
	Eu	0.086 ± 0.006	0.096 ± 0.003	-10	-1.5
	K	737 ± 43	804 ± 23	-8	-1.4
Στοιχεία ανομοιογένειας	Zn	536 ± 44	516 ± 5	4	0.5
	Cu	438 ± 26	425 ± 3	3	0.5
	Ga	5.24 ± 0.66	5.51 ± 0.03	-5	-0.4

Πίνακας 5.3 Αποτελέσματα ανάλυσης για το δείγμα αναφοράς

	Στοιχείο	Μάζα ANE-ΔΜΟ (mg)	Μάζα αναφοράς (mg)	Σχετική απόκλιση (%)	Z-score
Στοιχεία μητρικού υλικού	Sm	0.45 ± 0.03	0.55 ± 0.01	-18	-3.1
	As	0.98 ± 0.15	1.03 ± 0.03	-5	-0.3
	W	0.22 ± 0.03	0.23 ± 0.10	-7	-0.2
	Sc	0.362 ± 0.034	0.364 ± 0.004	-0.4	-0.1
	La	3.2 ± 0.2	3.5 ± 0.3	-10	-1.0
	Eu	0.085 ± 0.006	0.096 ± 0.003	-11	-1.6
	K	735 ± 43	804 ± 23	-9	-1.4
Στοιχεία ανομοιογένειας	Zn	409 ± 33	516 ± 5	-21	-3.2
	Cu	370 ± 21	425 ± 3	-13	-2.7
	Ga	4.54 ± 0.57	5.51 ± 0.03	-18	-1.7

Πίνακας 5.4 Αποτελέσματα ανάλυσης για το βασικό δείγμα

	Στοιχείο	Μάζα ANE-ΔΜΟ (mg)	Μάζα αναφοράς (mg)	Σχετική απόκλιση (%)	Z-score
Στοιχεία μητρικού υλικού	Sm	0.45 ± 0.03	0.55 ± 0.01	-17	-3.1
	As	0.98 ± 0.15	1.03 ± 0.03	-4	-0.3
	W	0.22 ± 0.03	0.23 ± 0.10	-7	-0.2
	Sc	0.364 ± 0.034	0.364 ± 0.004	-0.03	0.003
	La	3.2 ± 0.2	3.5 ± 0.3	-9	-1.0
	Eu	0.085 ± 0.006	0.096 ± 0.003	-11	-1.6
	K	739 ± 44	804 ± 23	-8	-1.3
Στοιχεία ανομοιογένειας	Zn	411 ± 33	516 ± 5	-20	-3.2
	Cu	371 ± 21	425 ± 3	-13	-2.6
	Ga	4.55 ± 0.57	5.51 ± 0.03	-17	-1.7

Πίνακας 5.5 Αποτελέσματα ανάλυσης για το ομογενοποιημένο δείγμα

5.1.7 Συζήτηση και συμπεράσματα

Η μελέτη της επίδρασης των ανομοιογενειών στα αποτελέσματα της ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση δειγμάτων μεγάλου όγκου έχει απασχολήσει αρκετά, τόσο σε ποιοτικό όσο και σε ποσοτικό επίπεδο. Οι Overwater & Bode (1998) καθώς και οι Tzika et al. (2007) μελέτησαν την επίδραση των ανομοιογενειών σε κυλινδρικά δείγματα κάνοντας χρήση προσομοιώσεων και έδειξαν ότι η ύπαρξή τους στο μεγάλο δείγμα επηρεάζει τόσο την ροή των νετρονίων στον όγκο του δείγματος όσο και τα αποτελέσματα της φασματοσκοπικής ανάλυσης, οδηγώντας σε σημαντικά σφάλματα κατά την εκτίμηση των συγκεντρώσεων των στοιχείων στο δείγμα. Και οι δύο μελέτες κατέληξαν στο συμπέρασμα ότι οι υπολογισμοί στοιχειακών συγκεντρώσεων επηρεάζονται είτε η ανομοιογενής κατανομή αφορά στα βασικά στοιχεία που συνθέτουν το υλικό (matrix elements) είτε στα ιχνοστοιχεία (trace elements) του δείγματος. Επιπλέον, συγκρίνοντας διάφορους τύπους ανομοιογενειών, έδειξαν ότι οι μεγαλύτερες αποκλίσεις προκύπτουν για ανομοιογενή κατανομή των υπό μελέτη ιχνοστοιχείων στο δείγμα, η οποία επηρεάζει κατά κύριο λόγο τις φασματοσκοπικές μετρήσεις. Η μεγαλύτερη μάλιστα επίδραση παρατηρείται όταν τα ιχνοστοιχεία που ενδιαφέρουν συγκεντρώνονται είτε στην εξωτερική επιφάνεια είτε στο κέντρο (πάνω στον άξονα συμμετρίας) του κυλινδρικού δείγματος.

Στα πλαίσια της παρούσας μελέτης, πραγματοποιήθηκε η πειραματική επιβεβαίωση των δυνατοτήτων της τεχνικής της ANE-ΔΜΟ για την ανάλυση ανομοιογενών δειγμάτων μεγάλου όγκου. Η επίδραση των ανομοιογενειών στα αποτελέσματα της ανάλυσης εκτιμήθηκε μέσω της μελέτης διαφορετικών θεωρήσεων για την ομοιογένεια του δείγματος -είτε αγνοώντας πλήρως την ύπαρξη της ανομοιογένειας (βασικό δείγμα) είτε υποθέτοντας ομοιόμορφη κατανομή των στοιχείων της ανομοιογένειας μέσα στο υλικό του δείγματος (ομογενοποιημένο δείγμα)- και της σύγκρισής τους στη συνέχεια με την λεπτομερώς προσομοιωμένη περίπτωση του ανομοιογενούς δείγματος (δείγμα αναφοράς).

Όπως ήδη φάνηκε, συμφωνία εντός ± 10 % παρατηρήθηκε, για όλα τα στοιχεία του υλικού SiO_2 και της ανομοιογένειας εκτός του Σαμαρίου, στην περίπτωση που η ανομοιογένεια λήφθηκε υπ'όψιν και μοντελοποιήθηκε με λεπτομέρεια. Αντίθετα, όταν η παρουσία της αγνοήθηκε πλήρως ή θεωρήθηκε ομοιόμορφα κατανεμημένη, σημαντικότερες αποκλίσεις διαπιστώθηκαν για τα στοιχεία της ανομοιογένειας, παρ'ότι συμφωνία εντός ± 11 % παρατηρήθηκε για τα

στοιχεία του υλικού SiO_2 , εξαιρουμένου πάλι του Σαμαρίου. Οι διαφοροποιήσεις στην περίπτωση του Σαμαρίου αποδίδονται στην απόκλιση μεταξύ της πειραματικά μετρούμενης και της υπολογιζόμενης μέσω προσομοίωσης τιμής της απόδοσης αντίχνησης, που διαπιστώνεται για ενέργειες φωτονίων μικρότερες των 150 keV, ενεργειακή περιοχή στην οποία «ανήκει» και η συγκεκριμένη φωτοκορυφή.

Τα αποτελέσματα αυτής της μελέτης αποδεικνύουν ότι αν η ύπαρξη και η μακροσκοπική σύσταση της ανομοιογένειας είναι γνωστές, τότε η τεχνική της ANE-ΔΜΟ είναι ικανή να παρέχει αξιόπιστα και ακριβή αποτελέσματα. Σε αντίθετη περίπτωση, μεγάλες αποκλίσεις προκύπτουν ως αποτέλεσμα της πλήρους ή μερικής αποτυχίας στην περιγραφή της ανομοιογενούς σύστασης του υλικού του δείγματος. Επιπρόσθετα, ακόμα κι αν ο γραμμικός συντελεστής εξασθένησης των ακτίνων-γ στο υλικό του δείγματος προσδιοριστεί με ακρίβεια μέσω αντίστοιχων μετρήσεων, τα αποτελέσματα της ανάλυσης των στοιχείων της ανομοιογένειας θα εξακολουθούν να είναι ανακριβή, δεδομένου ότι το δείγμα θα έχει λανθασμένα θεωρηθεί ομογενές. Επιπλέον, δε μπορούν να υπολογιστούν στοιχειακές συγκεντρώσεις καθώς σε κάθε περίπτωση δε θα έχει εκτιμηθεί σωστά ο αντίστοιχος όγκος υλικού. Αποδεικνύεται, συνεπώς, ότι η –έστω και όχι πλήρης- εκ των προτέρων γνώση της ύπαρξης και της θέσης της ανομοιογένειας μέσα στο μεγάλο δείγμα είναι απαραίτητη προκειμένου να επιτευχθεί ποσοτική στοιχειακή ανάλυση. Συμπερασματικά, αναδεικνύεται η ανάγκη ανάπτυξης τεχνικών τρισδιάστατης ανάλυσης και απεικόνισης του δείγματος μεγάλου όγκου, που θα εξασφάλιζαν πλήρη γνώση για την ύπαρξη και κατανομή τυχόν ανομοιογενειών μέσα στο υλικό του δείγματος.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 6^ο – ΑΝΑΠΤΥΞΗ & ΒΕΛΤΙΣΤΟΠΟΙΗΣΗ ΤΕΧΝΙΚΗΣ

Οι αναμφισβήτητα μεγάλες δυνατότητες της τεχνικής της ANE-ΔΜΟ συναντούν σημαντικούς περιορισμούς, όπως ήδη περιγράφηκε στο προηγούμενο Κεφάλαιο, στις περιπτώσεις ανάλυσης ανομοιογενών δειγμάτων. Η ύπαρξη ανομοιογενειών στην κατανομή των στοιχείων μέσα στον όγκο του δείγματος και πολύ περισσότερο η παράβλεψή τους στη διαδικασία της ανάλυσης, μπορεί να επηρεάσει σημαντικά την ακρίβεια της μεθοδολογίας και να οδηγήσει σε σημαντικά σφάλματα κατά τον υπολογισμό των στοιχειακών συγκεντρώσεων. Αντίθετα, αν η ύπαρξη και η μακροσκοπική σύσταση της ανομοιογένειας είναι γνωστές, τότε η τεχνική της ANE-ΔΜΟ είναι ικανή να παράγει αξιόπιστα και ακριβή αποτελέσματα. Αναδεικνύεται, συνεπώς, η ανάγκη για την ανάπτυξη μιας τεχνικής που θα μπορεί να παρέχει επαρκή πληροφορία για την ύπαρξη και τη θέση τυχόν ανομοιογενειών μέσα στο μεγάλο δείγμα, επιτρέποντας την υλοποίηση αξιόπιστης ποιοτικής και –κυρίως– ποσοτικής ανάλυσης.

Με στόχο την αντιστοίχιση στην παραπάνω αναγκαιότητα, διερευνήθηκε η δυνατότητα αξιοποίησης της τεχνικής της κατευθυνόμενης γ-σάρωσης (collimated gamma scanning), με σκοπό την επέκταση της ANE-ΔΜΟ στη μελέτη ανομοιογενών δειγμάτων. Η τεχνική της κατευθυνόμενης γ-σάρωσης έχει χρησιμοποιηθεί στην γ-φασματομετρία για τη μελέτη ραδιενεργών καταλοίπων που παρήχθησαν σε πυρηνικές εγκαταστάσεις [Venkataraman et al. (2007)]. Επίσης, οι Baas et al. (1999) ανέπτυξαν μια μέθοδο κατευθυνόμενης σάρωσης για την εκτίμηση της παρουσίας ακραίων ανομοιογενειών και τον προσδιορισμό της χωρικής κατανομής της ενεργότητας μέσα στο δείγμα κατά την ανάλυση.

Η τεχνική που παρουσιάζεται στο παρόν κεφάλαιο αποτελεί σημαντική επέκταση των ως τώρα προτεινόμενων μεθόδων, καθώς περιλαμβάνει όχι μόνο την ανίχνευση της ύπαρξης ανομοιογενούς κατανομής της ενεργότητας μέσα στο μεγάλο δείγμα αλλά και τη διόρθωση της επίδρασής της στα φασματοσκοπικά δεδομένα. Αποτελεί συνεπώς σημαντική εξέλιξη της τεχνικής της ANE-ΔΜΟ, συμβάλλοντας στην απαίτηση για υψηλής ακρίβειας ανάλυση ανομοιογενών δειγμάτων μεγάλου όγκου και διευρύνοντας επομένως τις εφαρμογές της τεχνικής σε τομείς όπως η

μελέτη αντικειμένων πολιτιστικής κληρονομιάς, η διαχείριση ραδιενεργών καταλοίπων, οι γεωλογικές και περιβαλλοντικές μελέτες.

6.1 Μέθοδος

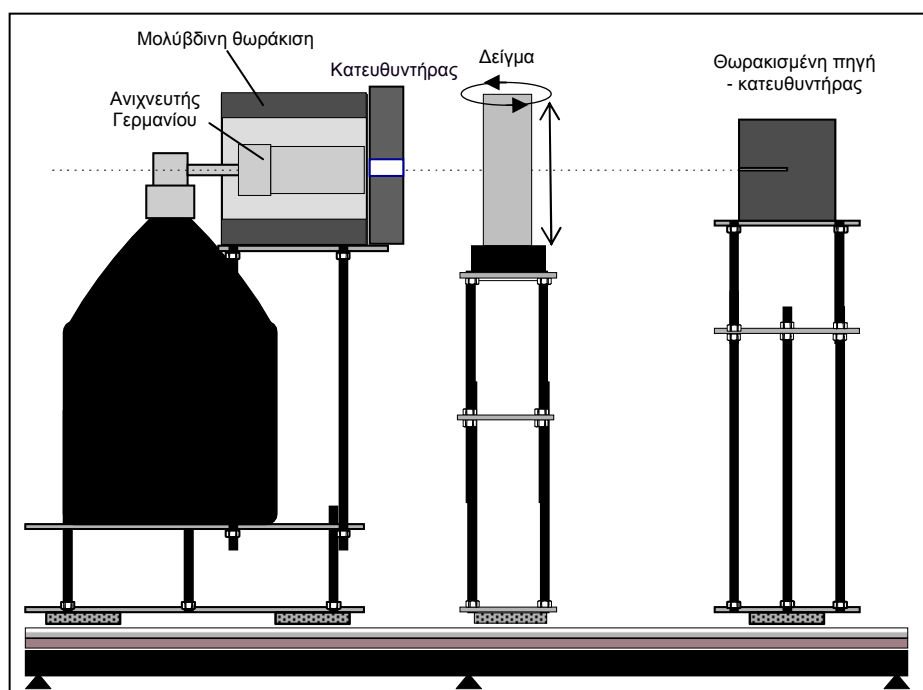
Συνδυάζοντας πειραματικές μετρήσεις και προσομοιώσεις, η μέθοδος που αναπτύχθηκε, αξιοποιεί την κατευθυνόμενη γ -σάρωση του δείγματος για τον εντοπισμό τυχόν ανομοιογένειας και τις προσομοιώσεις Monte Carlo για τη διόρθωση της επίδρασής της στη διαδικασία της ανάλυσης. Πιο συγκεκριμένα, το μεγάλο δείγμα σαρώνεται με τη χρήση κατευθυντήρα σε κατάλληλη ανιχνευτική διάταξη προκειμένου να «χαρτογραφηθεί» η κατανομή της ενεργότητας στο εσωτερικό του. Ακολούθως, η πληροφορία αυτή εισάγεται στον κώδικα προσομοίωσης με τη βοήθεια του οποίου υπολογίζεται η απόδοση ανίχνευσης για τη συγκεκριμένη διάταξη πηγής-ανιχνευτή. Τέλος, τα αποτελέσματα των υπολογισμών συνδυάζονται με τα πειραματικά δεδομένα γ -φασματοσκοπίας με στόχο τον προσδιορισμό των ζητούμενων μεγεθών (στοιχειακές συγκεντρώσεις κλπ.).

6.1.1 Πειραματική διαδικασία

Για την ανίχνευση της εκπεμπόμενης από το μεγάλο δείγμα ακτινοβολίας- γ χρησιμοποιήθηκε η διάταξη φασματοσκοπίας του εργαστηρίου του ΙΠΤ-Α, που εκτός από τον ανιχνευτή Γερμανίου, τη θωράκισή του και το δειγματοφορέα περιλάμβανε και ρυθμιζόμενο παράλληλο κατευθυντήρα κυλινδρικής οπής (parallel-hole collimator).

Η διάταξη -η οποία έχει περιγραφεί αναλυτικά στο 3^ο Κεφάλαιο- αποτελείται από ομοαξονικό ημιαγωγό ανιχνευτή Γερμανίου (σχετικής απόδοσης 85 %, διακριτικής ικανότητας 1.66 keV για την φωτοκορυφή 1333 keV του ^{60}Co και λόγο φωτοκορυφής προς Compton ίσο με 89:1), που περιβάλλεται από μολύβδινη θωράκιση πάχους 5 cm προκειμένου να επιτευχθεί μείωση της ακτινοβολίας υποβάθρου. Η διάταξη περιλαμβάνει ακόμα σύστημα πηγής-κατευθυντήρα που παρέχει τη δυνατότητα πραγματοποίησης μετρήσεων εξασθένησης ακτίνων- γ μέσα στο υλικό του δείγματος (transmission measurements). Επιπλέον, σημειώνεται ότι ο δειγματοφορέας διαθέτει δυνατότητες περιστροφής καθώς και οριζόντιας και κατακόρυφης μετακίνησης.

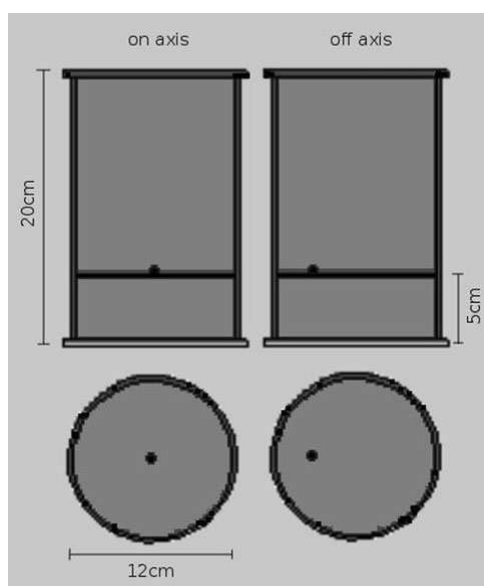
Για τις ανάγκες της παρούσας μελέτης, μπροστά από τον ανιχνευτή τοποθετήθηκε κυλινδρικός κατευθυντήρας κατασκευασμένος από μολύβδο, πάχους 10 cm και διαμέτρου οπής 1 cm. Ο κατευθυντήρας χρησιμοποιείται προκειμένου να περιοριστεί η στερεά γωνία που «βλέπει» ο ανιχνευτής στο υπο-ανάλυση δείγμα. Η διαδικασία επιλογής της διαμέτρου της οπής του κατευθυντήρα αποτελεί ουσιαστικά συμβιβασμό μεταξύ της ζητούμενης χωρικής διακριτικής ικανότητας της μέτρησης και της απόδοσης του ανιχνευτή. Η οπή του 1 cm επιλέχθηκε κατόπιν διεξοδικής μελέτης που συνδύαζε πειραματικές δοκιμές και χρήση προσομοιώσεων, τα αποτελέσματα της οποίας υπέδειξαν ότι η συγκεκριμένη διάμετρος οπής είναι επαρκής για τους σκοπούς της παρούσας μελέτης (παράγραφος 6.2.1). Η απόσταση μεταξύ του επιπέδου του κατευθυντήρα και της πρόσθιας επιφάνειας του ανιχνευτή ήταν ίση με 4.5 cm. Η διάταξη κατευθυνόμενης σάρωσης απεικονίζεται στο Σχήμα 6.1.



Σχήμα 6.1. Δισδιάστατη αναπαράσταση της διάταξης φασματοσκοπίας-γ που χρησιμοποιήθηκε για την κατευθυνόμενη σάρωση (εγκάρσια διατομή)

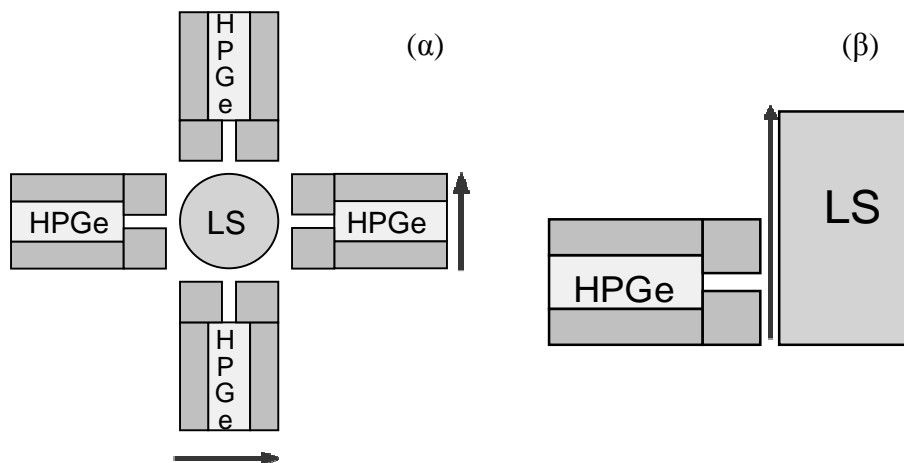
Για την εκτίμηση της διακριτικής ικανότητας του κατευθυντήρα διεξήχθησαν μετρήσεις με σημειακές πηγές ^{60}Co and ^{137}Cs , ενεργότητας 50.8 και 292.1 kBq, αντίστοιχα. Και στις δύο περιπτώσεις, οι μετρήσεις πραγματοποιήθηκαν για διάφορες αποστάσεις πηγής-κατευθυντήρα (source to collimator distance – SCD).

Με στόχο την πειραματική επιβεβαίωση της τεχνικής αναλύθηκε δείγμα κυλινδρικού σχήματος όγκου 2 L. Για την κατασκευή του, χρησιμοποιήθηκε κυλινδρικό δοχείο από Perspex, πλήρες με σκόνη χαλαζία (Quartz, Sigma-Aldrich, silicon dioxide powder). Το ύψος του δοχείου ήταν 20 cm, η εξωτερική του διάμετρος 12 cm και το πάχος των τοιχωμάτων του ίσο με 0.3 cm. Στο εσωτερικό του δοχείου και σε θέση που αντιστοιχεί στο $\frac{1}{4}$ του ύψους του (δηλ. $h=5$ cm), τοποθετήθηκε δίσκος, κατασκευασμένος από το ίδιο υλικό, διαμέτρου 11.4 cm και πάχους 0.3 cm, προκειμένου να επιτρέψει την εισαγωγή ραδιενεργών πηγών σε επιλεγμένες θέσεις μέσα στο δείγμα. Στο συγκεκριμένο πείραμα, ως πηγή χρησιμοποιήθηκε ενεργοποιημένο έλασμα Κοβαλτίου, μάζας 0.0234 gr και ενεργότητας 23.95 kBq. Το έλασμα τοποθετήθηκε σε δύο θέσεις: (α) στο κέντρο του δίσκου, πάνω στον άξονα του κυλινδρικού δείγματος και (β) έκκεντρα, σε απόσταση 3 cm από τον άξονα του δείγματος (Σχήμα 6.2). Και στις δύο περιπτώσεις, μετρήσεις πραγματοποιήθηκαν με και χωρίς χρήση του κατευθυντήρα στην ανιχνευτική διάταξη.



Σχήμα 6.2. Σχηματική αναπαράσταση του μεγάλου δείγματος και της πηγής για τις δύο περιπτώσεις που μελετήθηκαν (σε κατακόρυφη και οριζόντια διατομή)

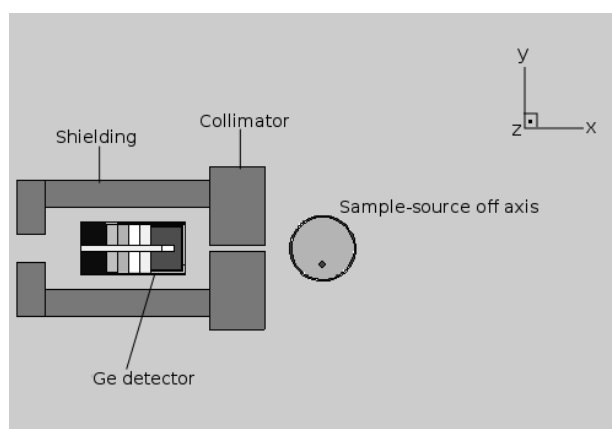
Το δείγμα σαρώθηκε καθ' ύψος και κατά τον οριζόντιο άξονα με βήματα του 1 cm σε 4 γωνίες περιστροφής, βήματος 90° η κάθε μία (Σχήμα 6.3). Ο χρόνος μέτρησης για κάθε βήμα ήταν 1 ώρα. Σημειώνεται ότι όλα τα φάσματα που καταγράφηκαν διορθώθηκαν με βάση τα αντίστοιχα φάσματα ακτινοβολίας υποβάθρου.



Σχήμα 6.3. Σχηματική αναπαράσταση της κατευθυνόμενης σάρωσης του μεγάλου δείγματος (α) οριζοντίως και (β) καθ' ύψος

6.1.2 Προσομοιώσεις

Για την προσομοίωση του μεγάλου δείγματος και της ανιχνευτικής διάταξης, συμπεριλαμβανομένου του κατευθυντήρα και της θωράκισης του ανιχνευτή, χρησιμοποιήθηκε ο κώδικας MCNP5 [X-5 Monte Carlo Team (2003)]. Τα πυρηνικά δεδομένα που αξιοποιήθηκαν στις προσομοιώσεις προήλθαν από τις βιβλιοθήκες ενεργών διατομών Evaluated Nuclear Data File (ENDF/B-VI) [Rose (1991)]. Επισημαίνεται ότι προσομοιώσεις εκτελέστηκαν για κάθε μία από τις περιπτώσεις που μελετήθηκαν (διάταξη με ή χωρίς κατευθυντήρα, δείγμα με πηγή έκκεντρα ή πάνω στον άξονα). Στο Σχήμα 6.4 απεικονίζεται ένα από τα μοντέλα που αντιστοιχούν σε διάταξη ανιχνευτή με κατευθυντήρα και μεγάλο δείγμα που περιέχει πηγή τοποθετημένη έκκεντρα.



Σχήμα 6.4. Δισδιάστατη αναπαράσταση του μοντέλου δείγματος-ανιχνευτή με κατευθυντήρα (οριζόντια διατομή)

Σε όλες τις περιπτώσεις, ο κρύσταλλος Γερμανίου μοντελοποιήθηκε με βάση τα χαρακτηριστικά που παρείχε το πιστοποιητικό κατασκευής του ενώ ο ενεργός όγκος του (active crystal volume) προσαρμόστηκε ημι-εμπειρικά μέσω σύγκρισης με πειραματικές μετρήσεις που είχαν διεξαχθεί με πηγές αναφοράς [Tzika et al. (2010)] σύμφωνα με την μεθοδολογία που παρουσιάστηκε στο Κεφάλαιο 4 της παρούσας ΔΔ. Ο εικονικός ανιχνευτής F8 (pulse height tally) του κώδικα MCNP χρησιμοποιήθηκε για την καταγραφή της εναποτιθέμενης ενέργειας στον ενεργό όγκο του κρυστάλλου και κατ' επέκταση για την εκτίμηση της απόδοσης φωτοκορυφής (FEPE) του ανιχνευτή για τις ενέργειες φωτονίων που ενδιέφεραν.

Η απόδοση φωτοκορυφής προσδιορίστηκε μέσω προσομοίωσης για όλες τις σχετικές θέσεις δείγματος-ανιχνευτή, δηλαδή για οριζόντια και κατακόρυφη μετακίνηση βήματος 1 cm καθώς και για τις 4 γωνίες περιστροφής (90° έκαστη) του δείγματος. Για κάθε μία, δηλαδή, από τις περιπτώσεις που μελετήθηκαν πειραματικά αναπτύχθηκε λεπτομερές μοντέλο και εκτελέστηκε προσομοίωση, έτσι ώστε να υπάρχει πλήρης αντιστοίχιση -άρα και δυνατότητα άμεσης σύγκρισης- πειραματικών μετρήσεων και υπολογισμών με χρήση προσομοίωσης. Επισημαίνεται ότι σε όλες τις προσομοιώσεις η σχετική στατιστική αβεβαιότητα των αποτελεσμάτων ήταν μικρότερη του 3 %.

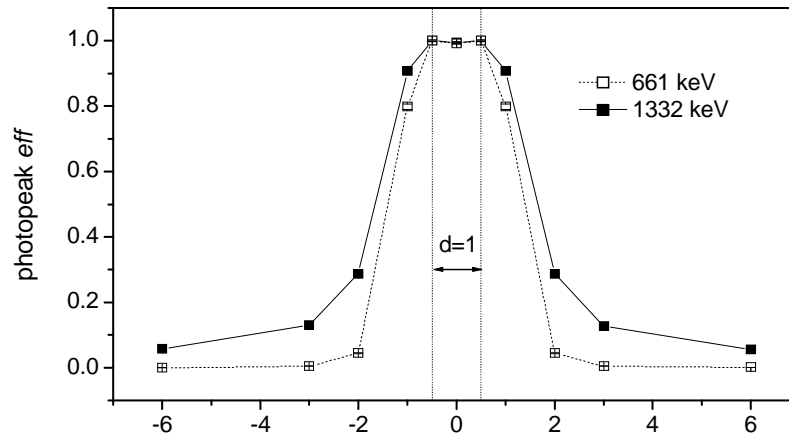
6.2 Αποτελέσματα

Στη συνέχεια παρουσιάζονται αναλυτικά τα αποτελέσματα που αντιστοιχούν στον προσδιορισμό της διακριτικής ικανότητας του κατευθυντήρα, την ανίχνευση και τον χωρικό προσδιορισμό της ανομοιογένειας και τη διόρθωση της επίδρασής της στα δεδομένα της φασματοσκοπικής ανάλυσης. Για την εκτίμηση της συμφωνίας των αποτελεσμάτων με τις τιμές αναφοράς χρησιμοποιήθηκαν τα μεγέθη της σχετικής στατιστικής απόκλισης (Relative Bias) και του Z-score, τα οποία υπολογίστηκαν με βάση τις εξισώσεις που περιγράφηκαν σε προηγούμενα Κεφάλαια.

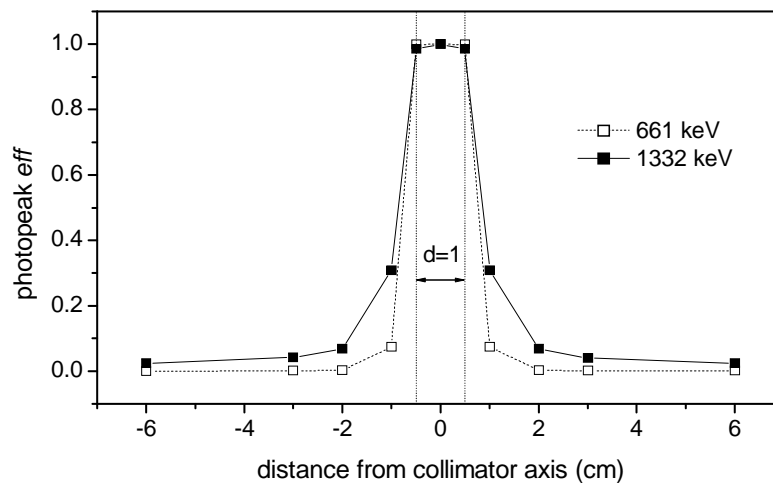
6.2.1. Διακριτική ικανότητα κατευθυντήρα

Στο Σχήμα 6.5 απεικονίζεται η υπολογισμένη μέσω προσομοιώσεων απόδοση φωτοκορυφής του ανιχνευτή για σημειακή πηγή στον αέρα, ως συνάρτηση της απόστασης της πηγής από τον άξονα του κυλινδρικού ανιχνευτή, για δύο διαφορετικές θέσεις της πηγής. Στην πρώτη περίπτωση (γράφημα α) η απόσταση

πηγής-κατευθυντήρα (source to collimator distance – SCD) είναι ίση με 10.5 cm ενώ στη δεύτερη (γράφημα b) είναι ίση με 3 cm. Και στις δύο περιπτώσεις, η απόδοση φωτοκορυφής έχει υπολογιστεί για φωτόνια ενεργειών 661 keV και 1332 keV.



(a)



(b)

Σχήμα 6.5. Υπολογισμένη μέσω προσομοίωσης απόδοση φωτοκορυφής συναρτήσει της απόστασης της πηγής από τον άξονα του ανιχνευτή για ενέργειες φωτονίων 661 keV και 1332 keV και για SCD (a) 10.5 και (b) 3 cm

Από τα γραφήματα φαίνεται ότι η χωρική διακριτική ικανότητα του συστήματος ανιχνευτή-κατευθυντήρα εξαρτάται από την ενέργεια και τη σχετική απόσταση πηγής-κατευθυντήρα (SCD). Μάλιστα, καλύτερη χωρική διακριτική ικανότητα επιτυγχάνεται για μικρότερη SCD. Το Σχετικό Εύρος στο ήμισυ του μεγίστου (Relative Width at 50% of the maximum - RW50%) της συνάρτησης απόδοσης του ανιχνευτή ήταν ίσο με 3.32 και 1.78 cm για SCD 10.5 και 3 cm, αντίστοιχα, για τα

φωτόνια ενέργειας 1332 keV. Για την ενέργεια των 661 keV, η τιμή του RW50% ήταν 2.80 και 1.60 cm για SCD ίση με 10.5 και 3 cm, αντίστοιχα. Επιπλέον, το Σχετικό Εύρος στο 90 % του μεγίστου (Relative Width at 90% of the maximum – RW90%) της συνάρτησης απόδοσης του ανιχνευτή υπολογίστηκε ίσο με 2.00 και 1.10 cm για φωτόνια ενέργειας 1332 keV ενώ για φωτόνια 661 keV είχε την τιμή 1.42 και 1.10, για SCD 10.5 και 3 cm, αντίστοιχα (Πίνακας 6.1). Τα αποτελέσματα αυτά είναι συνάρτηση του γεωμετρικού παράγοντα λόγω της θέσης της πηγής ως προς το σύστημα κατευθυντήρα-ανιχνευτή και της μεγαλύτερης διεισδυτικής ικανότητας που έχουν τα φωτόνια υψηλότερων ενεργειών στο υλικό του ανιχνευτή.

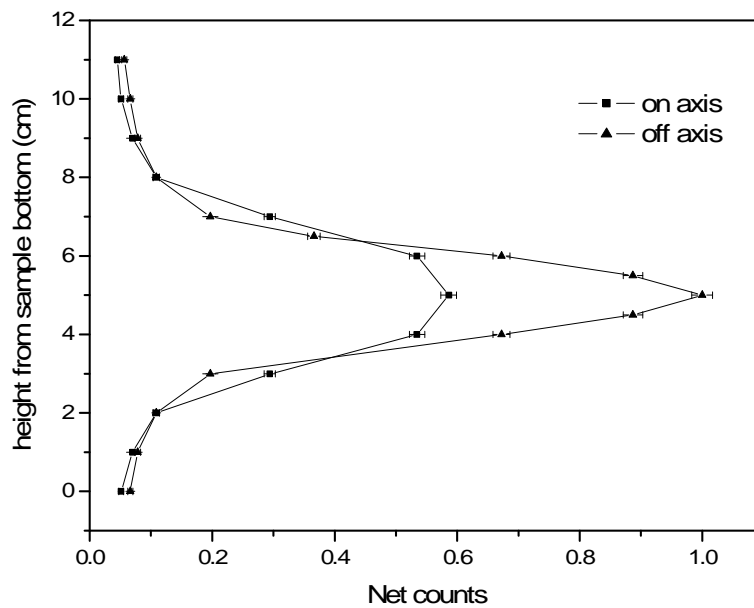
Διακριτική ικανότητα	SCD = 3 cm		SCD = 10.5 cm	
	661 keV	1332 keV	661 keV	1332 keV
RW50% (cm)	1.60	1.78	2.80	3.32
RW90% (cm)	1.10	1.10	1.42	2.00

Πίνακας 6.1. Διακριτική ικανότητα για συγκεκριμένες ενέργειες φωτονίων και αποστάσεις πηγής-κατευθυντήρα (SCD)

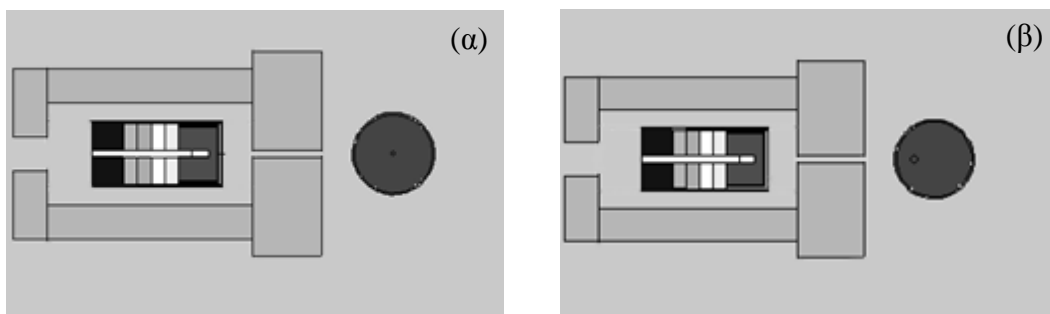
Παράλληλα, από την εξέταση της συνάρτησης απόδοσης φωτοκορυφής (Σχήμα 6.5), συμπεραίνεται ότι για να επιτευχθεί ομοιομορφία της τάξης του 90 % στην τιμή της απόδοσης για τον όγκο του δείγματος που σαρώνεται, απαιτείται βήμα σάρωσης ίσο με 1.1 cm, για τη συγκεκριμένη διάταξη ανιχνευτή-κατευθυντήρα. Στα πλαίσια της παρούσας μελέτης επιλέχθηκε να χρησιμοποιηθεί βήμα σάρωσης ίσο με 1 cm.

6.2.2. Σάρωση μεγάλου δείγματος

Στο Σχήμα 6.6 απεικονίζεται η συνάρτηση απόδοσης του ανιχνευτή κατά μήκος του κατακόρυφου άξονα z για τις δύο περιπτώσεις δείγματος που μελετήθηκαν (πηγή τοποθετημένη στο κέντρο και έκκεντρα), για φωτόνια ενέργειας 1332 keV και για γωνία ανίχνευσης 0° (Σχήμα 6.7). Και στις δύο περιπτώσεις, η απόσταση του κατευθυντήρα από τον άξονα του κυλινδρικού δείγματος επιλέχθηκε να είναι 10.5 cm προκειμένου να επιτρέπεται η άνετη περιστροφή και μετακίνηση του μεγάλου δείγματος, η ακτίνα του οποίου ήταν ίση με 6 cm.



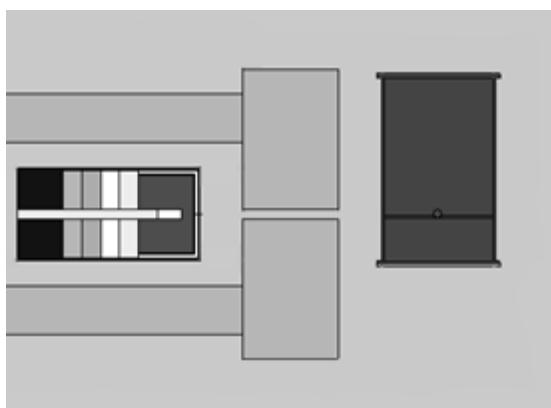
Σχήμα 6.6. Απόδοση ανιχνευτή κατά μήκος του άξονα-z για φωτόνια 1332 keV και κατευθυντήρα σε απόσταση 10.5 cm από το κέντρο του δείγματος



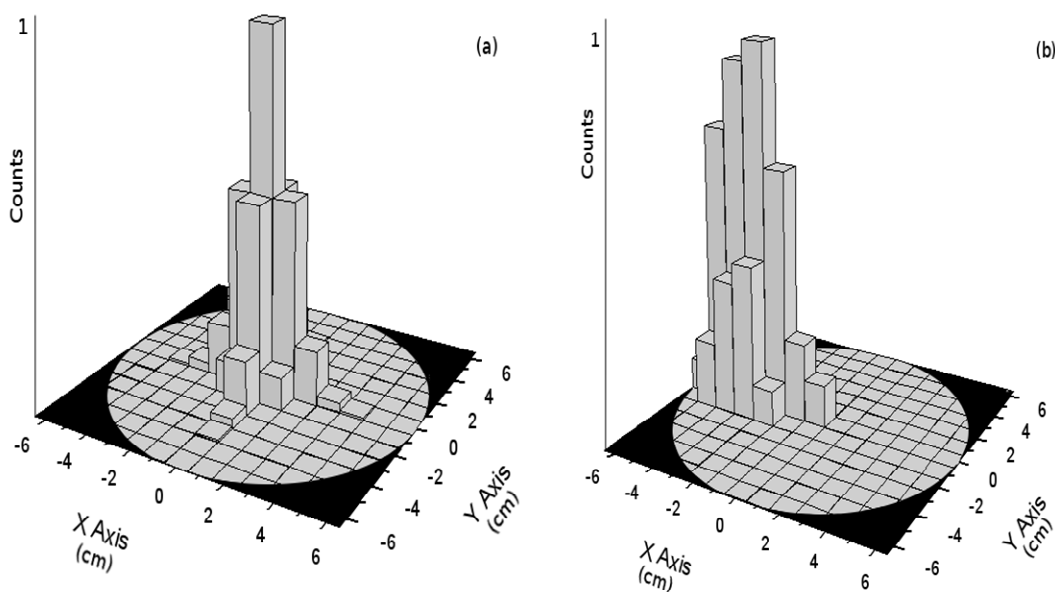
Σχήμα 6.7. Σχηματική αναπαράσταση της διάταξης ανιχνευτή-δείγματος για γωνία ανίχνευσης 0° και πηγή (α) στο κέντρο και (β) έκκεντρα (οριζόντια διατομή)

Όπως συμπεραίνεται με βάση το Σχήμα 6.6, το 90 % του σήματος προέρχεται από τη «στρώση» του δείγματος που αντιστοιχεί σε ύψος (5.0 ± 1.0) cm και (5.0 ± 0.5) cm για πηγή τοποθετημένη στο κέντρο και έκκεντρα, αντίστοιχα. Η υψηλότερη απόδοση του ανιχνευτή για την περίπτωση της έκκεντρα τοποθετημένης πηγής εξηγείται από τη μικρότερη απόσταση που διανύουν τα φωτόνια μέσα στο υλικό σε σχέση με την περίπτωση της τοποθετημένης στο κέντρο πηγής (βλ. Σχήμα 6.7), πράγμα που συνεπάγεται μικρότερη εξασθένηση των φωτονίων μέσα στο υλικό του δείγματος.

Οι κατανομές ενεργότητας που αποκτήθηκαν από τη διαδικασία της σάρωσης για τη συγκεκριμένη «στρώση» του δείγματος, δηλαδή για $Z = 5 \text{ cm}$ (Σχήμα 6.8), παρουσιάζονται στο Σχήμα 6.9 για τις δύο θέσεις που μελετήθηκαν: (α) πηγή τοποθετημένη στο κέντρο και (β) πηγή τοποθετημένη έκκεντρα. Σημειώνεται ότι και οι δύο κατανομές έχουν προκύψει από τη σάρωση του δείγματος κατά τους άξονες x και y με οριζόντια βήματα 1 cm και για τις 4 γωνίες ανίχνευσης ($0^\circ, 90^\circ, 180^\circ, 270^\circ$).



Σχήμα 6.8. Δισδιάστατη αναπαράσταση της διάταξης ανιχνευτή-δείγματος για πηγή στο κέντρο και σάρωση σε ύψος $z = 5 \text{ cm}$ (κατακόρυφη διατομή)



Σχήμα 6.9. Κατανομές ενεργότητας για σάρωση σε ύψος $z = 5 \text{ cm}$ και πηγή (α) στο κέντρο και (β) έκκεντρα

Όπως φαίνεται από το Σχήμα 6.9, και στις δύο κατανομές διακρίνεται ένα «μέγιστο» ενεργότητας (activity “hot spot”), το οποίο αντιστοιχεί στην πραγματική θέση της πηγής μέσα στο δείγμα για κάθε περίπτωση. Επιβεβαιώνεται συνεπώς η επιτυχής ανίχνευση των «ανομοιογενειών» που είχαν εισαχθεί κατά την παρασκευή του δείγματος αναφοράς σε γνωστές θέσεις (στο κέντρο και σε απόσταση 3 cm από τον κατακόρυφο άξονα).

6.2.3. Συντελεστές διόρθωσης

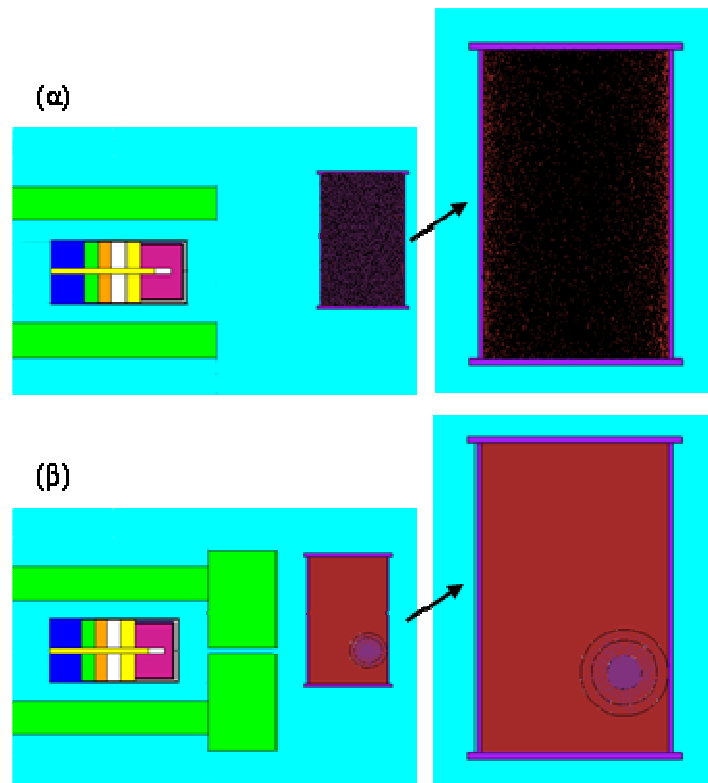
Οι κατανομές ενεργότητας που προσδιορίστηκαν πειραματικά υποδεικνύουν την ύπαρξη «μεγίστων» εκπεμπόμενης ακτινοβολίας-γ ενέργειας 1332 keV και στις δύο περιπτώσεις δείγματος που μελετήθηκαν, όπως φάνηκε από τα Σχήματα 6.6 και 6.9. Τα «μέγιστα» αυτά ανιχνεύθηκαν σε ύψος $z = 5$ cm και σε θέσεις που αντιστοιχούν σε:

- (α) $x = 0$ cm, $y = 0$ cm για πηγή τοποθετημένη στο κέντρο
- (β) $x = -3$ cm, $y = 0$ cm για πηγή τοποθετημένη έκκεντρα.

Οι πειραματικά προσδιορισμένες αυτές κατανομές χρησιμοποιήθηκαν ως δεδομένα εισόδου στην εκτέλεση προσομοιώσεων με τον κώδικα MCNP, προκειμένου να υπολογιστεί η απόδοση του ανιχνευτή για κάθε διάταξη που εξετάστηκε (σύστημα ανιχνευτή-κατευθυντήρα-δείγματος). Στα πλαίσια αυτά, εκτιμήθηκε η απόδοση φωτοκορυφής για τους ακόλουθους συνδυασμούς:

- (1) Ομογενής κατανομή ενεργότητας και ανιχνευτής χωρίς κατευθυντήρα
- (2) Κατανομή ενεργότητας όπως προσδιορίστηκε πειραματικά (και απεικονίζεται στο Σχήμα 6.9) και ανιχνευτής με κατευθυντήρα

Στην πρώτη περίπτωση, υποτέθηκε ομογενής κυλινδρική πηγή όγκου με διαστάσεις ίσες με αυτές του δείγματος αναφοράς. Στη δεύτερη περίπτωση, χρησιμοποιήθηκε μια «σταθμισμένη» (weighted) κατανομή ενεργότητας, της οποίας το κέντρο και οι αντίστοιχοι παράγοντες στάθμισης (weighting factors) καθορίστηκαν με βάση τις πειραματικά προσδιορισμένες κατανομές του Σχήματος 6.9. Τα μοντέλα που αντιστοιχούν σε κάθε περίπτωση -τα οποία περιλαμβάνουν την ανιχνευτική διάταξη και την κατανομή που χρησιμοποιήθηκε στις προσομοιώσεις- απεικονίζονται στο Σχήμα 6.10, όπως προέκυψαν με χρήση του γραφικού προγράμματος Vised του κώδικα MCNP.



Σχήμα 6.10. Μοντέλα και κατανομές ενεργότητας για τις δύο περιπτώσεις που εξετάστηκαν

Οι υπολογισμένες μέσω προσομοιώσεων αποδόσεις φωτοκορυφής εφαρμόστηκαν στα φασματοσκοπικά δεδομένα με στόχο τον προσδιορισμό της ενεργότητας της πηγής σε κάθε περίπτωση. Τέλος, προκειμένου να αξιολογηθεί η τεχνική που αναπτύχθηκε, η ενεργότητα που εκτιμήθηκε μέσω της συγκεκριμένης τεχνικής συγκρίθηκε με την τιμή αναφοράς -δηλαδή την εκ των προτέρων γνωστή ενεργότητα του ελάσματος Κοβαλτίου που χρησιμοποιήθηκε ως πηγή-. Για τη σύγκριση των αποτελεσμάτων αξιοποιήθηκε το Z-score, όπως αυτό έχει οριστεί και περιγραφεί στο Παράρτημα Α.

Στον Πίνακα 6.2 παρουσιάζεται η υπολογισμένη ενεργότητα, η τιμή αναφοράς, ο λόγος των δύο ενεργοτήτων (υπολογισμένη προς τιμή αναφοράς) και η τιμή του Z-score, καθώς και οι αντίστοιχες συνδυασμένες στατιστικές αβεβαιότητες, για κάθε περίπτωση που μελετήθηκε. Επισημαίνεται ότι οι συνδυασμένες αβεβαιότητες περιλαμβάνουν όλες τις πηγές σφάλματος που συμβάλλουν και σχετίζονται με τα πυρηνικά δεδομένα, την πειραματική διαδικασία και τις

προσομοιώσεις. Σημειώνεται ακόμα ότι σε κάθε περίπτωση η τιμή της ενεργότητας που παρουσιάζεται στον Πίνακα 6.2 είναι η μέση ενεργότητα, όπως αυτή έχει υπολογιστεί για τις 4 γωνίες περιστροφής του μεγάλου δείγματος κατά την ανίχνευση.

Θέση πηγής	Υπαρξη κατευθυντήρα	Κατανομή	Υπολογισμένη μέσω τεχνικής ενεργότητα (kBq)	Τιμή αναφοράς ενεργότητας (kBq)	Λόγος ενεργοτήτων	Z-score
Στο κέντρο	Όχι	Ομογενής	17.96 ± 0.08	23.95 ± 1.01	0.75 ± 0.03	-5.91
	Ναι	Από Διάγραμμα 6.9 (α)	24.06 ± 0.64		1.00 ± 0.05	0.09
Έκκεντρα	Όχι	Ομογενής	21.51 ± 0.10		0.90 ± 0.04	-2.41
	Ναι	Από Διάγραμμα 6.9 (β)	24.75 ± 0.92		1.03 ± 0.06	0.59

Πίνακας 6.2. Υπολογισμένη ενεργότητα, τιμή αναφοράς, λόγος ενεργοτήτων και Z-score για κάθε περίπτωση που μελετήθηκε, μαζί με τις συνδυασμένες αβεβαιότητες

Όπως φαίνεται στον Πίνακα 6.2, μεγάλες αποκλίσεις, της τάξης του 25 % και 10 % για πηγή στο κέντρο και έκκεντρα αντίστοιχα, προέκυψαν μεταξύ των τιμών όταν αγνοήθηκε η παρουσία ανομοιογένειας στην κατανομή της ενεργότητας μέσα στο δείγμα (περίπτωση 1). Αυτό επιβεβαιώνει και η τιμή του Z-score που βρέθηκε ίση με -5.91 για πηγή στο κέντρο και -2.41 για πηγή έκκεντρα, υποδηλώνοντας μη ικανοποιητική και αμφίβολη, αντίστοιχα, συμφωνία μεταξύ των αποτελεσμάτων.

Αντίθετα, η γνώση της ύπαρξης και της θέσης της ανομοιογένειας (όπως αυτή καταγράφηκε στα προφίλ ενεργότητας που προσδιορίστηκαν πειραματικά μέσω της κατευθυνόμενης γ-σάρωσης), η αξιοποίησή της, στη συνέχεια, στη διαδικασία υπολογισμού της απόδοσης του ανιχνευτή μέσω προσομοιώσεων, και ο συνδυασμός τελικά των υπολογισμών με τα φασματοσκοπικά δεδομένα της σάρωσης οδήγησε σε ακριβή εκτίμηση του ζητούμενου μεγέθους (περίπτωση 2). Πράγματι, σε αυτήν την περίπτωση, ο λόγος των ενεργοτήτων βρέθηκε ίσος με 1.00 ± 0.05 και 1.03 ± 0.06 για πηγή τοποθετημένη στο κέντρο και έκκεντρα αντίστοιχα. Επιπρόσθετα, η τιμή του Z-

score υπολογίστηκε ίση με 0.09 και 0.59, υποδεικνύοντας ιδιαίτερα ικανοποιητική σύγκλιση των αποτελεσμάτων. Η αξιοποίηση, συνεπώς, της κατευθυνόμενης Γ-σάρωσης και ο συνδυασμός της πληροφορίας που αυτή παρέχει με τις προσομοιώσεις εξασφάλισαν εξαιρετική ακρίβεια στους υπολογισμούς για το συγκεκριμένο δείγμα αναφοράς, αποδεικνύοντας ταυτόχρονα ότι η τεχνική που αναπτύχθηκε μπορεί με επιτυχία να επεκταθεί σε άγνωστα δείγματα μεγάλου όγκου.

6.3 Συμπεράσματα-συζήτηση

Στόχος της μελέτης που παρουσιάστηκε στα πλαίσια του παρόντος Κεφαλαίου ήταν η ανάπτυξη μιας τεχνικής που θα μπορούσε να αξιοποιηθεί για την ανάλυση μη-ομογενών δειγμάτων μεγάλου όγκου, αφ' ενός παρέχοντας πληροφορία -όχι μόνο ποιοτική αλλά και ποσοτική- για τις όποιες ανομοιογένειες υπάρχουν μέσα στο δείγμα, αφ' ετέρου διορθώνοντας την επίδραση που αυτές έχουν στα αποτελέσματα της ανάλυσης. Όπως φαίνεται από τα αποτελέσματα που συζητήθηκαν για την περίπτωση δείγματος αναφοράς, η τεχνική που αναπτύχθηκε κατάφερε να εκπληρώσει το στόχο της. Με δεδομένο ότι η ανάγκη για μια τέτοια τεχνική είχε υπαγορευτεί από τις διαπιστώσεις μελετών [IAEA (2009)], σχετικά με τα προβλήματα που επιφέρει στην ανάλυση μεγάλων δειγμάτων η παρουσία ανομοιογενειών, η ανάπτυξή της δίνει στην ANE-ΔΜΟ τη δυνατότητα για σημαντικές νέες προοπτικές.

Αξιοποιώντας ταυτόχρονα πειραματικές μετρήσεις και προσομοιώσεις Monte Carlo, η τεχνική βασίστηκε στον συνδυασμό των προφίλ ενεργότητας που αποκτήθηκαν μέσω της κατευθυνόμενης σάρωσης του μεγάλου δείγματος και των υπολογισμών που έγιναν με χρήση προσομοιώσεων, προκειμένου να διορθωθούν τα συστηματικά σφάλματα που επιφέρει στην ανάλυση των πειραματικών δεδομένων η ύπαρξη μιας ανομοιογένειας. Με προϋπόθεση ότι η ανομοιογενής κατανομή λήφθηκε υπ' όψιν, η εφαρμογή των υπολογισμών στα φασματοσκοπικά δεδομένα οδήγησε σε υψηλής ακρίβειας αποτελέσματα για την ενεργότητα της πηγής, επιτυγχάνοντας εξαιρετική συμφωνία με την τιμή αναφοράς.

Η παρούσα μελέτη συμβάλλει στην κάλυψη της αναγκαιότητας για μια μη-καταστροφική αναλυτική τεχνική, που να είναι ικανή να χειριστεί μεγάλα δείγματα με ανομοιογενείς κατανομές ενεργότητας, εξασφαλίζοντας παράλληλα υψηλή ακρίβεια και αξιοπιστία. Αποτελεί σημαντική επέκταση της τεχνικής που προτάθηκε

από τους Baas et al. (1999) καθώς περιλαμβάνει όχι μόνο την ανίχνευση της ύπαρξης ανομοιογενούς κατανομής της ενεργότητας μέσα στο μεγάλο δείγμα αλλά και τη διόρθωση της επίδρασής της στα φασματοσκοπικά δεδομένα. Επεκτείνει, επομένως, σημαντικά τις δυνατότητες της ANE-ΔΜΟ σε κρίσιμους τομείς μεγάλου επιστημονικού ενδιαφέροντος, όπως είναι η διαχείριση ραδιενεργών καταλοίπων, οι αναλύσεις έργων τέχνης και κειμηλίων πολιτιστικής κληρονομιάς, οι γεωλογικές και περιβαλλοντικές μελέτες. Ανοίγεται, παράλληλα, η προοπτική αξιοποίησης της τεχνικής για τη νετρονικά επαγόμενη τομογραφία ακτίνων-γ (neutron induced gamma ray tomography) [Balogun et al. (1996)].

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 7^ο – ΕΦΑΡΜΟΓΗ ΤΗΣ ΤΕΧΝΙΚΗΣ

7.1 Η ANE-ΔΜΟ στη μελέτη της πολιτιστικής κληρονομιάς

Η τεχνική της νετρονικής ενεργοποίησης είναι ένα αναλυτικό εργαλείο που χρησιμοποιείται ευρέως και με μεγάλη επιτυχία στο πεδίο της αρχαιολογίας και στη μελέτη της πολιτιστικής κληρονομιάς, τόσο για την εξέταση της αυθεντικότητας διαφόρων αρχαιολογικών αντικειμένων και ευρημάτων όσο και για τον προσδιορισμό της προέλευσής τους [Speakman & Glascock (2007)]. Στα πλαίσια αυτών των μελετών, το στοιχειακό προφίλ που προκύπτει από την ανάλυση του εξεταζόμενου “άγνωστου” αρχαιολογικού ευρήματος ή κειμηλίου συγκρίνεται με ανάλογα προφίλ διαφόρων, ήδη ταυτοποιημένων, υλικών και πρώτων υλών με στόχο την αντιστοίχισή τους και τον προσδιορισμό κατά συνέπεια της ακριβούς προέλευσης του αντικειμένου. Λόγω του πολυστοιχειακού της χαρακτήρα αλλά και της υψηλής ακρίβειας και επαναληψιμότητας που εξασφαλίζει, η ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση έχει μάλιστα αναδειχθεί σε μια από τις κύριες τεχνικές που εφαρμόζονται στις αρχαιολογικές έρευνες.

Πολύ συχνά, ωστόσο, οι αρχαιολόγοι έρχονται αντιμέτωποι με την απαίτηση για ανάλυση θραυσμάτων μεγαλύτερου όγκου ή ακόμα και ολόκληρων αντικειμένων. Ο περιορισμός στη μάζα του υλικού που μπορεί να αναλυθεί με τη συμβατική τεχνική αποτελεί σοβαρό εμπόδιο στην εφαρμογή της ANE σε τέτοιες περιπτώσεις, αναδεικνύοντας ταυτόχρονα την αναγκαιότητα για μια τεχνική ικανή να χειριστεί μεγάλα δείγματα και μάλιστα με μη-καταστροφικό τρόπο.

Όντας μια τέτοια τεχνική, η ANE-ΔΜΟ έχει συνεπώς εξαιρετική προοπτική εφαρμογής στα πεδία της αρχαιολογίας και της μελέτης της πολιτιστικής κληρονομιάς, γεγονός που οφείλεται στα σημαντικότερα πλεονεκτήματα που διαθέτει. Πρώτα και κύρια, εφ’ όσον τα αντικείμενα εξετάζονται ολόκληρα και δεν απαιτείται δειγματοληψία επιμέρους τμημάτων του υλικού, παρέχεται η δυνατότητα ανάλυσης πολύτιμων αντικειμένων από τα οποία δεν επιτρέπεται να αποσπαστούν μικρά ή μεγαλύτερα τμήματα για αναλυτικούς λόγους. Μοναδικά έργα τέχνης, αρχαιολογικά ευρήματα και πολιτιστικά κειμήλια μπορούν να μελετηθούν χωρίς να καταστραφούν ή αλλοιωθούν,

κάτι που είναι εξαιρετικά σημαντικό δεδομένου ότι σε πάρα πολλές περιπτώσεις η αρχαιολογική σκαπάνη, ιδίως στη χώρα μας, φέρνει στο φως ολόκληρα αντικείμενα κι όχι μικρά θραύσματα. Η διασφάλιση της ακεραιότητας των αντικειμένων, πέρα από την προφανή αξία που έχει στις περιπτώσεις πολύτιμων υλικών, εξασφαλίζει ταυτόχρονα τη δυνατότητα επανάληψης της ανάλυσης εφ' όσον κάτι τέτοιο κριθεί απαραίτητο.

Στα πλεονεκτήματα της τεχνικής συμπεριλαμβάνονται ακόμα η σημαντική οικονομία χρόνου που επιτυγχάνεται χάρη στην ταυτόχρονη ανάλυση πολλών στοιχείων, αλλά και η ελαχιστοποίηση της πιθανότητας εργαστηριακής μόλυνσης του δείγματος, δεδομένου ότι το υπό ανάλυση υλικό δεν υφίσταται κανενός είδους προετοιμασία. Επιπλέον, το γεγονός ότι η πληροφορία της ανάλυσης προέρχεται από το σύνολο του υλικού του δείγματος και όχι μόνο από τα επιφανειακά του στρώματα παρέχει τη μοναδική δυνατότητα εξέτασης του αντικειμένου σε βάθος, πράγμα που οι περισσότερες από τις υπόλοιπες μη-καταστροφικές αναλυτικές τεχνικές δε μπορούν να πετύχουν ενώ παράλληλα επιτρέπει και την ανάλυση ανομοιογενών υλικών.

Ένα αντιπροσωπευτικό παράδειγμα εφαρμογής της τεχνικής, που αφορά στην ανάλυση ενός κεραμικού αγγείου, αντίγραφου ελληνικού αμφορέα, θα περιγραφεί εκτενώς στη συνέχεια του παρόντος κεφαλαίου. Σκοπός της παρούσας εργασίας ήταν η επίδειξη των δυνατοτήτων της ANE-ΔΜΟ στη μελέτη αντικειμένων πολιτιστικής κληρονομιάς, τα οποία απαιτείται να αναλυθούν ακέραια χωρίς να καταστραφούν.

7.2 Ανάλυση κεραμικού αγγείου

Το αντικείμενο που επιλέχθηκε να αναλυθεί ήταν ένα χειροποίητο κεραμικό αγγείο το οποίο αναπαριστούσε αρχαιοελληνικό αμφορέα (Σχήμα 7.1). Το αγγείο, μάζας 376 gr και ύψους 15.6 cm, είχε αγοραστεί από εμπορικό κατάστημα και αποτελεί αντίγραφο κεραμικού αγγείου που βρίσκεται σε ελληνικό μουσείο. Για τη διακόσμηση της εξωτερικής του επιφάνειας είχαν χρησιμοποιηθεί ακρυλικά χρώματα. Η μέγιστη εξωτερική διάμετρος και το πάχος των τοιχωμάτων του ήταν 11.5 cm και 0.43 cm, αντίστοιχα.



Σχήμα 7.1. Το κεραμικό αγγείο που αναλύθηκε

7.2.1 Πειραματική διαδικασία

Οι πειραματικές διαδικασίες, τόσο η ακτινοβόληση του δείγματος όσο και η μέτρηση της εκπεμπόμενης από αυτό ακτινοβολίας-γ, πραγματοποιήθηκαν στις εγκαταστάσεις του ερευνητικού πυρηνικού αντιδραστήρα του Reactor Institute Delft (RID) στην Ολλανδία, οι οποίες έχουν περιγραφεί αναλυτικά στο 3^ο Κεφάλαιο.

7.2.1.1 Ακτινοβόληση δείγματος

Η ακτινοβόληση του αγγείου πραγματοποιήθηκε στη διάταξη ακτινοβόλησης μεγάλων δειγμάτων (Big Sample Neutron Irradiation Facility-BISNIS) που είναι εγκατεστημένη στη θερμική στήλη του Ολλανδικού αντιδραστήρα Hoger Onderwijs Reactor (HOR) του Ινστιτούτου RID. Η ροή των θερμικών νετρονίων στη θέση ακτινοβόλησης του BISNIS ήταν ίση με $5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Το αγγείο, αφού τοποθετήθηκε μέσα σε πλέγμα πολυαιθυλενίου προκειμένου να αποφευχθεί η μετακίνησή του, εισήχθη στον αγωγό ακτινοβόλησης όπου ακτινοβολήθηκε για 12 h (Σχήμα 7.2). Για τη μέτρηση της ροής κατά τη διάρκεια της ακτινοβόλησης χρησιμοποιήθηκαν 18 ελάσματα Ψευδαργύρου (zinc) τοποθετημένα σε διάφορες θέσεις πάνω στην επιφάνεια του αγγείου. Μετά το πέρας της ακτινοβόλησης τα ελάσματα μετρήθηκαν για 30 min σε κατάλληλη ανιχνευτική διάταξη, που περιλάμβανε βαθμονομημένο ανιχνευτή υπερκαθαρού

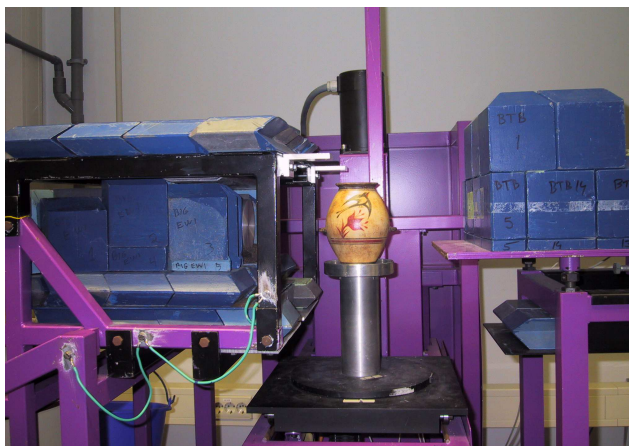
Γερμανίου (HPGe) τύπου φρεατίου (well-type), ενώ τα αποτελέσματα των μετρήσεων εκφράστηκαν σε όρους ροής θερμικών νετρονίων.



Σχήμα 7.2. Το κεραμικό αγγείο τοποθετημένο στο πλέγμα πολυαιθυλενίου

7.2.1.2 Ανίχνευση ακτινοβολίας δείγματος

Για τις μετρήσεις της εκπεμπόμενης από το αγγείο ακτινοβολίας- γ χρησιμοποιήθηκε η ανιχνευτική διάταξη για μεγάλα δείγματα του RID, η οποία βασίζεται σε ανιχνευτή υπερκαθαρού Γερμανίου (HPGe), σχετικής απόδοσης 96 %, διακριτικής ικανότητας 1.82 keV για την φωτοκορυφή 1333 keV του ^{60}Co και λόγου φωτοκορυφής προς Compton (peak to Compton ratio) 97:1. Το αγγείο μετρήθηκε 5 ημέρες μετά το πέρας της ακτινοβόλησης για 3 h, σε απόσταση 20 cm από τον ανιχνευτή (απόσταση του άξονα του αγγείου από την εξωτερική επιφάνεια του ανιχνευτή) (Σχήμα 7.3). Στη διάρκεια της μέτρησης, το αγγείο περιστρεφόταν γύρω από τον κατακόρυφο άξονά του, ώστε να ελαχιστοποιηθεί η αξονική ανομοιομορφία στην κατανομή της ενεργότητας, ενώ τα φάσματα που καταγράφηκαν διορθώθηκαν για την ακτινοβολία υποβάθρου. Ένα ενδεικτικό φάσμα από τη μέτρηση του κεραμικού αγγείου παρατίθεται στο Παράρτημα E (Σχήμα E.2). Στον Πίνακα 7.1 φαίνονται τα ισότοπα που χρησιμοποιήθηκαν στην ανάλυση των φασμάτων, οι αντίστοιχοι χρόνοι ημιζωής και οι ενέργειες των φωτοκορυφών τους καθώς και το % ποσοστό των εκπεμπόμενων ακτίνων- γ ανά διάσπαση (γ -ray abundance / yield) [Reus & Westmeier (1983)].



Σχήμα 7.3. Το κεραμικό αγγείο κατά τη μέτρησή του στην ανιχνευτική διάταξη

Ισότοπο	Χρόνος ημιζωής	Ενέργεια (keV)	Yield (%)
⁷⁶ As	26.32 h	657.0	6.1
⁴⁷ Ca	4.54 d	1297.1	74.9
¹⁴¹ Ce	32.5 d	145.4	48.4
⁶⁰ Co	5.27 y	1332.5	100.0
⁵¹ Cr	27.7 d	320.0	9.8
¹³⁴ Cs	2.06 y	795.8	85.4
¹⁵² Eu	13.33 y	1408.0	20.8
⁵⁹ Fe	44.5 d	1099.0	56.5
¹⁴⁰ La	40.28 h	1596.1	95.4
⁸⁶ Rb	18.66 d	1076.6	8.8
¹²² Sb	2.7 d	564.0	70.8
⁴⁶ Sc	83.83 d	889.3	100.0
¹⁵³ Sm	46.7 h	103.2	28.3
¹⁸⁷ W	23.9 h	479.5	25.3
¹⁶⁹ Yb	32.02 d	198.0	36.0

Πίνακας 7.1. Ισότοπα, χρόνοι ημιζωής, ενέργειες φωτοκορυφών που αναλύθηκαν και % ποσοστό εκπεμπόμενων ακτίνων-γ ανά διάσπαση (yield)

7.2.1.3 Στοιχειακή ανάλυση των υλικών του δείγματος (μέσω ANE)

Μετά την ολοκλήρωση της ανάλυσης του μεγάλου δείγματος με την τεχνική της ANE-ΔΜΟ, 5 μικρά δείγματα από το υλικό του αγγείου αποσπάστηκαν από διάφορα σημεία του και αναλύθηκαν με την «κλασική» τεχνική ανάλυσης μικρών δειγμάτων (ANE). Τα μικρά δείγματα, μέσης μάζας 240 mg, τοποθετήθηκαν σε βολίδες πολυαιθυλενίου και ακτινοβολήθηκαν σε πεδίο νετρονίων με θερμική ροή της τάξης του $5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. Ως μετρητές ροής χρησιμοποιήθηκαν και σε αυτή την περίπτωση ελάσματα Ψευδαργύρου, τα οποία τοποθετήθηκαν στις βολίδες μαζί με τα μικρά δείγματα. Η εκπεμπόμενη από τα μικρά δείγματα ακτινοβολία-γ μετρήθηκε 6 και 19 ημέρες μετά το πέρας της ακτινοβολήσης. Η ποσοτικοποίηση των αποτελεσμάτων έγινε με βάση το πρωτόκολλο ανάλυσης δειγμάτων με νετρονική ενεργοποίηση του εργαστηρίου RID [Blaauw (1996)] με χρήση του Ψευδαργύρου ως στοιχείο αναφοράς.

7.2.1.4 Προσομοιώσεις

Για την ποσοτικοποίηση των αποτελεσμάτων της ανάλυσης χρειάζεται να εφαρμοστούν στα πειραματικά δεδομένα διορθώσεις που αφορούν –όπως αναλυτικά έχει περιγραφεί σε προηγούμενα κεφάλαια- στην αυτο-θωράκιση των νετρονίων και στην αυτο-απορρόφηση των φωτονίων στον όγκο του μεγάλου δείγματος καθώς και το γεωμετρικό παράγοντα.

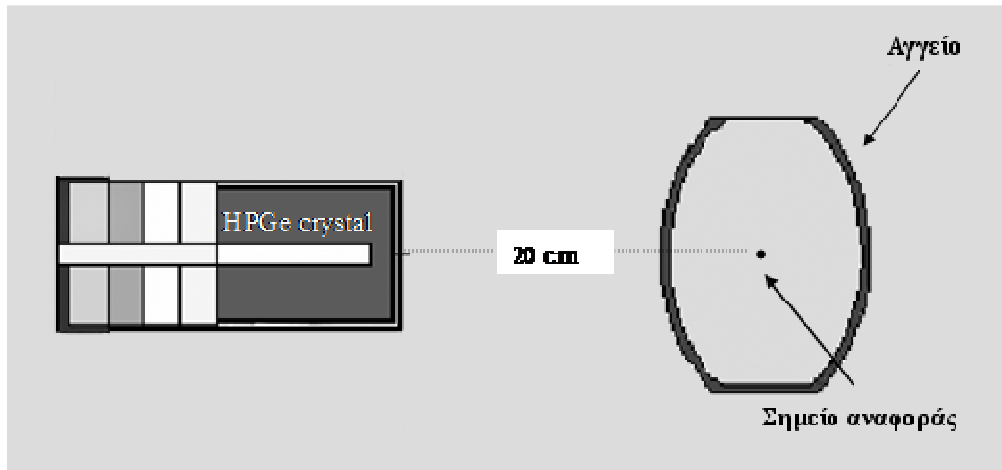
Για την προσομοίωση των διατάξεων ακτινοβολήσης και φασματοσκοπίας-γ και τον προσδιορισμό των αντίστοιχων συντελεστών διόρθωσης χρησιμοποιήθηκε ο Monte Carlo κώδικας MCNP5 [X-5 Monte Carlo Team (2003)] και οι βιβλιοθήκες ενεργών διατομών Evaluated Nuclear Data File (ENDF/B-VI) [Rose (1991)]. Τόσο η διάταξη ακτινοβολήσης (θερμική στήλη, αγωγός ακτινοβολήσης κλπ.), όσο και η διάταξη ανίχνευσης της ακτινοβολίας-γ (ανιχνευτής Γερμανίου, θωράκιση κλπ.) περιγράφηκαν λεπτομερώς στα αντίστοιχα μοντέλα. Επιπλέον, επιδιώχθηκε η όσο το δυνατόν πληρέστερη και πιο αντιπροσωπευτική περιγραφή του αγγείου, δεδομένου ότι η τιμή των συντελεστών διόρθωσης εξαρτάται από τη γεωμετρία και το υλικό του υπό μελέτη δείγματος.

A. Νετρόνια

Στις προσομοιώσεις της διαδικασίας ακτινοβόλησης ως πηγή θεωρήθηκε δέσμη θερμικών νετρονίων προσπίπτουσα στην επιφάνεια της θερμικής στήλης. Δεδομένης της μεγάλης τιμής του λόγου θερμικής προς επιθερμική ροή νετρονίων (~ 3300) στη θέση ακτινοβόλησης, η επιβράδυνση-θερμοποίηση των νετρονίων μέσα στο κεραμικό υλικό θεωρήθηκε αμελητέα και δε λήφθηκε υπ' όψιν. Οι τιμές της θερμικής ροής υπολογίστηκαν χρησιμοποιώντας τους εικονικούς ανιχνευτές F4 (track length estimates) του κώδικα και εκφράστηκαν σε μονάδες cm^{-2} ανά νετρόνιο της πηγής. Ο συντελεστής διόρθωσης f_n , υπολογίστηκε ως ο λόγος της μέσης ροής θερμικών νετρονίων στον όγκο του αγγείου προς την αντίστοιχη μέση ροή στην εξωτερική του επιφάνεια. Εφαρμόζοντας τον υπολογισμένο μέσω MCNP συντελεστή διόρθωσης στην πειραματικά μετρημένη ροή θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια του αγγείου, υπολογίστηκε στη συνέχεια η τιμή της ροής θερμικών νετρονίων μέσα στον όγκο του (Εξίσωση 5.1).

B. Φωτόνια

Ο υπολογισμός της απόδοσης φωτοκορυφής του ανιχνευτή Γερμανίου για το μεγάλο δείγμα έγινε με χρήση της σχετικής μεθόδου «μεταφοράς απόδοσης» (efficiency transfer method), η οποία στηρίζεται -όπως περιγράφηκε αναλυτικά στο 2ο Κεφάλαιο- στον προσδιορισμό του λόγου της πραγματικής απόδοσης για την υπό μελέτη γεωμετρία προς την απόδοση του ανιχνευτή για μια πηγή αναφοράς και για δεδομένη ενέργεια φωτονίων. Στη συγκεκριμένη μελέτη ως πηγή αναφοράς θεωρήθηκε σημειακή πηγή σε απόσταση 20 cm από την πρόσθια επιφάνεια του ανιχνευτή, σε θέση δηλαδή που αντιστοιχεί στο γεωμετρικό κέντρο του αγγείου. Ο κώδικας MCNP χρησιμοποιήθηκε για τον υπολογισμό της απόδοσης φωτοκορυφής για τη σημειακή πηγή αναφοράς καθώς και για την πραγματική γεωμετρία όγκου (για το αγγείο) προκειμένου να εξαχθεί η τιμή του συντελεστή «μεταφοράς» για την περίπτωση που μελετάται. Στο Σχήμα 7.4 απεικονίζεται το αντίστοιχο μοντέλο MCNP που περιλαμβάνει τον ανιχνευτή και το αγγείο, στο οποίο σημειώνεται επίσης και η θέση της σημειακής πηγής αναφοράς.



Σχήμα 7.4. Δισδιάστατη αναπαράσταση του μοντέλου ανιχνευτή-αγγείου

Για την εκτίμηση της εναποτιθέμενης ενέργειας στον ενεργό όγκο του κρυστάλλου στο καθορισμένο ενεργειακό κανάλι και τον υπολογισμό κατ'επέκταση της απόδοσης φωτοκορυφής του ανιχνευτή χρησιμοποιήθηκαν οι εικονικοί ανιχνευτές F8 (pulse height tally) του κώδικα. Επισημαίνεται ότι ο ενεργός όγκος του κρυστάλλου Γερμανίου (active crystal volume) προσαρμόστηκε ημι-εμπειρικά μέσω σύγκρισης των προσομοιώσεων MCNP με πειραματικές μετρήσεις που είχαν διεξαχθεί με σημειακές πηγές αναφοράς. Η διαδικασία αυτή, η οποία ήταν απαραίτητη προκειμένου να εκτιμηθεί το πάχος του «ανενεργού στρώματος» (crystal dead-layer) και να ληφθούν υπ' όψιν τυχόν αποκλίσεις μεταξύ της πραγματικής τιμής του ενεργού όγκου του κρυστάλλου και της ονομαστικής τιμής που παρέχει ο κατασκευαστής, έχει εφαρμοστεί και από άλλους πειραματιστές που ανέπτυξαν μοντέλα ανιχνευτών Γερμανίου [Ródenas et al. (2003)].

7.2.1.5 Ραδιολογικός έλεγχος δείγματος

Μια σημαντική παράμετρος που σχετίζεται με την εφαρμογή της τεχνικής της ANE-ΔΜΟ στα πεδία της πολιτιστικής κληρονομιάς, των μελετών προέλευσης ή αυθεντικότητας κειμηλίων αλλά και σε πολλούς άλλους τομείς, είναι το χρονικό διάστημα (“cooling time”) που χρειάζεται να παρέλθει έως ότου είναι δυνατός ο αποχαρακτηρισμός του δείγματος από την κατηγοριοποίησή του ως ραδιενεργό υλικό και

επιτρεπτή επομένως η εξαίρεση του από τους ρυθμιστικούς κανονισμούς ακτινοπροστασίας [ΦΕΚ 216B (2001)]. Μετά την παρέλευση της χρονικής αυτής διάρκειας τα επίπεδα ενεργότητάς του δείγματος έχουν μειωθεί σε πολύ χαμηλά επίπεδα, κατώτερα από τα όρια ενεργότητας που σύμφωνα με την νομοθεσία το χαρακτηρίζουν σαν ραδιενεργό αντικείμενο. Αυτό πρακτικά σημαίνει ότι με τη συμπλήρωση της χρονικής αυτής περιόδου το δείγμα μπορεί να επιστραφεί στο χώρο προέλευσής του και στον κάτοχό του, ενδεχομένως σε κάποιο μουσείο όπου εκτίθεται στο ευρύ κοινό, ή ακόμα στο εργαστήριο και στην επιστημονική ομάδα προκειμένου να συνεχιστεί η μελέτη του, χωρίς να χρειάζεται να ληφθεί κανένα μέτρο προστασίας. Η επαγόμενη στο δείγμα ενεργότητα εξαρτάται από την τιμή της νετρονικής ροής, τη στοιχειακή σύσταση του ακτινοβολούμενου υλικού, τις ενεργές διατομές των πυρηνικών αντιδράσεων καθώς και το χρόνο ακτινοβόλησης. Μετά το πέρας της ακτινοβόλησης η ολική ενεργότητα του δείγματος μειώνεται με το χρόνο, με βάση το ρυθμό διάσπασης κάθε ραδιονουκλιδίου.

Σύμφωνα με τους αντίστοιχους κανονισμούς, το δείγμα μπορεί να εξαιρεθεί από το ρυθμιστικό έλεγχο εφόσον η ολική του ενεργότητα αλλά και η ειδική ενεργότητα (πυκνότητα ενεργότητας ανά μονάδα μάζας) έχουν τιμές κατώτερες των καθορισμένων ορίων «εξαίρεσης». Ο Διεθνής Οργανισμός Ατομικής Ενέργειας – ΔΟΑΕ έχει δημοσιεύσει [IAEA (1996)] τα όρια «εξαίρεσης» τόσο για την ολική ενεργότητα όσο και για την ειδική ενεργότητα ανά ραδιονουκλίδιο. Στην περίπτωση μείγματος ραδιονουκλιδίων, το δείγμα μπορεί να εξαιρεθεί από τους ρυθμιστικούς κανονισμούς ακτινοπροστασίας όταν ισχύει το παρακάτω κριτήριο:

$$A = \sum_i (A_i/A_{r,i}) < 1 \quad (\text{Σχέση 7.1})$$

όπου

A_i είναι η πυκνότητα ενεργότητας του i ραδιονουκλιδίου του δείγματος και,

$A_{r,i}$ είναι το όριο εξαίρεσης της πυκνότητας ενεργότητας του i ραδιονουκλιδίου του δείγματος, όπως αυτό έχει καθοριστεί από το ΔΟΑΕ [IAEA (1996)].

7.2.2 Αποτελέσματα

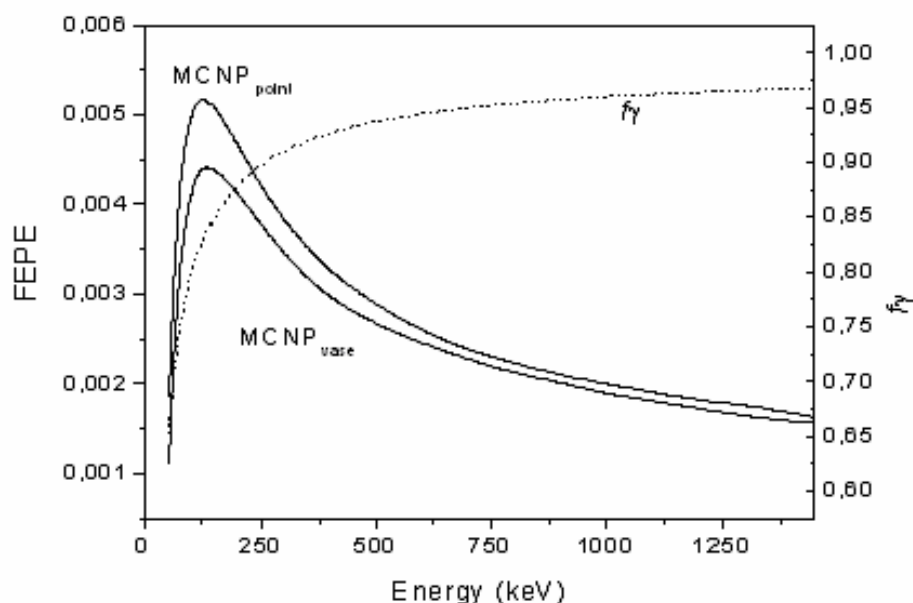
7.2.2.1 Συντελεστής διόρθωσης f_n

Η εισαγωγή του μεγάλου δείγματος στη θερμική στήλη έχει ως αποτέλεσμα τη διαταραχή του πεδίου ροής των νετρονίων στη συγκεκριμένη περιοχή. Στην περίπτωση του αγγείου, η πειραματικά μετρημένη (με χρήση 18 ελασμάτων Ψευδαργύρου) μέση ροή θερμικών νετρονίων στην επιφάνεια του δείγματος ήταν ίση με $(4.18 \pm 0.23) \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, ενώ η τιμή του συντελεστή αυτο-θωράκισης νετρονίων, f_n , όπως υπολογίστηκε μέσω προσομοιώσεων με τον κώδικα MCNP, ήταν 0.981 ± 0.015 . Η εφαρμογή του συντελεστή f_n στην πειραματική μέση θερμική ροή στην επιφάνεια του αγγείου οδήγησε στον προσδιορισμό της μέσης θερμικής ροής στον όγκο του αγγείου, η τιμή της οποίας ήταν $(4.10 \pm 0.24) \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$.

7.2.2.2 Συντελεστής διόρθωσης f_γ

Στο Σχήμα 7.5 απεικονίζονται οι υπολογισμένες μέσω MCNP αποδόσεις φωτοκορυφής για την υποθετική περίπτωση σημειακής πηγής και για την πραγματική γεωμετρία του αγγείου, για εύρος ενεργειών από 50 έως 1400 keV, καθώς και ο αντίστοιχος συντελεστής διόρθωσης f_γ (συντελεστής «μεταφοράς» της γεωμετρίας σημειακής πηγής σε γεωμετρία πηγής όγκου).

Από το Σχήμα 7.5, γίνεται φανερό ότι η τιμή του συντελεστή f_γ αυξάνεται με την ενέργεια. Για παράδειγμα, για ενέργεια φωτονίων 320 keV (κορυφή ^{51}Cr), 604 keV (κορυφή ^{134}Cs), 815 keV (κορυφή ^{140}La), 1332 keV (κορυφή ^{60}Co), ο συντελεστής f_γ ισούται με 0.915 ± 0.003 , 0.943 ± 0.004 , 0.955 ± 0.005 , 0.965 ± 0.005 , αντίστοιχα. Το αποτέλεσμα αυτό οφείλεται στο ότι η απορρόφηση φωτονίων μέσα στο κεραμικό υλικό του αγγείου μειώνεται όσο η ενέργεια των φωτονίων αυξάνεται. Επισημαίνεται ότι το σφάλμα στην τιμή του συντελεστή f_γ είναι το στατιστικό σφάλμα των υπολογισμών.



Σχήμα 7.5. Υπολογισμένες μέσω MCNP αποδόσεις φωτοκορυφής για σημειακή πηγή και αγγείο και ο αντίστοιχος συντελεστής διόρθωσης f_{γ} συναρτήσει της ενέργειας

Συγκρίνοντας τις τιμές των συντελεστών διόρθωσης, συμπεραίνεται ότι, για το υπό μελέτη αγγείο, η κύρια συνιστώσα των διορθώσεων αφορά στα φωτόνια, δηλαδή στο φαινόμενο της αυτο-απορρόφησής τους μέσα στο υλικό του δείγματος. Το αποτέλεσμα αυτό οφείλεται στον χαμηλό συντελεστή εξασθένησης θερμικών νετρονίων στο κεραμικό υλικό. Πιο συγκεκριμένα, η μέση ελεύθερη διαδρομή (mean free path) των θερμικών νετρονίων μέσα στο κεραμικό υλικό υπολογίστηκε ίση με 4 cm, μεγαλύτερη δηλαδή κατά μία τάξη μεγέθους από το πάχος των τοιχωμάτων του αγγείου (0.43 cm). Υπογραμμίζεται, παράλληλα, ότι οι συντελεστές διόρθωσης για την αυτο-θωράκιση των νετρονίων, την αυτο-απορρόφηση των φωτονίων και την ανομοιογενή κατανομή της ενεργότητας στον όγκο του δείγματος έχουν υπολογιστεί από τους Stamatelatos & Tzika (2007) για κυλινδρικούς κεραμικούς δακτυλίους με πάχος τοιχωμάτων που φτάνει έως και το 1.5 cm.

7.2.2.3 Στοιχειακή ανάλυση

Στον Πίνακα 7.2 παρουσιάζεται η σύγκριση των στοιχειακών συγκεντρώσεων που προσδιορίστηκαν με χρήση της ANE-ΔΜΟ και της «κλασικής» τεχνικής (ANE), που χρησιμοποιήθηκε ως τεχνική αναφοράς, ο λόγος τους καθώς και τα αντίστοιχα όρια ανίχνευσης για τις δύο τεχνικές. Ο υπολογισμός των Ελαχίστων Ορίων Ανίχνευσης (Minimum Detection Limits – MDL) βασίστηκε στη μαθηματική περιγραφή της ανίχνευσης μιας φωτοκορυφής που κείται πάνω σε υπόστρωμα [Currie (1968)], σύμφωνα με τη σχέση:

$$MDL = 3.3 \sigma_B \quad (\text{Σχέση 7.2})$$

όπου

σ_B είναι η τυπική απόκλιση του υποβάθρου.

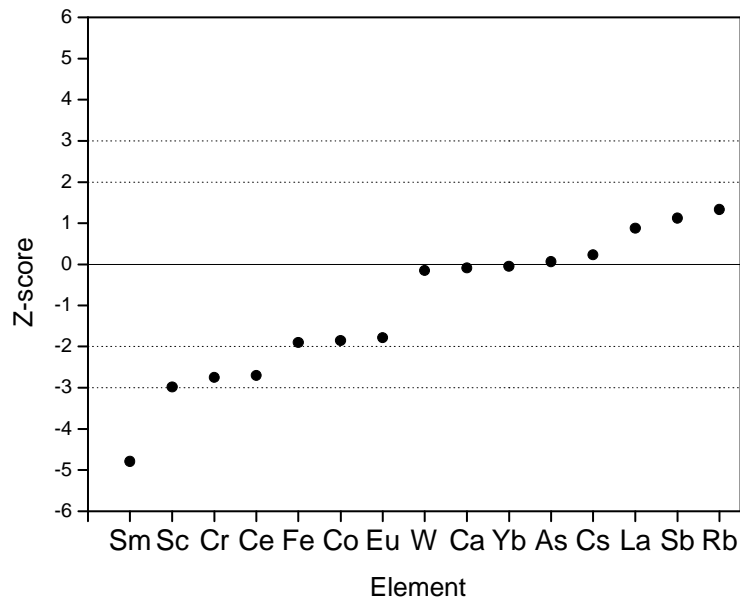
Αναλυτικότερη περιγραφή της διαδικασίας υπολογισμού των ελαχίστων ορίων ανίχνευσης μπορεί να αναζητηθεί στο Παράρτημα Α.3.

Στοιχείο	Συγκέντρωση ANE-ΔΜΟ (mg/kg)	Συγκέντρωση ANE (mg/kg)	Λόγος συγκεντρώσεων ANE-ΔΜΟ/ANE	Όριο ανίχνευσης (ANE-ΔΜΟ) (mg/kg)	Όριο ανίχνευσης (ANE) (mg/kg)
Eu	0.80 ± 0.19	1.14 ± 0.03	0.70 ± 0.17	0.75	0.06
Sm	3.61 ± 0.23	4.79 ± 0.10	0.75 ± 0.05	0.07	0.03
Ce	40.00 ± 4.57	52.80 ± 1.27	0.76 ± 0.09	11.99	0.82
Sc	17.48 ± 0.95	20.40 ± 0.20	0.86 ± 0.05	0.16	0.02
Cr	397.84 ± 22.76	462.00 ± 5.27	0.86 ± 0.05	18.08	2.88
Fe	49833.75 ± 3361.34	56300.00 ± 585.52	0.89 ± 0.06	1718.69	88.20
Co	32.05 ± 1.98	35.80 ± 0.42	0.90 ± 0.06	2.49	0.24
W	1.68 ± 0.45	1.76 ± 0.22	0.96 ± 0.28	1.05	0.99
Ca	70039.44 ± 10112.11	71000.00 ± 2272.00	0.99 ± 0.15	13266.50	1880.00
Yb	2.26 ± 0.50	2.29 ± 0.06	0.99 ± 0.22	1.79	0.15
As	8.44 ± 1.40	8.36 ± 0.28	1.01 ± 0.17	5.73	0.54
Cs	7.05 ± 0.91	6.84 ± 0.18	1.03 ± 0.14	2.83	0.39
La	28.78 ± 1.55	27.40 ± 0.27	1.05 ± 0.06	0.12	0.09
Sb	0.64 ± 0.08	0.53 ± 0.04	1.20 ± 0.18	0.20	0.14
Rb	139.88 ± 22.40	110.00 ± 2.20	1.27 ± 0.21	52.73	4.40

Πίνακας 7.2. Στοιχειακές συγκεντρώσεις, λόγος συγκεντρώσεων και όρια ανίχνευσης για τις δύο τεχνικές που χρησιμοποιήθηκαν (ANE-ΔΜΟ και ANE)

Όπως φαίνεται στον Πίνακα 7.2, οι λόγοι των δύο συγκεντρώσεων κυμαίνονται, για όλα τα στοιχεία που μελετήθηκαν, από 0.70 έως 1.27. Για τα στοιχεία Eu, W και Yb, ωστόσο, οι τιμές των υπολογισμένων μέσω ANE-ΔΜΟ στοιχειακών συγκεντρώσεων είναι ελαφρώς μεγαλύτερες των αντίστοιχων ορίων ανίχνευσης για τα συγκεκριμένα στοιχεία. Επίσης, τα όρια ανίχνευσης που αφορούν στην τεχνική ANE-ΔΜΟ είναι υψηλότερα από τα αντίστοιχα της «κλασικής» τεχνικής (ANE), γεγονός που οφείλεται στην χαμηλότερη τιμή νετρονικής ροής που χρησιμοποιείται στην ανάλυση μεγάλων δειγμάτων. Διαπιστώνεται ακόμα ότι με την τεχνική της ANE-ΔΜΟ ανιχνεύθηκαν στοιχειακές συγκεντρώσεις 6 τάξεων μεγέθους.

Τα αποτελέσματα που καταγράφονται στον Πίνακα 7.2 υποδεικνύουν ικανοποιητική συμφωνία μεταξύ των συγκεντρώσεων που υπολογίστηκαν με χρήση των δύο τεχνικών. Για την περαιτέρω σύγκριση των αποτελεσμάτων, υπολογίστηκε επίσης το Z-score για κάθε στοιχείο, το οποίο ισούται με τη διαφορά των τιμών ANE-ΔΜΟ και αναφοράς (ANE), διαιρεμένη με τις συνδυασμένες αβεβαιότητες των δύο τιμών (Παράρτημα Α). Στη συνέχεια, η τιμή του Z-score εκτιμάται, με βάση καθορισμένα κριτήρια, ως δείκτης που εκφράζει ικανοποιητική συμφωνία για $|Z| \leq 2$, αμφίβολη συμφωνία για $2 < |Z| \leq 3$ και μη ικανοποιητική συμφωνία για $|Z| > 3$. Οι τιμές του Z-score για τα στοιχεία που μελετήθηκαν απεικονίζονται στο Σχήμα 7.6.

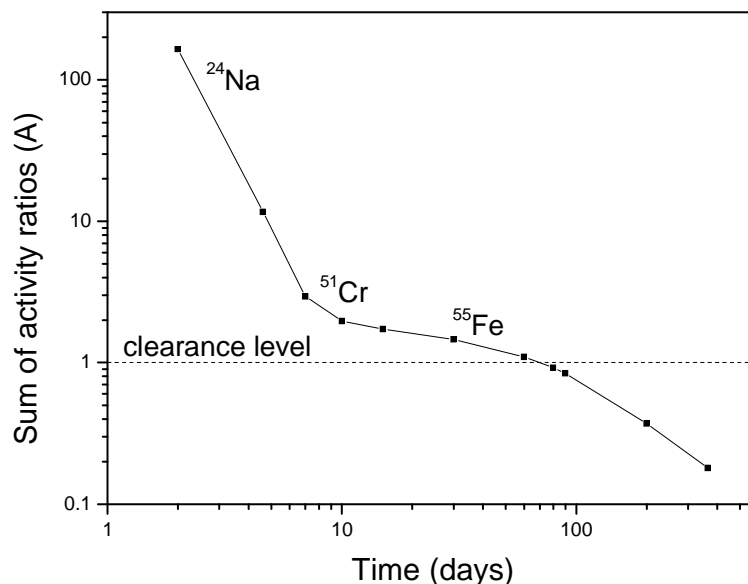


Σχήμα 7.6. Τιμές Z-score για τα στοιχεία που μελετήθηκαν

Όπως φαίνεται, για τα περισσότερα στοιχεία (Eu, Fe, Co, W, Ca, Yb, As, Cs, La, Sb, Rb) ισχύει $|z| \leq 2$, για 3 στοιχεία (Ce, Cr, Sc) ισχύει $2 < |z| \leq 3$ ενώ για το στοιχείο Sm είναι $|z| > 3$. Οι υψηλές τιμές του Z-score για το Sm και το Ce -οι οποίες εκφράζουν ουσιαστικά τη μεγάλη απόκλιση μεταξύ των συγκεντρώσεων που υπολογίστηκαν με τις δύο τεχνικές σε συνδυασμό με τις μικρές τιμές σφαλμάτων- αποδίδονται στην απόκλιση μεταξύ της πειραματικά μετρούμενης και της υπολογιζόμενης μέσω προσομοίωσης τιμής της απόδοσης ανίχνευσης, που διαπιστώνεται για ενέργειες φωτονίων μικρότερες των 150 keV, ενεργειακή περιοχή στην οποία βρίσκονται και οι δύο φωτοκορυφές Sm και Ce (103.2 keV και 145.4 keV, αντίστοιχα).

7.2.2.4 Ραδιολογικός έλεγχος δείγματος

Στο Σχήμα 7.7 φαίνεται η τιμή της παραμέτρου A (Σχέση 7.1) για τα ραδιονουκλίδια του δείγματος ως συνάρτηση του χρόνου μετά το πέρας της ακτινοβόλησης (cooling time), όπως αυτή υπολογίστηκε με χρήση του προγράμματος NAAPRO (Neutron Analysis Prognosis and Optimization) [Basenko et al. (2004) (2005)].



Σχήμα 7.7. Άθροισμα των λόγων πυκνότητας ενεργότητας (A) συναρτήσει του χρόνου μετά το πέρας της ακτινοβόλησης (cooling time)

Από το Σχήμα 7.7, διαπιστώνεται ότι 80 ημέρες μετά την ολοκλήρωση της διαδικασίας ακτινοβόλησης η τιμή της παραμέτρου A είναι μικρότερη της μονάδας (~ 0.92) και κατ'επέκταση το αγγείο μπορεί, σύμφωνα με τους κανονισμούς, να εξαιρεθεί της επίβλεψης και του ρυθμιστικού ελέγχου. Τη δεδομένη χρονική στιγμή (80 ημέρες), κυρίαρχα νουκλίδια από πλευράς συνεισφοράς στην ολική ενεργότητα του δείγματος, αναδείχθηκαν τα εξής: ^{55}Fe (με χρόνο ημιζωής 2.74 y), ^{46}Sc (με χρόνο ημιζωής 83.8 d), ^{51}Cr (με χρόνο ημιζωής 27.7 d), ^{59}Fe (με χρόνο ημιζωής 44.5 d) και ^{60}Co (με χρόνο ημιζωής 5.27 y) έχοντας συνεισφορά στην ολική ενεργότητα ίση με 29 %, 18 %, 7 %, 6 % και 3 %, αντίστοιχα. Επιπλέον, ο ρυθμός δόσης ακτινοβολίας- γ σε επαφή εκτιμήθηκε ίσος με 0.18 $\mu\text{Sv/h}$ ενώ η ολική ενεργότητα του αγγείου ήταν $1.23\text{E}+4$ Bq.

Ένα έτος (365 ημέρες) μετά το πέρας της ακτινοβόλησης η τιμή της παραμέτρου A είναι 0.18. Η συνεισφορά των κυρίαρχων νουκλιδίων ^{55}Fe , ^{60}Co , ^{46}Sc , ^{152}Eu και ^{134}Cs στην ολική ενεργότητα εκτιμήθηκε για το διάστημα αυτό ίση με 58 %, 6 %, 4 %, 2 % και 1 %, αντίστοιχα. Επιπλέον, τη συγκεκριμένη χρονική στιγμή η ολική ενεργότητα του αγγείου ήταν $5.11\text{E}+3$ Bq ενώ ο ρυθμός δόσης σε επαφή ήταν 0.08 $\mu\text{Sv/h}$. Επισημαίνεται, ωστόσο, ότι ο ^{55}Fe που είναι το κυρίαρχο νουκλίδιο στο χρονικό διάστημα που εξετάζεται, δεν είναι εκπομπός ακτίνων- γ και επομένως δεν συμβάλλει στη διαμόρφωση του ρυθμού δόσης λόγω ακτινοβολίας- γ .

7.2.3 Συμπεράσματα-συζήτηση

Στο παρόν κεφάλαιο παρουσιάστηκε η εφαρμογή της τεχνικής της ANE-ΔΜΟ στον τομέα της πολιτιστικής κληρονομιάς. Σκοπός της εργασίας ήταν η επίδειξη των δυνατοτήτων της ANE-ΔΜΟ στη μελέτη ολόκληρων αντικειμένων, τα οποία απαιτείται να αναλυθούν ακέραια χωρίς να καταστραφούν. Η σημαντική δυσκολία στην εφαρμογή της τεχνικής στη μελέτη τέτοιων δειγμάτων είναι τα ακανόνιστα γεωμετρικά σχήματα των προς ανάλυση αντικειμένων, σε σύγκριση με τα κανονικά γεωμετρικά σχήματα (π.χ. κυλινδρικά δείγματα).

Για το σκοπό αυτό, αναλύθηκε ένα κεραμικό αγγείο που αναπαριστούσε αρχαιοελληνικό αμφορέα. Τα αποτελέσματα της ανάλυσης συγκρίθηκαν με τις τιμές που προσδιορίστηκαν με χρήση της «κλασικής» τεχνικής (ANE), οι οποίες θεωρήθηκαν ως οι τιμές αναφοράς. Μεταξύ των αποτελεσμάτων διαπιστώθηκε ικανοποιητική συμφωνία

της τάξης του $\pm 30\%$, η οποία επιβεβαιώθηκε στις περισσότερες των περιπτώσεων και από τις τιμές του Z-score. Μοναδική εξαίρεση αποτέλεσε το Sm, με λόγο συγκεντρώσεων ίσο με 0.75 ± 0.05 και $|z| > 3$. Επιπρόσθετα, μελετήθηκε η επαγόμενη στο αγγείο ενεργότητα και η συμπεριφορά της συναρτήσεως του χρόνου. Όπως αποδείχθηκε, σε σχετικά μικρό χρονικό διάστημα (3 μηνών) μετά την ολοκλήρωση της ακτινοβολήσεως, η τιμή της ενεργότητας του αγγείου ήταν επαρκώς χαμηλή, ώστε να επιτρέπεται η εξαίρεσή του από το ρυθμιστικό έλεγχο και την επίβλεψή του ως ραδιενεργό υλικό. Σε ότι αφορά στα αρχαιολογικά αντικείμενα και τα κειμήλια πολιτιστικής κληρονομιάς, η παράμετρος αυτή είναι εξαιρετικά σημαντική καθώς σημαίνει πρακτικά πως πολύτιμα αντικείμενα μπορούν να αναλυθούν μη-καταστροφικά και σε σχετικά μικρό χρονικό διάστημα να επιστρέψουν στον ιδιοκτήτη τους (π.χ. έκθεση σε μουσείο).

Τα αποτελέσματα της παρούσας μελέτης επιβεβαίωσαν τις τεράστιες δυνατότητες που διαθέτει η ANE-ΔΜΟ στην ανάλυση ολόκληρων αντικειμένων και συνέβαλλαν στην κάλυψη της αναγκαιότητας για μια πιστοποιημένη πυρηνική τεχνική, η οποία θα μπορεί να χρησιμοποιηθεί για τη μη-καταστροφική, πολυστοιχειακή ανάλυση πολύτιμων αντικειμένων που επιβάλλεται να διατηρηθούν ακέραια και άφθαρτα. Επιπλέον, ιδίως σε ότι αφορά στα αρχαιολογικά ευρήματα, συγκριτικό πλεονέκτημα της τεχνικής αποτελεί και το γεγονός ότι τα αποτελέσματα της ανάλυσης δεν επηρεάζονται από τυχόν στοιχειακές μεταβολές ή αλλοιώσεις που έχουν επέλθει στην επιφάνεια του δείγματος με το πέρασμα του χρόνου, λόγω π.χ. εναπόθεσης ιζήματος, οξείδωσης κ.α., καθώς η πληροφορία προέρχεται από το συνολικό όγκο και όχι μόνο τα επιφανειακά στρώματά του [Schwedt et al. (2004)].

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 8^ο – ΓΕΝΙΚΗ ΣΥΖΗΤΗΣΗ

Η ανάλυση με νετρονική ενεργοποίηση είναι μια καθιερωμένη πυρηνική αναλυτική τεχνική η οποία λόγω του μη-καταστροφικού της χαρακτήρα, της ακρίβειας και επαναληψιμότητάς της θεωρείται ως η τεχνική αναφοράς μεταξύ των στοιχειακών αναλυτικών τεχνικών [Parry (1991), Parry (2003)]. Τα σημαντικά πλεονεκτήματα της «κλασικής» ανάλυσης μικρών δειγμάτων επεκτείνονται περαιτέρω με την ανάπτυξη της τεχνικής της ANE-ΔΜΟ, που είναι το αντικείμενο της παρούσας ΔΔ.

8.1 Πλεονεκτήματα της τεχνικής

Χάρη στη δυνατότητα ανάλυσης ολόκληρων αντικειμένων, η ANE-ΔΜΟ έχει αποκτήσει σημαντική θέση ανάμεσα στις διάφορες αναλυτικές τεχνικές, υπερτερώντας ίσως, έναντι αρκετών από αυτές, καθώς στην πλειοψηφία τους οι καθιερωμένες μη-καταστροφικές μέθοδοι –όπως για παράδειγμα η ανάλυση μέσω φθορισμού ακτίνων-Χ (X-Ray Fluorescence-XRF) ή η εκπομπή ακτίνων-Χ λόγω σύλληψης σωματιδίων (Particle Induced X-ray Emission-PIXE)- μπορούν να αναλύσουν μόνο επιφανειακά στρώματα του δείγματος. Οι τεχνικές αυτές παρέχουν περιορισμένη πληροφορία για τη σύσταση του υλικού στο εσωτερικό του αντικειμένου (σε βάθος). Επομένως, έχουν περιορισμένες δυνατότητες ανάλυσης, σε ορισμένες κατηγορίες δειγμάτων, καθώς αποκλείεται για παράδειγμα η ανάλυση ανομοιογενών υλικών, στα οποία προφανώς δεν επαρκεί η γνώση της σύστασης μόνο των επιφανειακών τμημάτων. Αντίθετα, η ANE-ΔΜΟ παρέχει στον πειραματιστή τη δυνατότητα να χειριστεί με επιτυχία μη-ομογενή υλικά, προσδιορίζοντας με μεγάλη ακρίβεια τη σύστασή τους.

Επιπρόσθετα, η ANE-ΔΜΟ έχει σημαντικό πλεονέκτημα καθώς δεν επηρεάζεται, όπως άλλες τεχνικές, από τυχόν στοιχειακές μεταβολές που προκαλούνται στην επιφάνεια του δείγματος, λόγω για παράδειγμα εναπόθεσης ιζήματος, οξείδωσης κ.α., αφού η πληροφορία της ανάλυσης προέρχεται από το συνολικό όγκο του αντικειμένου και όχι μόνο από τα επιφανειακά στρώματά του. Το γεγονός αυτό έχει τεράστια σημασία, ιδίως στην περίπτωση αρχαιολογικών ευρημάτων που παρέμειναν θαμμένα στο έδαφος

για πολλά χρόνια με αποτέλεσμα την διάβρωση και αλλοίωση των εξωτερικών στρωμάτων τους [Schwedt et al. (2004)].

Σε ότι αφορά εξάλλου στα μη-ομογενή υλικά, η εξάλειψη της απαίτησης για αντιπροσωπευτική δειγματοληψία συνεπάγεται αποφυγή όχι μόνο του τεμαχισμού ή της πλήρους καταστροφής του δείγματος αλλά και της μερικής φθοράς ή αλλοίωσής του. Επίσης, εφ'όσον τα αντικείμενα εξετάζονται ολόκληρα και δεν απαιτείται δειγματοληψία επιμέρους τμημάτων του υλικού, παρέχεται η δυνατότητα ανάλυσης πολύτιμων αντικειμένων από τα οποία δεν επιτρέπεται να αποσπαστούν μικρά ή μεγαλύτερα τμήματα για αναλυτικούς λόγους. Παράλληλα, η προετοιμασία-επεξεργασία που χρειάζεται να υποστεί το δείγμα πριν την ανάλυσή του είναι ελάχιστη –και φυσικά μη καταστροφική-, κάτι που σημαίνει και ελαχιστοποίηση της πιθανότητας εργαστηριακής «μόλυνσης» ή αλλοίωσής του. Επιπλέον, εφ'όσον το υπό μελέτη δείγμα δεν καταστρέφεται κατά τη μέτρηση, μπορεί να ξαναχρησιμοποιηθεί και σε περαιτέρω πειράματα, πλεονέκτημα που αποκτά ιδιαίτερη αξία σε περιπτώσεις που είτε ο αριθμός των διαθέσιμων για ανάλυση δειγμάτων είναι περιορισμένος είτε το προς ανάλυση δείγμα είναι μοναδικό.

Εκτός του μη-καταστροφικού και πολυστοιχειακού χαρακτήρα της, η τεχνική της ANE-ΔΜΟ παρουσιάζει ταυτόχρονα υψηλή ακρίβεια, αξιοπιστία και επαναληψιμότητα ενώ η ευαισθησία της, ανάλογα με το υλικό στο οποίο γίνεται η μέτρηση, μπορεί να φτάσει και την τάξη των parts per billion (ppb). Διαθέτει, επιπροσθέτως, μεγάλο εύρος γραμμικότητας, το οποίο φτάνει και τις 12 τάξεις μεγέθους για ορισμένα στοιχεία. Αυτό πρακτικά σημαίνει ότι υπάρχει δυνατότητα ανίχνευσης στο συγκεκριμένο δείγμα στοιχείων των οποίων οι συγκεντρώσεις κυμαίνονται από πολύ χαμηλές έως και πολύ υψηλές τιμές, χωρίς να υπάρχει ανάγκη για διαφορετικό χειρισμό ανά περίπτωση.

Επιπλέον, η χρήση της ANE-ΔΜΟ επιτρέπει την αξιοποίηση πειραματικών εγκαταστάσεων με σχετικά χαμηλές ροές νετρονίων (της τάξης των 10^6 - 10^9 cm⁻²s⁻¹), δεδομένου ότι η “απώλεια” στη νετρονική ροή αντισταθμίζεται από τη μεγαλύτερη μάζα του υλικού. Για την εφαρμογή, συνεπώς, της τεχνικής μπορούν να χρησιμοποιηθούν μικρής και μέσης ισχύος πυρηνικοί αντιδραστήρες, θερμικές στήλες αντιδραστήρων αλλά και διατάξεις ακτινοβολήσης εκτός πυρηνικών αντιδραστήρων, όπως οι ισοτοπικές πηγές νετρονίων ή οι “γεννήτριες” νετρονίων (neutron generators). Παράλληλα, το

γεγονός ότι η ακτινοβολία του μεγάλου δείγματος πραγματοποιείται σε ροές χαμηλότερες από αυτές που χρησιμοποιούνται στην “κλασική” τεχνική ανάλυσης μικρών δειγμάτων (π.χ. $10^7 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ έναντι $10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ αντίστοιχα), εξασφαλίζει ότι η παραμένουσα ειδική ενεργότητα στο υπό μελέτη δείγμα είναι μικρή, άρα σε σύντομο χρονικό διάστημα επιτρέπεται η απομάκρυνσή του από την επιβλεπόμενη περιοχή και το ρυθμιστικό έλεγχο ραδιενεργών υλικών χωρίς καμία περαιτέρω ανησυχία για τα επίπεδα ενεργότητας. Όπως ήδη συζητήθηκε στο 7ο κεφάλαιο, το κεραμικό αγγείο που αναλύθηκε θα μπορούσε μετά την παρέλευση 3 μηνών να επιστρέψει στον ιδιοκτήτη του χωρίς να απαιτείται ειδικός χειρισμός ή επίβλεψή του.

8.2 Διατάξεις ANE-ΔΜΟ

Τα συγκριτικά πλεονεκτήματα και οι μεγάλες δυνατότητες της τεχνικής για μη-καταστροφική, πολυστοιχειακή ανάλυση μεγάλων αντικειμένων έχουν αναδείξει την ANE-ΔΜΟ σε μία τεχνική που συγκεντρώνει το ενδιαφέρον της κοινότητας των αναλυτικών πειραματιστών. Χαρακτηριστικό του γεγονότος αυτού είναι ο μεγάλος αριθμός πειραματικών διατάξεων για ANE-ΔΜΟ που είτε αναπτύχθηκαν είτε βρίσκονται σε διαδικασία ανάπτυξης τα τελευταία χρόνια. Οι υπάρχουσες ή σε ανάπτυξη διατάξεις ANE-ΔΜΟ δίνονται στον Πίνακα 8.1, βάσει στοιχείων του Διεθνούς Οργανισμού Ατομικής Ενέργειας - ΔΟΑΕ [IAEA (2009)]. Στις πηγές νετρονίων που χρησιμοποιούνται για ακτινοβολία συμπεριλαμβάνονται ερευνητικοί αντιδραστήρες μεγάλης ισχύος αλλά και αντιδραστήρες μικρής κλίμακας (miniature reactors), ισοτοπικές πηγές νετρονίων και «γεννήτριες» νετρονίων (neutron generators).

Στην Αίγυπτο, για παράδειγμα, οι ακτινοβολήσεις μεγάλων δειγμάτων πραγματοποιούνται στον αντιδραστήρα ETRR-2, ο οποίος είναι τύπου MTR (Material Testing Reactor), ανοιχτής δεξαμενής και θερμικής ισχύος 22 MW. Στη συγκεκριμένη διάταξη, η μέγιστη ροή θερμικών νετρονίων είναι της τάξης του $4 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ενώ ο λόγος θερμικής προς επιθερμική ροή νετρονίων είναι περίπου ίσος με 120. Στις εγκαταστάσεις ANE-ΔΜΟ του Αιγυπτιακού αντιδραστήρα (διάταξη ακτινοβολίας και διάταξη φασματοσκοπίας-γ) έχει πραγματοποιηθεί η ανάλυση ορυκτού χαλαζία (~700 gr) ενώ στο άμεσο μέλλον σχεδιάζεται η ανάλυση αρχαιολογικών δειγμάτων από τις

Πυραμίδες με στόχο τον προσδιορισμό των υλικών που χρησιμοποιήθηκαν για την κατασκευή τους [Shaat (2010), Soliman et al. (2012)].

Σε ερευνητικό αντιδραστήρα θερμικής ισχύος 16 MW πραγματοποιούνται οι ακτινοβολήσεις μεγάλων δειγμάτων στη Ρωσία. Η συγκεκριμένη διάταξη ακτινοβολήσης, η οποία παρέχει ροή θερμικών νετρονίων ίση με $6.5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, χρησιμοποιήθηκε για την ανάλυση δειγμάτων ακατέργαστου πετρελαίου (όγκου 30-100 gr) που έχουν συλλεγεί στην περιοχή της ανατολικής Σιβηρίας [Zinovyev (2010)] με στόχο τον προσδιορισμό βαρέων μετάλλων.

Στη Ρουμανία αντίστοιχα, εκτός από τη θερμική στήλη του αντιδραστήρα TRIGA - SSR (Steady State Reactor) θερμικής ισχύος 14 MW, για την ακτινοβολήση μεγάλων δειγμάτων αξιοποιείται και κατάλληλη διάταξη που έχει αναπτυχθεί στην καρδιά του TRIGA-ACPR (Annular Core Pulsed Reactor). Η τελευταία παρέχει τη δυνατότητα πραγματοποίησης πειραμάτων είτε σε σταθερή ροή νετρονίων ίση με $10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ σε κατάσταση σταθερής λειτουργίας είτε σε νετρονική ροή της τάξης του 10^{15} cm^{-2} σε ένα παλμό. Η διάταξη ακτινοβολήσης είναι σχεδιασμένη για κυλινδρικά κυρίως δείγματα, έως 28 cm σε ύψος και 14 cm σε διάμετρο, και πρόκειται να αξιοποιηθεί για την ανάλυση κεραμικών δειγμάτων που προέρχονται από το νεολιθικό οικισμό “Lumea Noua” κοντά στην πόλη Alba Iulia της Ρουμανίας [Roth et al. (2012)].

Ο Ολλανδικός αντιδραστήρας HOR, θερμικής ισχύος 2 MW, καθώς και η αντίστοιχη διάταξη ακτινοβολήσης μεγάλων δειγμάτων έχουν περιγραφεί αναλυτικά στο Κεφάλαιο 3. Αξίζει, ωστόσο, να σημειωθεί ότι το διάστημα αυτό βρίσκεται σε εξέλιξη πρόγραμμα αναβάθμισης του συγκεκριμένου αντιδραστήρα, το οποίο αποσκοπεί στην αύξηση της θερμικής ισχύος του από τα 2 MW στα 3 MW καθώς και της ροής νετρονίων κατά παράγοντα ίσο με 40 [Bode & Koster-Ammerlaan (2012)].

Μικρότερης ισχύος είναι οι αντιδραστήρες που χρησιμοποιούνται για ανάλυση μεγάλων δειγμάτων σε Ταϊλάνδη (1.2 MW) και Ινδία (1 MW). Ο Ταϊλανδέζικος ερευνητικός αντιδραστήρας TRIGA Mark III είναι τύπου ανοιχτής δεξαμενής, παρέχει ακτινοβολήση σε πεδίο νετρονίων με θερμική ροή ίση με $5.6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ και αξιοποιείται κυρίως για διατροφικές και γεωλογικές μελέτες μεγάλων δειγμάτων [Laoharajanaphand et al. (2010), Tippayakul (2012)].

Country	Facility available	Calibration Technique	Main Applications	Reference
Brazil	Pool	Comparative	Archaeology	[Faria et al. (2009)]
China	N-generator	Comparative	Archaeology	[Songlin et al. (2010)]
Egypt	Thermal column	Comparative	Archaeology, Geology	[Shaat & Mohamed (2010)]
Ghana	Pool, isotopic source	Comparative, k0	Archaeology, Geology	[Nyarko (2010)]
Greece	Thermal column	Comparative, absolute	Archaeology, Environment	[Tzika et al. (2004)]
India	Thermal column & pool	Internal monitor	Archaeology, Food, Geology, Waste	[Acharya et al. (2010)]
Japan	Pool	PGNAA, comparative	Extra terrestrial	[Islam et al. (2011)]
Malaysia	Isotopic source	PGNAA, comparative	Archaeology, Geology	[Abdullah et al. (2010)]
Netherlands	Thermal column & pool	k0	Biomedical	[Bode et al. (1997)]
Peru	Pool	Comparative	Archaeology Pottery	[Montoya (2010)]
Romania	Dry channel	Absolute or k0	Archaeology	[Roth et al. (2011)]
Russian Federation	Dry channel & water channel	Comparative & absolute	Geology, Oil	[Zinovyev (2010)]
Syrian Arab Republic	Pool	Absolute	Waste	[Haddad & Alsomel (2011)]
Thailand	Thermal column & pool	Comparative & absolute	Food, Soil, Geology	[Laoharajanaphand et al. (2010)]
USA	Pool, Thermal column cell	Comparative	Soil, Environmental	[Reece (2010)]

Πίνακας 8.1 Χαρακτηριστικά των διατάξεων που χρησιμοποιούνται για ANE-ΔΜΟ και τύποι δειγμάτων που αναλύονται

Στην Ινδία η θερμική στήλη είναι εγκατεστημένη στον αντιδραστήρα APSARA, τύπου ανοιχτής δεξαμενής, και παρέχει ροή θερμικών νετρονίων της τάξης του $10^8 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Εκτός όμως από τη θερμική στήλη του αντιδραστήρα APSARA, ακτινοβολήσεις μεγάλων δειγμάτων πραγματοποιούνται και στον ανακλαστή γραφίτη του Ινδικού αντιδραστήρα AHWR στο BARC (Graphite Reflector of AHWR Critical Facility Reactor of BARC). Στη συγκεκριμένη διάταξη θερμικής ισχύος 50-100 W, η ροή θερμικών νετρονίων είναι ίση με $10^7 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ [Reddy (2012)].

Στη Βραζιλία οι ακτινοβολήσεις μεγάλων δειγμάτων πραγματοποιούνται στον αντιδραστήρα IPR-R1, τύπου TRIGA MARK I και θερμικής ισχύος 100 kW. Η διάταξη παρέχει ροή θερμικών νετρονίων $6.35 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ και χρησιμοποιείται κυρίως για την ανάλυση αρχαιολογικών αντικειμένων, περιβαλλοντικών δειγμάτων και βιο-υλικών [Menezes et al. (2012)].

Στη Γκάνα ο αντιδραστήρας GHARR-1, τύπου MNSR (Miniature Neutron Source Reactor), θερμικής ισχύος 30 kW αξιοποιείται για αναλύσεις βιολογικών και γεωλογικών υλικών. Δεδομένου ότι οι υπάρχουσες διατάξεις επιτρέπουν την ακτινοβολήση δειγμάτων με διάμετρο έως 4 cm, σχεδιάζεται η ανάπτυξη διάταξης μεγαλύτερης διαμέτρου, που αναμένεται να χρησιμοποιηθεί για την ανάλυση πολύτιμων αρχαιολογικών δειγμάτων μεγάλου όγκου [Nyarko et al. (2011)].

Εξωτερική δέσμη χρησιμοποιείται στο Περού για τις ακτινοβολήσεις μεγάλων δειγμάτων. Η διάταξη ANE-ΔMO είναι εγκατεστημένη στον ερευνητικό αντιδραστήρα RP-10, θερμικής ισχύος 10 MW. Τα προς ανάλυση δείγματα, κυρίως αρχαιολογικά αντικείμενα, ακτινοβολούνται ταυτόχρονα με ομοιώματα, τα οποία έχουν κατασκευαστεί με βάση τις ακριβείς διαστάσεις, τη μάζα και το σχήμα των αυθεντικών δειγμάτων. Μετά την ακτινοβολήση, τα φάσματα ακτινοβολίας-γ των αυθεντικών δειγμάτων και των αντιγράφων συλλέγονται και συγκρίνονται [Montoya (2010)].

Πέραν των αντιδραστήρων και των διατάξεων σε θερμικές στήλες, για την ακτινοβολήση των μεγάλων δειγμάτων αξιοποιούνται, όπως φαίνεται και στον Πίνακα 8.1, και άλλες πηγές νετρονίων. Στη Μαλαισία, για παράδειγμα, χρησιμοποιείται ισοτοπική πηγή νετρονίων Cf-252, ενεργότητας 96.2 MBq. Στη διάταξη αυτή και με χρήση της τεχνικής NIPGAT (Neutron-Induced Prompt Gamma-ray Technique), η αντίστοιχη ερευνητική ομάδα επιχειρεί την ανάλυση ενός γρανιτένιου λίθου, μάζας 215

kg, μεγάλης ιστορικής και αρχαιολογικής σημασίας. Ο υπό μελέτη λίθος, γνωστός ως Terengganu Stone “Batu Bersurat”, φέρει στην επιφάνειά του επιγραφές που πιστεύεται ότι χρονολογούνται από το 1303 μ.Χ. [Abdullah et al. (2012)].

Εκτός από τις πηγές νετρονίων αλλά και τις τεχνικές βαθμονόμησης που ποικίλουν ανάλογα με τη διάταξη ευρύ είναι και το φάσμα των εφαρμογών της ANE-ΔΜΟ που υλοποιούνται. Οι περισσότερες εφαρμογές αφορούν, όπως διαπιστώνεται, στα πεδία της αρχαιολογίας και της γεωλογίας ενώ δε λείπουν και οι μελέτες χαρακτηρισμού καταλοίπων, οι διατροφικές, περιβαλλοντικές και βιοϊατρικές μελέτες. Στην πλειοψηφία των περιπτώσεων, οι αναλύσεις αφορούν ανομοιογενή υλικά που είτε είναι πολύ δύσκολο έως αδύνατο να ομογενοποιηθούν προκειμένου να μελετηθούν είτε ο σκοπός της ανάλυσης δεν επιτρέπει την κονιορτοποίηση ή την ανάμιξη των διαφόρων συστατικών. Στη συνέχεια του Κεφαλαίου επιχειρείται ανασκόπηση των εφαρμογών της τεχνικής σε μια σειρά τομείς της επιστήμης και της τεχνολογίας.

8.3 Εφαρμογές της ANE-ΔΜΟ

Η ANE-ΔΜΟ έχει αποδειχθεί εξαιρετικά χρήσιμη στο πεδίο της αρχαιολογίας όπου εφαρμόζεται τόσο για την εξέταση της αυθεντικότητας διαφόρων ευρημάτων όσο και για τον προσδιορισμό της προέλευσής τους. Στα πλαίσια αυτών των μελετών, το στοιχειακό προφίλ που προκύπτει από την ανάλυση του εξεταζόμενου “άγνωστου” αρχαιολογικού ευρήματος ή κειμηλίου συγκρίνεται με ανάλογα προφίλ διαφόρων, ήδη ταυτοποιημένων, υλικών και πρώτων υλών με στόχο την αντιστοίχισή τους και τον προσδιορισμό κατά συνέπεια της ακριβούς –χωρικής και χρονικής- ταυτότητας του αντικειμένου. Ανάμεσα στα παραδείγματα επιτυχούς εφαρμογής της τεχνικής στο πεδίο της πολιτιστικής κληρονομιάς συγκαταλέγονται αναλύσεις αρχαιολογικών δειγμάτων μεγάλου όγκου με ακανόνιστο σχήμα και γεωμετρία [Sueki et al. (1998)], μελέτες προσδιορισμού της προέλευσης αρχαιολογικών ευρημάτων όπως για παράδειγμα παραδοσιακών κεραμικών της Ινδιάνικης φυλής Tupi-Guarani στη Βραζιλία [Faria et al. (2009), Menezes et al. (2012)] ή κεραμικών ζώομορφων αγαλματιδίων και προσωπείων στο Περού [Montoya (2010)]. Ενδεικτικά αναφέρονται ακόμα οι αναλύσεις κεραμικών δειγμάτων από την περιοχή των Βουδιστικών ναών του Andhra Pradesh στην Ινδία [Dasari et al. (2010)] καθώς και οι μελέτες εξακρίβωσης της αυθεντικότητας ανεκτίμητης

αξίας αρχαίων Κινέζικων αντικειμένων φτιαγμένων από πορσελάνη [Songlin et al. (2010)]. Αξίζει να επισημανθεί ότι, διαπιστώνοντας τις μεγάλες δυνατότητες και προοπτικές στα πεδία της αρχαιολογίας και της πολιτιστικής κληρονομιάς, ο Διεθνής Οργανισμός Ατομικής Ενέργειας υλοποίησε τριετές ερευνητικό πρόγραμμα με αντικείμενο τις εφαρμογές της ANE-ΔΜΟ σε μη-ομογενή αρχαιολογικά αντικείμενα μεγάλου όγκου [IAEA (2009, 2010, 2012)].

Στον τομέα της μελέτης της πολιτιστικής κληρονομιάς η ANE-ΔΜΟ αναμφισβήτητα διαθέτει καίρια συγκριτικά πλεονεκτήματα, ωστόσο οι εφαρμογές της δεν περιορίζονται σε αυτό μόνο το αντικείμενο. Η τεχνική έχει εφαρμοστεί με επιτυχία στο πεδίο της γεωλογίας με σκοπό τη μελέτη πετρωμάτων που προέρχονται από ορυχεία ουρανίου [Fernandes & Bode (2000)] καθώς και για τη μη-καταστροφική ανάλυση μεγάλων δειγμάτων που αποτελούν τμήματα μετεωριτών [Ebihara (2010), (2012)]. Στο πεδίο των επιστημών ζωής, έχει χρησιμοποιηθεί στα πλαίσια ιατροβιολογικών ερευνών για την ανάλυση οργανικών δειγμάτων μεγάλου όγκου [Gwozdz & Grass (2000)], αλλά και για τον προσδιορισμό της συγκέντρωσης μιας σειράς στοιχείων σε έμβιους οργανισμούς [Kasviki et al. (2007)]. Στα πλαίσια επίσης διατροφικών μελετών, οι Baas et al. (1999) χρησιμοποίησαν την ANE-ΔΜΟ για να εντοπίσουν ανομοιογένειες στις συγκεντρώσεις ιχνοστοιχείων σε κόκκους βραζιλιάνικου καφέ.

Αξίζει να σημειωθεί ότι πληθώρα εφαρμογών αφορούν στην τεχνολογία υλικών. Ενδεικτικά αναφέρονται οι μελέτες των Acharya et al. [(2004), (2004), (2008)] που περιλαμβάνουν αναλύσεις υλικών που χρησιμοποιούνται στην πυρηνική βιομηχανία όπως κράματα σιδήρου, αλουμινίου και κράματα ζirkονίου. Στις επιτυχημένες εφαρμογές της τεχνικής συγκαταλέγονται ακόμα περιβαλλοντικές μελέτες και αναλύσεις χαρακτηρισμού καταλοίπων, όπως αυτές των Segebade et al. (2007) και Haddad & Alsomel (2011) που αφορούν ηλεκτρονικά κατάλοιπα μεγάλου όγκου και στερεά απόβλητα αστικών δικτύων, αντίστοιχα, καθώς και η μελέτη των Swain et al. (2011) σχετικά με την ανάλυση απορριμάτων που προέρχονται από το Εθνικό Νομισματοκοπείο της Ινδίας.

Όπως έχει ήδη φανεί, οι ποικίλες δυνατότητες και τα συγκριτικά πλεονεκτήματα που διαθέτει η ANE-ΔΜΟ έχουν οδηγήσει σε μια σειρά νέων, μοναδικών εφαρμογών της τεχνικής. Στις περισσότερες των περιπτώσεων, οι αναλύσεις αφορούν ανομοιογενή υλικά

που είτε είναι πολύ δύσκολο έως αδύνατο να ομογενοποιηθούν προκειμένου να μελετηθούν είτε ο σκοπός της ανάλυσης δεν επιτρέπει την κονιορτοποίηση ή την ανάμιξη των διαφόρων συστατικών.

Τα αποτελέσματα και οι εφαρμογές της τεχνικής που παρουσιάστηκαν, ανέδειξαν τις μεγάλες προοπτικές αξιοποίησης της ANE-ΔΜΟ σε τομείς όπως η αρχαιολογία και η αρχαιομετρία αλλά και η μελέτη του περιβάλλοντος. Μοναδικά πλεονεκτήματα παρουσιάζει επίσης η τεχνική στην ανάλυση γεωλογικών δειγμάτων αλλά και σπάνιων αντικειμένων «εξωγήινης» προέλευσης, όπως είναι τα τμήματα μετεωριτών ή τα ευρήματα διαπλανητικών αποστολών. Σε ότι αφορά στα υλικά, εκτός από την ήδη εφαρμοζόμενη στοιχειακή ανάλυση βιομηχανικών υλικών, η τεχνική μπορεί να επεκταθεί και για τη διερεύνηση των ιδιοτήτων νέων τεχνολογικών υλικών, όπως οι ημιαγωγοί ή τα υπεραγώγιμα υλικά, καθώς και στη μελέτη πυρηνικών υλικών στα πλαίσια των προγραμμάτων σχάσης – σύντηξης για την πιστοποίηση της σύστασης εξαρτημάτων που θα χρησιμοποιηθούν σε πυρηνικές εγκαταστάσεις. Τομείς με μεγάλο ενδιαφέρον και ιδιαίτερες απαιτήσεις είναι επίσης ο χαρακτηρισμός καταλοίπων και ηλεκτρονικών αποβλήτων (electronic waste) αλλά και οι διατροφικές μελέτες, δεδομένου και του διαρκώς διογκούμενου διατροφικού προβλήματος σε παγκόσμιο επίπεδο.

8.4 Συμβολή της παρούσας εργασίας στην εξέλιξη της ANE-ΔΜΟ

Στα πλαίσια της παρούσας ΔΔ, μελετήθηκαν και αξιολογήθηκαν οι μέθοδοι προσδιορισμού των διορθώσεων που απαιτούνται στην ANE-ΔΜΟ, με έμφαση στις διορθώσεις που αφορούν στην αυτο-απορρόφηση των ακτίνων-γ και στην αυτο-θωράκιση των νετρονίων στον όγκο του δείγματος, ενώ μελετήθηκε σε βάθος η επίδραση των ανομοιογενειών στην ανάλυση του δείγματος. Η μέθοδος προσδιορισμού των διορθώσεων βασίζεται στη χρήση προσομοιώσεων με κώδικες Monte Carlo. Βασικά πλεονεκτήματα της χρήσης προσομοιώσεων αποτελούν η εξασφάλιση της λεπτομερούς περιγραφής του πεδίου νετρονίων αλλά και του πεδίου ακτίνων-γ καθώς και η ευελιξία στη γεωμετρική απεικόνιση του μεγάλου δείγματος, παράγοντες εξαιρετικά σημαντικοί, καθώς η ακριβής προσομοίωση της γεωμετρίας του προβλήματος έχει σαν αποτέλεσμα

μεγαλύτερη ακρίβεια κατά τον υπολογισμό των διορθωτικών παραγόντων. Επιπλέον, οι υπολογισμοί μπορούν εύκολα να προσαρμοστούν σε οποιοδήποτε δείγμα, ανεξαρτήτως γεωμετρικών χαρακτηριστικών και σύστασης, κάτι που έχει μεγάλη αξία στην περίπτωση της ανάλυσης αντικειμένων με «ασύμμετρα», «μη τυπικά» σχήματα, όπως είναι αυτά που συχνά συναντώνται στις μελέτες αρχαιολογικών κειμηλίων, γεωλογικών υλικών ή στερεών αποβλήτων.

Η πειραματική διερεύνηση των δυνατοτήτων και των περιορισμών της τεχνικής της ANE-ΔΜΟ στην ειδική περίπτωση ανομοιογενών υλικών πραγματοποιήθηκε με βάση ανομοιογενές δείγμα αναφοράς, το οποίο αναλύθηκε σύμφωνα με το πρωτόκολλο ανάλυσης δειγμάτων μεγάλου όγκου. Η επίδραση των ανομοιογενειών στα αποτελέσματα της ανάλυσης εκτιμήθηκε μέσω της μελέτης διαφορετικών θεωρήσεων για την ομοιογένεια του δείγματος ενώ επιχειρήθηκε και η ποσοτικοποίηση της επίδρασης αυτής. Τα αποτελέσματα της μελέτης απέδειξαν ότι αν η ύπαρξη και η μακροσκοπική σύσταση της ανομοιογένειας είναι γνωστές, τότε η τεχνική της ANE-ΔΜΟ είναι ικανή να παρέχει αξιόπιστα και ακριβή αποτελέσματα. Σε αντίθετη περίπτωση, μεγάλες αποκλίσεις θα προκύπτουν ως αποτέλεσμα της πλήρους ή μερικής αποτυχίας στην περιγραφή της ανομοιογενούς σύστασης του υλικού του δείγματος. Επιπρόσθετα, είναι αδύνατος ο υπολογισμός στοιχειακών συγκεντρώσεων καθώς σε κάθε περίπτωση δε θα έχει εκτιμηθεί σωστά ο αντίστοιχος όγκος υλικού. Αποδείχθηκε, συνεπώς, ότι η εκ των προτέρων γνώση της ύπαρξης και της θέσης της ανομοιογένειας μέσα στο μεγάλο δείγμα είναι απαραίτητη προκειμένου να επιτευχθεί ακριβής ποσοτική στοιχειακή ανάλυση και αναδείχθηκε η αναγκαιότητα για την ανάπτυξη τεχνικών τρισδιάστατης ανάλυσης και απεικόνισης του δείγματος μεγάλου όγκου, που θα εξασφάλιζαν την απαιτούμενη πληροφορία.

Διερευνήθηκε, με βάση τα παραπάνω, η δυνατότητα αξιοποίησης της τεχνικής της κατευθυνόμενης σάρωσης (collimated gamma scanning) με στόχο την ανάπτυξη μιας μεθόδου που θα μπορούσε να αξιοποιηθεί για την ανάλυση μη-ομογενών δειγμάτων μεγάλου όγκου, αφ' ενός παρέχοντας πληροφορία -όχι μόνο ποιοτική αλλά και ποσοτική- για τις όποιες ανομοιογένειες υπάρχουν μέσα στο δείγμα, αφ' ετέρου διορθώνοντας την επίδραση που αυτές έχουν στα αποτελέσματα της ανάλυσης. Συνδυάζοντας πειραματικές μετρήσεις και προσομοιώσεις Monte Carlo, η τεχνική που αναπτύχθηκε

αποτελέσσε σημαντική επέκταση των προτεινόμενων ως τώρα μεθόδων, καθώς ενσωμάτωσε όχι μόνο την ανίχνευση της ύπαρξης ανομοιογενούς κατανομής της ενεργότητας μέσα στο μεγάλο δείγμα αλλά και τη διόρθωση της επίδρασής της στα φασματοσκοπικά δεδομένα. Η συγκεκριμένη μελέτη συνέβαλλε, επομένως, στην εκπλήρωση της ανάγκης για μια μη-καταστροφική αναλυτική τεχνική ικανή να χειριστεί μεγάλα δείγματα με ανομοιογενείς κατανομές ενεργότητας, εξασφαλίζοντας παράλληλα υψηλή ακρίβεια και αξιοπιστία, ανάγκη που είχε επισημανθεί και από άλλες ερευνητικές ομάδες [Bode (1996), IAEA (2005)].

Η εφαρμογή της ANE-ΔΜΟ για την ανάλυση κεραμικού αγγείου, που αναπαριστούσε αρχαιοελληνικό αμφορέα, επιβεβαίωσε τις μεγάλες δυνατότητες της τεχνικής στη μελέτη αντικειμένων πολιτιστικής κληρονομιάς, τα οποία απαιτείται να αναλυθούν ακέραια χωρίς να καταστραφούν. Επιπλέον, η μελέτη της επαγόμενης ενεργότητας στο αγγείο και ο προσδιορισμός του χρονικού διαστήματος μετά το πέρας του οποίου επιτρέπεται η εξαίρεση του δείγματος από το ρυθμιστικό έλεγχο, ανέδειξε ένα ακόμα πλεονέκτημα της τεχνικής. Το γεγονός ότι πολύτιμα αντικείμενα μπορούν να αναλυθούν με μη-καταστροφικό τρόπο και σε σχετικά μικρό διάστημα να επιστρέψουν στον ιδιοκτήτη τους αποκτά ιδιαίτερη αξία, ιδίως σε περιπτώσεις αρχαιολογικών αντικειμένων και κειμηλίων.

Τα αποτελέσματα της παρούσας εργασίας συνέβαλλαν στην ανάδειξη των συγκριτικών πλεονεκτημάτων που διαθέτει η ANE-ΔΜΟ έναντι όλων των υπόλοιπων τεχνικών και επέτρεψαν την επέκταση της τεχνικής στην ανάλυση ομογενών και ανομοιογενών υλικών μεγάλου όγκου, προσφέροντας ένα σημαντικό αναλυτικό εργαλείο με μεγάλο εύρος εφαρμογών σε κρίσιμους τομείς της επιστήμης και της τεχνολογίας.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 9^ο – ΣΥΜΠΕΡΑΣΜΑΤΑ

9.1 Ανακεφαλαίωση

Σκοπός της παρούσας ΔΔ ήταν η ανάπτυξη μιας πυρηνικής τεχνικής για την πολυστοιχειακή ανάλυση μεγάλων δειγμάτων (με όγκο δηλαδή έως και αρκετά λίτρα) και πιο συγκεκριμένα, η αξιολόγηση και βελτιστοποίηση της μεθοδολογίας που έχει αναπτυχθεί στο εργαστήριο του ερευνητικού αντιδραστήρα του ΕΚΕΦΕ ‘Δημόκριτος’ για την ανάλυση δειγμάτων μεγάλου όγκου και η επέκταση της τεχνικής στην ανάλυση ομογενών και ανομοιογενών αντικειμένων. Στα πλαίσια αυτά, μελετήθηκαν και αξιολογήθηκαν οι μέθοδοι προσδιορισμού των διορθώσεων που απαιτούνται στην ANE-ΔΜΟ, με έμφαση στις διορθώσεις που αφορούν στην αυτο-απορρόφηση των ακτίνων-γ και στην αυτο-θωράκιση των νετρονίων στον όγκο του δείγματος, ενώ μελετήθηκε σε βάθος η επίδραση των ανομοιογενειών στην ανάλυση του δείγματος.

Προκειμένου να διερευνηθούν πειραματικά οι δυνατότητες και οι περιορισμοί της τεχνικής της ANE-ΔΜΟ στην ειδική περίπτωση ανομοιογενών υλικών, παρασκευάστηκε ανομοιογενές δείγμα αναφοράς (reference sample), το οποίο και αναλύθηκε σύμφωνα με το πρωτόκολλο ανάλυσης δειγμάτων μεγάλου όγκου. Η επίδραση των ανομοιογενειών στα αποτελέσματα της ανάλυσης εκτιμήθηκε μέσω της μελέτης διαφορετικών θεωρήσεων για την ομοιογένεια του δείγματος -είτε αγνοώντας πλήρως την ύπαρξη της ανομοιογένειας (δείγμα-βάση), είτε υποθέτοντας ομοιόμορφη κατανομή των στοιχείων της ανομοιογένειας μέσα στο υλικό του δείγματος (ομογενοποιημένο υλικό)- και της σύγκρισής τους στη συνέχεια με την λεπτομερώς προσομοιωμένη περίπτωση του ανομοιογενούς δείγματος (δείγμα αναφοράς). Στην περίπτωση που η ανομοιογένεια λήφθηκε υπ’ όψιν και μοντελοποιήθηκε με λεπτομέρεια παρατηρήθηκε ικανοποιητική συμφωνία τόσο για τα στοιχεία του μητρικού υλικού όσο και για αυτά του υλικού της ανομοιογένειας, ενώ όταν η παρουσία της αγνοήθηκε πλήρως ή θεωρήθηκε ομοιόμορφα κατανομημένη, σημαντικές αποκλίσεις διαπιστώθηκαν για τα στοιχεία της ανομοιογένειας, παρ’ ότι παρατηρήθηκε συμφωνία για τα στοιχεία του μητρικού υλικού. Τα αποτελέσματα της μελέτης απέδειξαν ότι αν η ύπαρξη και η

μακροσκοπική σύσταση της ανομοιογένειας είναι γνωστές, τότε η τεχνική της ANE-ΔΜΟ είναι ικανή να παρέχει αξιόπιστα και ακριβή αποτελέσματα. Σε αντίθετη περίπτωση, μεγάλες αποκλίσεις θα προκύπτουν ως αποτέλεσμα της πλήρους ή μερικής αποτυχίας στην περιγραφή της ανομοιογενούς σύστασης του υλικού του δείγματος. Επιπρόσθετα, είναι αδύνατος ο υπολογισμός στοιχειακών συγκεντρώσεων καθώς σε κάθε περίπτωση δε θα έχει εκτιμηθεί σωστά ο αντίστοιχος όγκος υλικού. Αποδείχθηκε, συνεπώς, ότι η εκ των προτέρων γνώση της ύπαρξης και της θέσης της ανομοιογένειας μέσα στο μεγάλο δείγμα είναι απαραίτητη προκειμένου να επιτευχθεί ακριβής ποσοτική στοιχειακή ανάλυση και αναδείχθηκε η αναγκαιότητα για την ανάπτυξη τεχνικών τρισδιάστατης ανάλυσης και απεικόνισης του δείγματος μεγάλου όγκου, που θα εξασφάλιζαν την απαιτούμενη πληροφορία.

Σε συνέχεια των παραπάνω, διερευνήθηκε η δυνατότητα αξιοποίησης της τεχνικής της κατευθυνόμενης σάρωσης (collimated gamma scanning) με στόχο την ανάπτυξη μιας μεθόδου που θα μπορούσε να αξιοποιηθεί για την ανάλυση μη-ομογενών δειγμάτων μεγάλου όγκου, αφ' ενός παρέχοντας πληροφορία -όχι μόνο ποιοτική αλλά και ποσοτική- για τις όποιες ανομοιογένειες υπάρχουν μέσα στο δείγμα, αφ' ετέρου διορθώνοντας την επίδραση που αυτές έχουν στα αποτελέσματα της ανάλυσης. Αξιοποιώντας ταυτόχρονα πειραματικές μετρήσεις και προσομοιώσεις Monte Carlo, η μέθοδος βασίστηκε στον συνδυασμό των προφίλ ενεργότητας που αποκτήθηκαν μέσω της κατευθυνόμενης σάρωσης του μεγάλου δείγματος και των υπολογισμών που έγιναν με χρήση προσομοιώσεων, προκειμένου να διορθωθούν τα συστηματικά σφάλματα που προκαλεί στην ανάλυση των πειραματικών δεδομένων η ύπαρξη μιας ανομοιογένειας. Για την πειραματική επιβεβαίωση της τεχνικής χρησιμοποιήθηκε ανομοιογενές δείγμα αναφοράς. Η διόρθωση των φασματοσκοπικών δεδομένων βάσει της χωρικής κατανομής της ενεργότητας στο δείγμα οδήγησε σε υψηλής ακρίβειας αποτελέσματα για την ενεργότητα της πηγής, επιτυγχάνοντας εξαιρετική συμφωνία με την τιμή αναφοράς. Επισημαίνεται ότι η τεχνική που αναπτύχθηκε αποτέλεσε σημαντική επέκταση των ως τώρα προτεινόμενων μεθόδων, καθώς ενσωμάτωσε όχι μόνο την ανίχνευση της ύπαρξης ανομοιογενούς κατανομής της ενεργότητας μέσα στο μεγάλο δείγμα αλλά και τη διόρθωση της επίδρασής της στα φασματοσκοπικά δεδομένα. Επομένως, η παρούσα μελέτη συνέβαλλε στην εκπλήρωση της ανάγκης για μια μη-καταστροφική αναλυτική

τεχνική, που να είναι ικανή να χειριστεί μεγάλα δείγματα με ανομοιογενείς κατανομές ενεργότητας, εξασφαλίζοντας παράλληλα υψηλή ακρίβεια και αξιοπιστία. Επέτρεψε, ταυτόχρονα, την διεύρυνση των δυνατοτήτων και εφαρμογών της ANE-ΔΜΟ σε κρίσιμους τομείς μεγάλου επιστημονικού ενδιαφέροντος, όπως είναι η διαχείριση καταλοίπων, οι γεωλογικές και περιβαλλοντικές μελέτες.

Στα πλαίσια της επίδειξης των δυνατοτήτων της ANE-ΔΜΟ στη μελέτη αντικειμένων πολιτιστικής κληρονομιάς, τα οποία απαιτείται να αναλυθούν ακέραια χωρίς να καταστραφούν, υλοποιήθηκε η στοιχειακή ανάλυση κεραμικού αγγείου, που αναπαριστούσε αρχαιοελληνικό αμφορέα. Τα αποτελέσματα της ανάλυσης συγκρίθηκαν με τις τιμές αναφοράς, παρουσιάζοντας ικανοποιητική συμφωνία. Παράλληλα, μελετήθηκε η επαγόμενη στο αγγείο ενεργότητα και η συμπεριφορά της συναρτήσει του χρόνου. Όπως αποδείχθηκε, σε σχετικά μικρό χρονικό διάστημα μετά την ολοκλήρωση της ακτινοβολήσης (3 μήνες), η τιμή της ενεργότητας του αγγείου ήταν επαρκώς χαμηλή, ώστε να επιτρέπεται η εξαίρεσή του από το ρυθμιστικό έλεγχο και την επίβλεψή του ως ραδιενεργό αντικείμενο. Ιδίως σε ότι αφορά στα αρχαιολογικά αντικείμενα και τα κειμήλια πολιτιστικής κληρονομιάς, η παράμετρος αυτή είναι εξαιρετικά σημαντική καθώς σημαίνει πρακτικά πως πολύτιμα αντικείμενα μπορούν να αναλυθούν με μη-καταστροφικό τρόπο και σε σχετικά μικρό διάστημα να επιστρέψουν στον ιδιοκτήτη τους (π.χ. έκθεση σε μουσείο). Τα αποτελέσματα της συγκεκριμένης μελέτης επιβεβαίωσαν τις τεράστιες δυνατότητες που διαθέτει η ANE-ΔΜΟ στην ανάλυση ολόκληρων δειγμάτων και ανέδειξαν τα συγκριτικά της πλεονεκτήματα στην περίπτωση πολύτιμων αντικειμένων που επιβάλλεται να διατηρηθούν ακέραια και άφθαρτα.

9.2 Τελικά συμπεράσματα - Προοπτικές

Συμπερασματικά, η παρούσα ΔΔ απάντησε στα ερωτήματα και τις προκλήσεις που είχαν τεθεί, εκπληρώνοντας το στόχο της για επέκταση της ANE-ΔΜΟ ώστε να μπορεί να καλύψει τις ανάγκες ανάλυσης ανομοιογενών υλικών και δειγμάτων διαφορετικών γεωμετρικών σχημάτων. Στα πλαίσια της ΔΔ υλοποιήθηκαν επιτυχείς εφαρμογές, οι οποίες επιβεβαίωσαν πειραματικά τις δυνατότητες της μεθόδου, ενώ αναπτύχθηκε παράλληλα και νέα, καινοτόμος τεχνική με σημαντικές προοπτικές αξιοποίησης. Σε πλήρη αντιστοιχία με το σκοπό της, η παρούσα εργασία συνέβαλλε στην

κάλυψη της αναγκαιότητας για μια πιστοποιημένη πυρηνική τεχνική, η οποία θα μπορεί να χρησιμοποιηθεί για τη μη-καταστροφική, πολυστοιχειακή ανάλυση δειγμάτων μεγάλου όγκου και επέτρεψε την εφαρμογή της μεθόδου της νετρονικής ενεργοποίησης στην ανάλυση πολύτιμων αντικειμένων πολιτιστικής κληρονομιάς και ανομοιογενών υλικών, διευρύνοντας με τον τρόπο αυτό τα αναλυτικά εργαλεία που διαθέτουμε σήμερα για τη μη-καταστροφική μελέτη υλικών.

Αναδείχθηκαν, ταυτόχρονα, ενδιαφέρουσες προοπτικές για την αξιοποίηση της τεχνικής σε τομείς όπως η αρχαιομετρία και οι μελέτες αυθεντικότητας ή προέλευσης αρχαιολογικών ευρημάτων, η μελέτη του περιβάλλοντος, η ανάλυση γεωλογικών δειγμάτων και σπάνιων αντικειμένων «εξωγήινης» προέλευσης, όπως είναι τα τμήματα μετεωριτών ή τα ευρήματα διαπλανητικών αποστολών. Επιπρόσθετα, μεγάλα πλεονεκτήματα έχει η εφαρμογή της τεχνικής στην τεχνολογία υλικών, στη βιοϊατρική και τη μελέτη βιο-υλικών, στη διαχείριση ηλεκτρονικών αποβλήτων, σε διατροφικές και τοξικολογικές μελέτες. Ιδιαίτερα ενδιαφέρουσα προοπτική αποτελεί η αξιοποίηση της ANE-ΔΜΟ στη νετρονικά επαγόμενη τομογραφία ακτίνων-γ (neutron induced gamma ray tomography) [Balogun et al. (1996)], αντικείμενο το οποίο θα μπορούσε να αποτελέσει τον επόμενο κρίκο στην έρευνα για περαιτέρω επέκταση της τεχνικής της νετρονικής ενεργοποίησης. Η υλοποίηση ενός τέτοιου βήματος θα προϋπέθετε βεβαίως βαθύτερη μελέτη παραμέτρων όπως ο καθορισμός των ορίων ανίχνευσης, η βελτιστοποίηση της διαδικασίας σάρωσης και η επεξεργασία των αλγορίθμων ανακατασκευής της εικόνας.

Στις μελλοντικές μελέτες και προσπάθειες θα μπορούσε επίσης να ενταχθεί η ανάπτυξη διατάξεων ανάλυσης με νετρονική ενεργοποίηση μεγάλων δειγμάτων, χρησιμοποιώντας πηγές νετρονίων εκτός πυρηνικών αντιδραστήρων, όπως για παράδειγμα ισοτοπικών πηγών νετρονίων (^{252}Cf , Am-Be) ή γεννητριών νετρονίων. Μια τέτοια δυνατότητα θα επέτρεπε σε εγκαταστάσεις που δε διαθέτουν πυρηνικό αντιδραστήρα να πραγματοποιήσουν ανάλογες μελέτες ή ακόμα και να υλοποιήσουν διατάξεις για την *in situ* ανάλυση μεγάλων δειγμάτων. Η ανάπτυξη μιας τέτοιας διάταξης θα είχε ιδιαίτερη σημασία στην περίπτωση πολύτιμων αντικειμένων ή τμημάτων κατασκευών, που δε μπορούν είτε λόγω μεγέθους είτε για λόγους ασφαλείας να μεταφερθούν στο εργαστήριο για ανάλυση (κίονες, επιτοίχια ψηφιδωτά, έργα τέχνης).

BIBΛΙΟΓΡΑΦΙΑ

1. Abdullah J., Dahing N. S., Yahya R., Shaari M. R., Mahmood A. A., Hassan H., Jamaluddin T. A., Abdullah M. Y., Mahmud N. A., 'In-Situ Compositional Analysis and Provenance Study of the Historic Terengganu Stone (the Inscribed Stone "Batu Bersurat") using Neutron-Induced Prompt Gamma-Ray Techniques (NIPGAT)', 3rd RCM of the IAEA CRP on Application of LSNA for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects, Lima, Peru, 6-10 February 2012
2. Abdullah J., Mosorov V., Yahya R., Dahing N. S., Shari M. R., Terry A. M., 'Visualization of chemical composition in the Terengganu's inscribed stone using neutron induced prompt gamma ray techniques: A Monte Carlo simulation study', In Proc. 6th World Congress on Industrial Process Tomography, Beijing, China, September 2010, pp. 976-982
3. Acharya R., Nair A. G. C., Reddy A. V. R., Goswami A., 'Application of k_0 -based internal mono standard instrumental neutron activation analysis method for composition analysis of stainless steel clad sample', Anal. Chim. Acta 522 1 (2004) 127-132
4. Acharya R., Nair A. G. C., Reddy A. V. R., Goswami A., 'Standard-less analysis of Zircaloy clad samples by an instrumental neutron activation method', J. Nucl. Mat. 326 (2004) 80-85
5. Acharya R., Nair A. G. C., Sudarshan K., Goswami A., Reddy A. V. R., 'Development and applications of k_0 based NAA and prompt gamma-ray NAA methods at BARC', J. Radioanal. Nucl. Chem. 278 3 (2008) 617-620
6. Acharya R., Swain K. K., Sudarshan K., Tripathi R., Pujari P. K., Reddy A. V. R., 'Large sample NAA work at BARC: Methodology and applications', Nucl. Instrum. Meth. A 622 (2010) 460-463
7. Baas H. W., 'Neutron Activation Analysis of Inhomogeneous Large Samples', Ph.D. Thesis, IRI, Delft University of Technology (2004)
8. Baas H. W., Blaauw M., Bode P., De Goeij J. J. M., 'Collimated scanning towards 3D-INAA of inhomogeneous large samples', Fresenius J. Anal. Chem. 363 (1999) 753-759
9. Balogun F. A., Spyrou N. M., Adesanmi C. A., 'Neutron induced gamma-ray emission tomography', Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 114 (1996) 387-393
10. Basenko V. K., Berlizov A. N., Filby R. H., Malyuk I. A., Tryshyn V. V., 'NAAPRO (Neutron Activation Analysis PRognosis and Optimization) Version 01.beta, User's Guide', (2004)
11. Basenko V. K., Berlizov A. N., Malyuk I. A., Tryshyn V. V., 'NAAPRO: A code for predicting results and performance of neutron activation analysis', J. Radioanal. Nucl. Chem. 263 3 (2005) 675-681

12. Beeley P.A., Garrett R.G., 'Neutron activation analysis of multiple large geological samples by in-pool irradiation using a SLOWPOKE-2 reactor', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 167 1 (1993) 177-185
13. Benedik I., Byrne A. R., 'Simultaneous Determination of Trace Uranium and Thorium by radiochemical Neutron Activation Analysis', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 189 2 (1995) 325-331
14. Berger M. J., Seltzer S. M., 'Electron and Photon Transport Programs, I. Introduction and Notes on Program DATAPAC 4', National Bureau of Standards Report 9836: 'Electron and Photon Transport Programs, II. Notes on Program ETRAN 15', National Bureau of Standards Report 9837 (1968)
15. Berger M. J., Hubbell J. H., Seltzer S. M., Chang J., Coursey J. S., Sukumar R., Zucker D. S., Olsen K., 'XCOM: Photon Cross Section Database (version 1.5)', [Available online: <http://physics.nist.gov/xcom>], National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD (2010)
16. Blaauw M., 'The k0-Consistent IRI γ -Ray Catalogue for INAA', IRI, Delft, The Netherlands (1996)
17. Blaauw M., Lakmaker O., Van Aller P., 'The Accuracy of Instrumental Neutron Activation Analysis of Kilogram-Size Inhomogeneous Samples', *Anal. Chem.* 69 13 (1997) 2247-2250
18. Blum P. Z., 'Fingerprinting the Stone at Saint-Denis: A Pilot Study', *The International Center of Medieval Art* 33 (1994) 19-28
19. Bode P., 'Instrumental and Organizational Aspects of a Neutron Activation Analysis Laboratory', PhD thesis, Delft University of Technology (1996)
20. Bode P., Overwater R. M. W., 'Trace Element Determination in Very Large Samples: A New Challenge for Neutron Activation Analysis', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 167 1 (1993) 169-176
21. Bode P., Overwater R. M. W., DeGoeij J. J. M., 'Large-sample neutron activation analysis: Present status and prospects', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 216 1 (1997) 5-11
22. Bode P., Koster-Ammerlaan M.J.J., 'Validation of intermediate large sample analysis (with sizes up to 100 g) and associated facility improvement', 3rd RCM of the IAEA CRP on Application of LSNA for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects, Lima, Peru, 6-10 February 2012
23. Briesmeister, J. F., 'A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4B', Los Alamos, NM: Los Alamos National Laboratory, Technical Report LA-12625-M (1997)
24. Brun R., Bruyant F., Maire M., McPherson A. C., Zanarini P., 'GEANT3 Users Guide', CERN Data Handling Division, Geneva (1987)
25. Cabrera M. E. M., Hernandez H. H., Peraza E. H., Martinez N. R., Reyes M. C., 'Instrumental Neutron Activation Analysis of Rocks from Cayajabos Petroleum Ore', *Appl. Radiat. Isotop.* 52 (2000) 143-146

26. Chatzispiloglou P., Kontogeorgakos D., Stamatelatos I. E., Tzika F., 'Full energy peak efficiency calibration of a High Purity Germanium detector by using the Monte Carlo method', 20th Conference of the Hellenic Nuclear Physics Society, Athens, Greece, 27-28 May 2011
27. Currie L. A., 'Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination', *Anal. Chem.* 40 (1968) 586
28. Das H. A., 'Quantitative aspects of neutron activation analysis and isotope production with a small reactor', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 242 3 (1999) 587–593
29. Dasari K. B., Acharya R., Swain K. K., Lakshmana Das N., Reddy A. V. R., 'Analysis of large and non-standard geometry samples of ancient potteries by internal monostandard neutron activation analysis using in situ detection efficiency', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 286 (2010) 525–531
30. Degenaar I. H., 'Towards a methodology for large sample prompt-gamma neutron activation analysis', Ph.D. Thesis, IRI, Delft University of Technology (2004)
31. Dryak P., Kovar P., 'Experimental and MC determination of HPGe detector efficiency in the 40–2754 keV energy range for measuring point source geometry with the source-to-detector distance of 25 cm', *Appl. Radiat. Isotop.* 64 (2006) 1346–1349
32. Ebihara M., 'Non-destructive analysis of bulky meteorites by neutron-induced prompt gamma-ray analysis', 2nd RCM of the IAEA CRP on Application of LSNA for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects, Delft, The Netherlands, 17-21 May 2010
33. Ebihara M., 'Non-destructive analysis of bulky solid samples by neutron-induced prompt gamma-ray analysis', 3rd RCM of the IAEA CRP on Application of LSNA for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects, Lima, Peru, 6-10 February 2012
34. Evans R. D., 'The Atomic Nucleus', McGraw-Hill Book Company, INC, New York - Toronto - London (1955)
35. Faria G. L. O., Menezes M. Â. B. C., Ribeiro L., Jacome C., 'Neutron Activation Analysis and provenance study of Tupi-Guarani Tradition Pottery', International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2009, Rio de Janeiro, Brazil, 27 September – 2 October 2009
36. Fernandes E. A. N., Bode P., 'Sampling and homogenization studies of uranium mining waste rocks using normal and large-sample INAA', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 244 3 (2000) 589–594
37. Forsyth I. H., 'Five Sculptures from a Single Limestone Formation: The Case of Savigny', *The International Center of Medieval Art* 33 (1994) 47- 51
38. Glascock M. D., 'Tables for Neutron Activation Analysis', The University of Missouri Research Reactor Center, Columbia, MO (1996)

39. Glascock M. D., 'Overview of Neutron Activation Analysis', [http://archaeometry.missouri.edu/naa_overview.html], University of Missouri Research Reactor (2011)
40. Grasserbauer M., Zolotov Y. A., Morrison G. H., Stinger G., Karpov Y. A., Gimelfarb F. A., 'General-Aspects of Trace Analytical Methods. A. Trace Analysis of Semiconductor-Materials. B. Distribution Analysis', *Pure Appl. Chem.* 57 8 (1985) 1153-1170
41. Grimani A. P., Kalogeropoulos N., Kilikoglou V., Vassilaki - Grimani M., 'Use of NAA in Marine Environment and in Archaeology in Greece', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 219 (1997) 177-185
42. Gwozdz R., Grass F., 'Activation analysis of large samples', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 244 3 (2000) 523-529
43. Haddad Kh., Alsomel N., 'Large sample neutron activation analysis of municipal solid waste using shutdown MNSR photoneutrons', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 288 3 (2011) 823-828
44. Halbleib J. A., Mehlhorn T. A., 'The integrated tiger series (ITS) of coupled electron/photon Monte Carlo transport codes', *Nucl. Sci. Eng.* 92 (1986) 338-339
45. Halbleib J. A., Kensek R. P., Mehlhorn T. A., Valdez G. D., Seltzer S. M., Berger M, J, 'ITS version 3.0: the integrated TIGER series of coupled electron/photon Monte Carlo transport codes', Technical Report SAND91-1634, Sandia National Laboratories (1992)
46. Hernandez F., El-Daoushy F., 'Accounting for incomplete charge collection in Monte Carlo simulations of the efficiency of well-type Ge-detectors', *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 498 (2003) 340-351
47. Hevesy G., Levi H., 'Action of slow neutrons on rare earth elements', *Nature* 137 (1936) 185
48. Ihnat M., 'Performance of NAA Methods in an International Interlaboratory Reference Material Characterization Campaign', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 245 (2000) 73-80
49. International Atomic Energy Agency, 'International Basic Safety Standards for Protection Against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiation Sources', Safety Series No. 115, IAEA, Vienna, Austria, 1996
50. International Atomic Energy Agency, 'Report of the Technical Meeting on Large Sample Neutron Activation Analysis Using Low Flux Irradiation Facilities', IAEA, Vienna, Austria, 7-11 November 2005
51. International Atomic Energy Agency, 'Report of the 1st RCM on Application of LSNA for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects', IAEA, Vienna, Austria, 19-23 January 2009
52. International Atomic Energy Agency, 'Report of the 2nd RCM on Application of LSNA for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects', Delft, The Netherlands, 17-21 May 2010

53. International Atomic Energy Agency, 'Report of the 3rd RCM on Application of LSNA for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects', Lima, Peru, 6-10 February 2012
54. Islam M. A., Ebihara M., Toh Y., Harada H., 'Comparison of Multiple Prompt γ -Ray Analysis and Prompt γ -Ray Analysis for the Elemental Analysis of Geological and Cosmochemical Samples', *Anal. Chem.* 83 (2011) 7486-7491
55. Karamanis D., 'Efficiency simulation of HPGe and Si(Li) detectors in γ - and in X-ray spectroscopy', *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 505 (2003) 282-285
56. Kasviki K., Stamatelatos I. E., Kalef-Ezra J., 'Evaluation of spatial sensitivity of a prompt gamma neutron activation analysis facility for the in vivo determination of nitrogen in small animals', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 271 1 (2007) 225-231
57. Kawrakow I., 'Accurate condensed history Monte Carlo simulation of electron transport: I. EGSnrc, the new EGS4 version', *Med. Phys.* 27 (2000) 485-498
58. Knoll G. F., 'Radiation Detection and Measurement', 3rd ed., John Wiley & Sons, Inc., New York, NY (2000)
59. Kucera J., Horakova J., Soukal L., 'Use of INAA in the Preparation of a Set of Soil Reference Materials with Certified Values of Total Element Contents', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 215 (1997) 147-155
60. Lamarsh J. R., 'Introduction to Nuclear Engineering', Third edition, Addison-Wesley Pub. (1983)
61. Laoharajanaphand S., Dharmavani W., Permmamtip V., Tippayakul C., Klaisubun N., 'Application of LSNA Techniques for Analysis of Inhomogeneous Bulk Samples in Thailand', 2nd RCM of the IAEA CRP on Application of LSNA for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects, Delft, The Netherlands, 17-21 May 2010
62. Le Petit G., Jutier C., Gross P., Greiner V., 'Low-level activity measurement of ¹³¹Xe, ¹³³Xe, ¹³⁵Xe and ¹³³Xe in atmospheric air samples using high-resolution dual X-g spectrometry', *Appl. Radiat. Isotop.* 64 (2006) 1307-1312
63. Lin X., Henkelmann R., 'Instrumental Neutron Activation Analysis of Large Samples: A Pilot Experiment', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 251 2 (2002) 197-204
64. Menezes M. Â. B. C., Jacimovic R., Ribeiro L., 'Contribution of Neutron Activation Technique to rescue the Brazilian history through the analysis of Tupiguarani tradition ceramics', 3rd RCM of the IAEA CRP on Application of LSNA for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects, Lima, Peru, 6-10 February 2012
65. Misaelides P., Samara C., Georgopoulos M., Kouimtzis Th., Synetos S., 'Toxic elements in the environment of Thessaloniki, Greece', *Toxicological & Environmental Chemistry* 24 4 (1989) 191-198
66. Montoya E., 'LSNA of Archaeological Pottery: How to Get Accurate Results in a Practical Way', 2nd RCM of the IAEA CRP on Application of LSNA for

- Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects, Delft, The Netherlands, 17-21 May 2010
67. Nair A. G. C., Acharya R., Sudarshan K., Gangotra S., Reddy A. V. R., Manohar S. B., Goswami A., 'Development of an internal monostandard instrumental neutron activation analysis method based on in situ detection efficiency for analysis of large and nonstandard geometry samples', *Anal. Chem.* 75 (2003) 4868-4874
 68. Nelson W. R., Hirayama H., Rogers D. W. O., 'The EGS4 Code System Report SLAC-265', Stanford, CA: Stanford Linear Accelerator Center (1985)
 69. Nyarko B. J. B., 'Large Sample Neutron Activation Analysis using a low power research reactor', 2nd RCM of the IAEA CRP on Application of LSNA for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects, Delft, The Netherlands, 17-21 May 2010
 70. Nyarko B. J. B., Asamoah M., Gyampo O., Akaho E. H. K., Yamoah S., Mensimah E., Abrefah R. G., 'Design of a large irradiation channel at MNSR facility in Ghana', *Annals of Nuclear Energy* 38 (2011) 431-437
 71. Orvini E., Speziali M., 'Applicability and limits of Instrumental Neutron Activation Analysis: state of the art in the year 2000', *Microchem. J.* 59 (1998) 160-172
 72. Orvini E., Speziali M., Salvini A., Herborg C., 'Rare earth elements determination in environmental matrices by INAA', *Microchem. J.* 67 (2000) 97-104
 73. Overwater R. M. W., 'The Physics of Big Sample Instrumental Neutron Activation Analysis', PhD thesis, Delft University of Technology (1994)
 74. Overwater R. M. W., Bode P., De Goeij J. J. M., 'Gamma-ray spectroscopy of voluminous sources', *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 324 (1993) 209-218
 75. Overwater R. M. W., Hoogenboom J. E., 'Accounting for the thermal neutron flux depression in voluminous samples for Instrumental Neutron Activation Analysis', *Nucl. Sc. Engineer.* 117 (1994) 141-157
 76. Overwater R. M. W., Bode P., De Goeij J. J. M., Hoogenboom J. E., 'Feasibility of elemental analysis of kilogram-size samples by instrumental neutron activation analysis', *Anal. Chem.* 68 (1996) 341-348
 77. Overwater R. M. W., Bode P., 'Computer simulations of the effects of inhomogeneities on the accuracy of large sample INAA', *Appl. Radiat. Isotop.* 49 8 (1998) 967-976
 78. Parry S. J. 'Activation Spectrometry in chemical analysis', John Wiley and Sons, New York, NY (1991)
 79. Parry S. J. 'Handbook of neutron activation analysis', Viridian Pub. (2003)
 80. Piton F, Lepy M. C., Be M. M., Plagnard J., 'Efficiency transfer and coincidence summing corrections for γ -ray spectrometry', *Appl. Radiat. Isotop.* 52 (2000) 791-795

81. Reddy A.V.R., 'Application of conventional and k0-based internal monostandard NAA (IM-NAA) using reactor neutrons for compositional analysis of large samples', 3rd RCM of the IAEA CRP on Application of LSNAAs for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects, Lima, Peru, 6-10 February 2012
82. Reece W. D., 'Measuring nuclide distributions using LSNAAs', 2nd RCM of the IAEA CRP on Application of LSNAAs for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects, Delft, The Netherlands, 17-21 May 2010
83. Reus U., Westmeier W., 'Catalog of Gamma Rays from Radioactive Decay', Atomic data and nuclear data tables 29 (1983) 1-406
84. Ródenas J., Martinavarro A., Rius V., 'Validation of the MCNP code for the simulation of Ge-detector calibration', Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 450 (2000) 88-97
85. Ródenas J., Pascual A., Zarza I., Serradell V., Ortiz J., Ballesteros L., 'Analysis of the influence of germanium dead layer on detector calibration simulation for environmental radioactive samples using the Monte Carlo method', Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 496 (2003) 390-399
86. Rose P. F., 'Compiler and Editor, ENDF-201, ENDF/B-VI Summary Documentation', BNL-NCS-17541, Brookhaven National Laboratory (1991)
87. Roth C., Barbos D., Gugiu D., Datcu A., Dobrea D., Preda M., Gligor M., Mweetwa M. B., 'Irradiation and measurement devices and methods development for LSNAAs applications at the TRIGA-ACPR core', J. Radioanal. Nucl. Chem. 291 2 (2012) 461-466
88. Roth C., Gugiu D., Barbos D., Paunoiu C., Datcu A., Aioanei L., Dobrea D., Visan I., Gligor M., Ghinescu A., Mweetwa M. B., 'Large Sample Neutron Activation Analysis facility and methodology development', 3rd RCM of the IAEA CRP on Application of LSNAAs for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects, Lima, Peru, 6-10 February 2012
89. Rulon L. L., Robertson J. D., Lovell M. A., Deibel M. A., Ehmann W. D., Markesbery W. R., 'Serum Zinc levels and Alzheimer's disease', Biol. Trace Elem. Res. 75 (2000) 79-85
90. Saegusa J., Kawasaki K., Mihara A., Mitsuo I., Yoshida M., 'Determination of detection efficiency curves of HPGe detectors on radioactivity measurement of volume samples', Appl. Radiat. Isotop. 61 (2004) 1383-1390
91. Salvat F., Fernández-Varea J. M., Baró J., Sempau J., 'PENELOPE, an algorithm and computer code for Monte Carlo simulation of electron - photon showers', Technical Report 799, Madrid: Ciemat (1996)
92. Salvat F., Fernandez-Varea J. M., Sempau J., 'PENELOPE-2008: A code system for Monte Carlo simulation of Electron and Photon transport', NEA Data Bank, Workshop proceedings, Barcelona, Spain, 30 June - 3 July 2008

93. Schwedt A., Momusen H., Zacharias N., 'Post-depositional elemental alterations in pottery: Neutron activation analysis of surface and core samples', *Archaeometry* 46 (2004) 85-101
94. Segebade C., Bode P., Goerner W., 'The problem of large samples: An activation analysis study of electronic waste material', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 271 2 (2007) 261–268
95. Shaat M. K., Mohamed N. M. A., 'Large Sample Neutron Activation Analysis at ETRR-2: Current Status and Future Plan', 2nd RCM of the IAEA CRP on Application of LSNA for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects, Delft, The Netherlands, 17-21 May 2010
96. Soliman M., Mohamed N., Abdelgawad M., Gaheen M., 'Non destructive Elemental Analysis of Ceramic Bottle using LSNA Facility at ETRR-2', 3rd RCM of the IAEA CRP on Application of LSNA for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects, Lima, Peru, 6-10 February 2012
97. Songlin F., Xiangqian F., Lingtong Y., Li L., 'Methodology Study of NAA Techniques with Neutron Tube in Distinguishing Provenance and Identifying Authenticity of Intact Ancient Ceramic Ware', 2nd RCM of the IAEA CRP on Application of LSNA for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects, Delft, The Netherlands, 17-21 May 2010
98. Speakman R. J., Glascock M. D., 'Acknowledging fifty years of neutron activation analysis in archaeology', *Archaeometry* 49 (2007) 179–183
99. Stamatelatos I .E., Katopodis K., Bersos Y., Kalef-Ezra J., Lefkopoulos G., Siamopoulos K., 'Serum aluminum determination by INAA in long term haemodialysis patients', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 241 (1999) 483-486
100. Stamatelatos I. E., Tzika F., 'Large Sample Neutron Activation Analysis: A Challenge in Cultural Heritage Studies', *Annali di Chimica* 97 (2007) 505-512
101. Steinnes E., 'Neutron activation techniques in environmental studies', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 243 (2000) 235-239
102. Stone S. F., Bernasconi G., Haselberger N., Makarewicz M., Ogris R., Wobrauschek P., Zeisler R., 'Detection and determination of selenoproteins by nuclear techniques', *Biol. Trace Elem. Res.* 43-45 (1994) 299-307
103. Sueki K., Oura Y., Sato W., Nakahara H., Tomizawa T., 'Analysis of archaeological samples by the internal monostandard method of PGAA', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 234 (1998) 27-31
104. Swain K. K., Ajith N., Acharya R., Verma R., Reddy A. V. R., 'Large sample neutron activation analysis of dross for gold and silver', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* (2011) DOI 10.1007/s10967-011-1519-7
105. Tippayakul C., 'Current Status on Development of LSNA in Thailand', 3rd RCM of the IAEA CRP on Application of LSNA for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects, Lima, Peru, 6-10 February 2012

106. Tzika F., Stamatelatos I. E., 'Thermal neutron self-shielding correction factors for large sample instrumental neutron activation analysis using the MCNP code', *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 213 (2004) 177-181
107. Tzika F., Stamatelatos I. E., Kalef-Ezra J., Bode P., 'Large Sample Neutron Activation Analysis: Correction for Neutron and Gamma Attenuation', *Nukleonika* 49 (2004) 115-121
108. Tzika F., Stamatelatos I. E., Kalef-Ezra J., 'Neutron activation analysis of large volume samples: The influence of inhomogeneity', *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 271 (2007) 233-240
109. Tzika F., Vasilopoulou T., Stamatelatos I. E., 'Efficiency characterization of coaxial high purity Germanium semiconductor detectors using the MCNP code', *Fusion RTD Activities, Association EURATOM - Hellenic Republic, Annual Report 2008*
110. Tzika F., Kontogeorgakos D., Vasilopoulou T., Stamatelatos I. E., 'Application of the Monte Carlo method for the calibration of an in situ gamma spectrometer', *Appl. Radiat. Isotop.* 68 (2010) 1441-1444
111. Vasilopoulou T., Tzika F., Stamatelatos I. E., 'Gamma ray spectrometry for in-situ evaluation of induced activity at components of a future fusion device', *Fusion RTD Activities, Association EURATOM - Hellenic Republic, Annual Report 2010*
112. Venkataraman R., Villani M., Croft S., McClay P., McElroy R., Kane S., Mueller W., Estep R., 'An integrated Tomographic Gamma Scanning system for non-destructive assay of radioactive waste', *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 579 1 (2007) 375-379
113. Vidmar T., 'EFFTRAN- A Monte Carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry', *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 550 (2005) 603-608
114. Vidmar T., Likar A., 'Calculation of total efficiencies of extended samples for HPGe detectors', *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 555 (2005) 251-254
115. Vidmar T., Korun M., Vodenik Br., 'A method for calculation of true coincidence summing correction factors for extended sources', *Appl. Radiat. Isotop.* 65 (2007) 243-246
116. Vidmar T., Vodenik B., Necemer M., 'Efficiency transfer between extended sources', *Appl. Radiat. Isotop.* 68 (2010) 2352-2354
117. Vidmar T., Celik N., Cornejo Diaz N., Dlabac A., Ewa I. O. B., Carrazana Gonzalez J. A., Hult M., Jovanovic S., Lepy M.-C., Mihaljevic N., Sima O., Tzika F., Jurado Vargas M., Vasilopoulou T., Vidmar G., 'Testing efficiency transfer codes for equivalence', *Appl. Radiat. Isotop.* 68 (2010) 355-359
118. X-5 Monte Carlo Team, 'MCNP - A general Monte Carlo N-Particle transport code, Version 5', LA-UR-03-1987 (2003)

119. Zaichick V., Tzaphlidou M., 'Determination of calcium, phosphorus, and the calcium/phosphorus ratio in cortical bone from the human femoral neck by neutron activation analysis', *Appl. Radiat. Isotop.* 56 (2002) 781–786
120. Zinovyev V., 'Neutron activation analysis of large crude oil samples', 2nd RCM of the IAEA CRP on Application of LSNA for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Bulk Objects, Delft, The Netherlands, 17-21 May 2010
121. Βασιλοπούλου Θ., 'Προσδιορισμός συντελεστών διόρθωσης απόδοσης ανιχνευτή HPGe λόγω του φαινομένου της πραγματικής σύμπτωσης, μέσω προσομοίωσης Monte Carlo', Μεταπτυχιακή Διπλωματική εργασία, Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο (2008)
122. Τζίκα Φ., 'Ανάπτυξη και Βιοϊατρικές Εφαρμογές διάταξης Ανάλυσης με Νετρονική Ενεργοποίηση δειγμάτων μεγάλου όγκου', Διδακτορική Διατριβή, Πανεπιστήμιο Ιωαννίνων (2005)
123. 'Κανονισμός Ακτινοπροστασίας', Υπ.Απ. 1014 (ΦΟΡ) 94, ΦΕΚ 216Β 6/3/2001

ΚΑΤΑΛΟΓΟΣ ΔΗΜΟΣΙΕΥΣΕΩΝ - ΑΝΑΚΟΙΝΩΣΕΩΝ ΣΕ ΣΥΝΕΔΡΙΑ

Στα πλαίσια της Διδακτορικής Διατριβής έχουν ως τώρα προκύψει οι παρακάτω δημοσιεύσεις και συμμετοχές σε Συνέδρια:

Δημοσιεύσεις σε διεθνή επιστημονικά περιοδικά

- Δ1) T. Vasilopoulou, F. Tzika and I.E. Stamatelatos, “*Collimated Scanning for Large Sample Neutron Activation Analysis of Inhomogeneous Samples*”, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 291 (2012) 479-483
- Δ2) T. Vasilopoulou, F. Tzika, M.J.J. Koster-Ammerlaan and I.E. Stamatelatos, “*Large Sample Neutron Activation Analysis of a Reference Inhomogeneous Sample*”, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 289 (2011) 731-737
- Δ3) I.E. Stamatelatos, F. Tzika, T. Vasilopoulou and M.J.J. Koster-Ammerlaan, “*Large sample neutron activation analysis of a ceramic vase*”, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 283 3 (2010) 735-740
- Δ4) F. Tzika, D. Kontogeorgakos, T. Vasilopoulou and I.E. Stamatelatos, “*Application of the Monte Carlo method for the calibration of an in situ gamma spectrometer*”, Applied Radiation and Isotopes 68 (2010) 1441–1444
- Δ5) T.Vidmar, N.Celik, N.Cornejo Diaz, A. Dlabac, I.O.B. Ewa, J.A.Carrazana Gonzalez, M.Hult, S.Jovanovic, M.-C.Lepy, N.Mihaljevic, O.Sima, F.Tzika, M.Jurado Vargas, T. Vasilopoulou, G.Vidmar, “*Testing efficiency transfer codes for equivalence*”, Applied Radiation and Isotopes 68 (2010) 355–359

Συμμετοχές σε Συνέδρια

- Σ1) T. Vasilopoulou, F. Tzika and I.E. Stamatelatos, “*Collimated Scanning for Large Sample Neutron Activation Analysis of Inhomogeneous Samples*”, 13th International Conference on Modern Trends In Activation Analysis (MTAA-13), 13-18 March 2011, College Station, Texas, USA
- Σ2) T. Vasilopoulou, F. Tzika and I.E. Stamatelatos, “*Large Sample Neutron Activation Analysis for Cultural Heritage Studies*”, 21st Conference of the Hellenic Nuclear Physics Society, 25-26 May 2012, Athens, Greece

- Σ3) T. Vasilopoulou, F. Tzika and I.E. Stamatelatos, “*Large Sample Neutron Activation Analysis: Developments and Perspectives*”, 20th Conference of the Hellenic Nuclear Physics Society, 27-28 May 2011, Athens, Greece
- Σ4) F. Tzika, T. Vasilopoulou and I.E. Stamatelatos, “*Large Sample Neutron Activation Analysis of Heterogeneous Samples*”, 2nd Research Coordination Meeting (RCM) on "Application of Large Sample Neutron Activation Analysis Techniques for Inhomogeneous Bulk Archaeological Samples and Large Objects", 17-21 May 2010, Delft, The Netherlands
- Σ5) F. Tzika, T. Vasilopoulou and I. E. Stamatelatos, “*Methodology for Large Sample Neutron Activation Analysis of cultural heritage objects*”, Technart 2009 Conference, 27-30 April 2009, Athens, Greece
- Σ6) F. Tzika, D. Kontogeorgakos, T. Vasilopoulou and I.E. Stamatelatos, “*Application of the Monte Carlo method for the calibration of an in situ gamma spectrometer*”, 17th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications, ICRM 2009, 7-11 September 2009, Bratislava, Slovakia

Επιστημονικές Εκθέσεις

- E1) T. Vasilopoulou, F. Tzika and I.E. Stamatelatos, “*Gamma ray spectrometry for in-situ evaluation of induced activity at components of a future fusion device*”, Fusion RTD Activities, Association EURATOM - Hellenic Republic, Annual Report 2010
- E2) F. Tzika, D. Kontogeorgakos, T. Vasilopoulou and I.E. Stamatelatos, “*Monte Carlo model of a gamma spectrometry system for in situ assessment of induced activity at fusion reactor components: Further developments*”, Fusion RTD Activities, Association EURATOM - Hellenic Republic, Annual Report 2009
- E3) T. Vasilopoulou, F. Tzika and I.E. Stamatelatos, “*Comparison of Monte Carlo codes MCNP and PENELOPE for gamma ray efficiency characterization of high purity Germanium semiconductor detectors*”, Fusion RTD Activities, Association EURATOM - Hellenic Republic, Annual Report 2008
- E4) F. Tzika, T. Vasilopoulou and I.E. Stamatelatos, “*Efficiency characterization of coaxial high purity Germanium semiconductor detectors using the MCNP code*”, Fusion RTD Activities, Association EURATOM - Hellenic Republic, Annual Report 2008

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Α

A.1 Πειραματικός υπολογισμός απόδοσης

A.1.1 Υπολογισμός αποδόσεων

Ο πειραματικός υπολογισμός της απόδοσης για μία συγκεκριμένη ενέργεια, στηρίζεται στη χρήση πηγής γνωστής ραδιενέργειας, η οποία εκπέμπει φωτόνια της συγκεκριμένης ενέργειας και η οποία έχει την ίδια γεωμετρία με το δείγμα που πρόκειται να αναλυθεί. Η πηγή τοποθετείται στη θέση στην οποία προβλέπεται να τοποθετηθεί το προς ανάλυση δείγμα και λαμβάνεται φάσμα, για επαρκές χρονικό διάστημα. Εν συνεχεία, η απόλυτη απόδοση φωτοκορυφής (absolute photopeak efficiency) υπολογίζεται μέσω του τύπου

$$Eff_{peak} = \frac{cps}{gps} \quad (A.1)$$

όπου

Eff_{peak} : η απόδοση φωτοκορυφής (peak efficiency) του ανιχνευτή

cps : ο ρυθμός των ανιχνευόμενων κρούσεων (counts per second) και

gps : ο ρυθμός των εκπεμπόμενων από την πηγή ακτίνων-γ (gammas per second)

Σημειώνεται ότι ο όρος «ανιχνευόμενες κρούσεις» χρησιμοποιείται στη γ-φασματοσκοπία για να υποδηλώσει την καταγραφή γεγονότων, δηλαδή φωτονίων από τον ανιχνευτή.

Ο ρυθμός των εκπεμπόμενων από την πηγή ακτίνων-γ είναι ουσιαστικά ο αριθμός των φωτονίων που εκπέμπονται στη μονάδα του χρόνου, οπότε το μέγεθος gps (gammas per second) μπορεί να αναλυθεί ως εξής:

$$gps = A \times f_{\gamma} \quad (A.2)$$

όπου

A : η ενεργότητα της πηγής, δηλαδή ο αριθμός των διασπάσεων στη μονάδα του χρόνου (Activity) και

f_{γ} : ο αριθμός των εκπεμπόμενων ακτίνων-γ ανά διάσπαση (yield)

Με δεδομένο ότι ο ρυθμός των ανιχνευόμενων κρούσεων ισούται με τον αριθμό των γεγονότων που καταγράφει ο ανιχνευτής στη μονάδα του χρόνου, το μέγεθος cps γράφεται:

$$cps = \frac{N}{t} \quad (A.3)$$

όπου:

N : η καθαρή επιφάνεια / εμβαδόν της φωτοκορυφής (Area)

t : ο χρόνος μέτρησης

Συνδυάζοντας τις τρεις σχέσεις, η απόδοση φωτοκορυφής υπολογίζεται τελικά από τη σχέση:

$$Eff_{peak} = \frac{N}{(A \times f_{\gamma} \times t)} \quad (A.4)$$

Με γνωστές τις τιμές του yield και της ενεργότητας της πηγής, η απόδοση φωτοκορυφής του ανιχνευτή υπολογίζεται πειραματικά καταγράφοντας από το αντίστοιχο φάσμα –με κατάλληλο πρόγραμμα επεξεργασίας- το εμβαδόν της φωτοκορυφής και το χρόνο μέτρησης του δείγματος.

Όσον αφορά την ολική απόδοση, η μεθοδολογία πειραματικού προσδιορισμού παρουσιάζει σημαντικές δυσκολίες. Η εκτίμηση του πλήθους των φωτονίων τα οποία αποθέτουν τμήμα μόνο της ενέργειάς τους στον ανιχνευτή, και κατά συνέπεια καταγράφονται σε τυχαία θέση στο φάσμα, καθίσταται εξαιρετικά δύσκολη, αν όχι αδύνατη, στην περίπτωση που η πηγή που χρησιμοποιείται εκπέμπει φωτόνια σε περισσότερες από μία ενέργειες (συμπεριλαμβανομένων και των ακτίνων-X), κάτι που είναι εξαιρετικά συνηθισμένο. Για την περίπτωση μονοενεργειακής πηγής φωτονίων τα πράγματα είναι απλούστερα, καθώς μπορεί να θεωρηθεί με μεγάλη ακρίβεια ότι όλο το συνεχές φάσμα οφείλεται σε φωτόνια της αρχικής ενέργειας που έχουν αποθέσει στον ανιχνευτή τμήμα της ενέργειάς τους. Επισημαίνεται ότι αυτό ισχύει με ικανοποιητική ακρίβεια εφόσον το φάσμα είναι μικρής διάρκειας (δηλαδή η πηγή είναι αρκετά ισχυρή), έτσι ώστε να μπορεί να αγνοηθεί η συνεισφορά του υποστρώματος της ανιχνευτικής διάταξης. Εναλλακτικά, το συνεχές υπόστρωμα θα πρέπει να αφαιρεθεί κατάλληλα.

Για τον υπολογισμό της ολικής απόδοσης, μπορεί να χρησιμοποιηθεί η σχέση (A.4), όπου αντί για την επιφάνεια φωτοκορυφής χρησιμοποιείται η συνολική επιφάνεια του φάσματος.

Πολύ συχνά, αντί για τον ανεξάρτητο υπολογισμό της απόδοσης φωτοκορυφής και της ολικής απόδοσης, εκτιμάται ο λόγος peak to total (p_{tt}) και ισοδύναμα ο αντίστροφος λόγος total to peak (t_{tp}). Ο υπολογισμός αυτός έχει το πλεονέκτημα ότι είναι ανεξάρτητος από μεγέθη όπως το ποσοστό εκπομπής. Σύμφωνα με τους ορισμούς των δύο παραπάνω μεγεθών ο υπολογισμός γίνεται από τις σχέσεις:

$$p_{tt} = \frac{Eff_{peak}}{Eff_{total}} \quad \text{και} \quad t_{tp} = \frac{Eff_{total}}{Eff_{peak}} \quad (\text{A.5})$$

Εκτός από τον προφανή τρόπο διαίρεσης, ο οποίος μπορεί βέβαια να χρησιμοποιηθεί μόνο σε περιπτώσεις μονοενεργειακών πηγών (όπου μπορεί να προσδιοριστεί η τιμή της ολικής απόδοσης), οι τιμές των λόγων μπορούν να υπολογιστούν και με μία δεύτερη μέθοδο, η οποία καλύπτει όλες τις περιπτώσεις πηγών και μπορεί να εφαρμοστεί ακόμα κι αν ο προσδιορισμός της τιμής της ολικής απόδοσης είναι ανέφικτος. Αυτό οφείλεται στο γεγονός ότι οι ανάλογοι μαθηματικοί τύποι (σχέσεις A.6-A.7) εμπλέκουν μόνο εμβαδά, δηλαδή αριθμούς ανιχνευόμενων κρούσεων / φωτονίων, που εύκολα υπολογίζονται από το φάσμα.

$$p_{tt} = \frac{Area_{peak}}{Area_{total}} = \frac{N}{Area_{total}} \quad (\text{A.6})$$

και

$$t_{tp} = \frac{Area_{total}}{Area_{peak}} = \frac{Area_{total}}{N} \quad (\text{A.7})$$

όπου

p_{tt} : ο λόγος της απόδοσης αιχμής προς την ολική απόδοση (peak to total ratio)

t_{tp} : ο λόγος της ολικής απόδοσης προς την απόδοση αιχμής (total to peak ratio)

Area_{peak} : η επιφάνεια / εμβαδόν της φωτοκορυφής (*N*)

Area_{total} : η συνολική επιφάνεια / εμβαδόν του φάσματος

Χρειάζεται στο σημείο αυτό να επισημανθεί ότι στις αναλύσεις των δειγμάτων πρέπει οπωσδήποτε να λαμβάνεται υπόψη το υπόστρωμα (background) καθώς συνεισφέρει και αυτό στο συνολικό αριθμό κρούσεων που καταγράφονται. Ως υπόστρωμα ορίζεται ο αριθμός των φωτονίων που κατά τη διάρκεια μιας μέτρησης ανιχνεύονται και καταγράφονται στο φάσμα, χωρίς να προέρχονται από την υπό μελέτη πηγή. Η “ακτινοβολία υποστρώματος” ή “ακτινοβολία υποβάθρου”, όπως συνήθως ονομάζεται, μπορεί να είναι αποτέλεσμα ενός ή περισσοτέρων παραγόντων, όπως είναι η κοσμική ακτινοβολία, η ακτινοβολία του περιβάλλοντος χώρου (οικοδομικά υλικά, συσκευές κ.α.), ακόμα και η ακτινοβολία που προέρχεται από άλλα ραδιενεργά δείγματα που βρίσκονται ενδεχομένως στον ίδιο χώρο με την ανιχνευτική διάταξη. Αυτό που απεικονίζεται λοιπόν σε ένα φάσμα περιλαμβάνει όλες τις κρούσεις, δηλαδή όλα τα φωτόνια που έχουν καταγραφεί ανεξαρτήτως προέλευσης. Στους υπολογισμούς, όμως, πρέπει να χρησιμοποιείται ο «καθαρός» αριθμός κρούσεων που προέρχονται αποκλειστικά από το υλικό-πηγή, ο οποίος προκύπτει από το συνολικό αριθμό κρούσεων με αφαίρεση αυτών που οφείλονται στην ακτινοβολία υποβάθρου.

$$Area = Counts_{spectrum} - Counts_{background} \quad (A.8)$$

όπου

Area : η «καθαρή» επιφάνεια, που αντιστοιχεί στον «καθαρό» αριθμό κρούσεων

Counts_{spectrum} : ο συνολικός αριθμός κρούσεων που καταγράφονται στο φάσμα και

Counts_{background} : ο αριθμός των κρούσεων του υποστρώματος

Η παρατήρηση αυτή αφορά και τις δύο επιφάνειες (φωτοκορυφής και ολική) καθώς και στις δύο πρέπει να αντανακλάται ο «καθαρός» αριθμός φωτονίων, απαλλαγμένος από την ακτινοβολία υποβάθρου. Έτσι, με βάση τη σχέση (A.8) έχουμε

$$Area_{peak} = Counts_{peakspectrum} - Counts_{peakbackground} \quad (A.9)$$

και

$$Area_{total} = Counts_{totalspectrum} - Counts_{totalbackground} \quad (A.10)$$

για την επιφάνεια φωτοκορυφής και την ολική επιφάνεια αντίστοιχα.

Εφόσον, το υπόστρωμα σχηματίζεται –όπως έχει ήδη γίνει κατανοητό- ακόμα κι αν δεν «μετράται» στον ανιχνευτή κάποιο δείγμα, τα μεγέθη $Counts_{totalbackground}$ και $Counts_{peakbackground}$ μπορούν να καταγραφούν από το φάσμα μιας ισόχρονης μέτρησης που έχει γίνει χωρίς να υπάρχει πηγή στον ανιχνευτή (μέτρηση υποστρώματος). Όσον αφορά στα μεγέθη $Counts_{peakspectrum}$ και $Counts_{totalspectrum}$, αυτά εκτιμώνται κατά την ανάλυση του φάσματος της πηγής. Στη συνέχεια, με βάση τις σχέσεις (A.9)-(A.10), υπολογίζεται με «αφαίρεση» των δύο φασμάτων (για την ακρίβεια των εμβαδών που έχουν καταγραφεί στα δύο φάσματα) τα ζητούμενα μεγέθη $Area_{peak}$ και $Area_{total}$. Σημειώνεται ότι -ακόμα κι αν αυτό δεν διατυπώνεται ρητά κάθε φορά- σε όλους ανεξαιρέτως τους πειραματικούς υπολογισμούς της παρούσας εργασίας όπου εμπλέκονται τα μεγέθη $Area_{peak}$ και $Area_{total}$, χρησιμοποιούνται οι «καθαρές» τιμές που έχουν προκύψει μετά την αφαίρεση της ακτινοβολίας υποβάθρου.

A.1.2 Υπολογισμός σφαλμάτων

Οι εκτιμήσεις των τιμών της απόδοσης (φωτοκορυφής και ολικής) που θα γίνουν στα πλαίσια της ΔΔ θα πρέπει να συνοδεύονται και από εκτίμηση της αβεβαιότητας (σφάλμα). Το σφάλμα που συνοδεύει μία τιμή επιτρέπει την αξιολόγησή της και του αντίστοιχου πειράματος. Επιπλέον, ιδιαίτερα σε περιπτώσεις που πρέπει να γίνεται σύγκριση μεγεθών (π.χ. μεταξύ πειραματικών και τιμών προσομοίωσης), η τιμή κάθε μεγέθους πρέπει οπωσδήποτε να συνοδεύεται από το αντίστοιχο σφάλμα, ώστε να μπορεί με τρόπο μεθοδολογικά σωστό να εκτιμηθεί αν τα μεγέθη διαφέρουν σημαντικά ή αν η απόκλισή τους βρίσκεται μέσα στα όρια του σφάλματος, δηλαδή δεν διαφέρουν στατιστικά σημαντικά. Για να περιγραφεί λοιπόν πλήρως ένα μέγεθος, χρειάζεται μαζί με την τιμή που υπολογίζεται να εκτιμάται και το αντίστοιχο σφάλμα.

Στην παράγραφο αυτή κρίθηκε σκόπιμο να παρουσιαστούν οι μαθηματικές σχέσεις που χρησιμοποιούνται για τον υπολογισμό των διαφόρων σφαλμάτων. Ως αφετηρία αξιοποιούνται οι βασικοί τύποι της θεωρίας σφαλμάτων, οι οποίοι θεωρούνται γνωστοί. Η εκκίνηση για να προσδιορισθεί το σφάλμα της πειραματικής τιμής της απόδοσης φωτοκορυφής, γίνεται από τη σχέση (A.4).

$$Eff_{peak} = \frac{N}{(A \times f_\gamma \times t)}$$

Το πρώτο βήμα αφορά τον εντοπισμό των μεγεθών των οποίων η τιμή έχει σφάλμα. Θεωρώντας πως σφάλμα έχουν μόνο οι τιμές των μεγεθών N και A , το σχετικό σφάλμα (γνωστό και ως συντελεστής μεταβολής) της τιμής της απόδοσης αιχμής $\sigma(Eff_{peak})$ θα υπολογίζεται με βάση τον τύπο

$$\sigma(Eff_{peak}) = \sqrt{(\sigma N)^2 + (\sigma A)^2} \quad (A.11)$$

όπου

$\sigma(N) = \frac{\delta N}{N}$ είναι το σχετικό σφάλμα της επιφάνειας της φωτοκορυφής

$\sigma(A) = \frac{\delta A}{A}$ είναι το σχετικό σφάλμα της ενεργότητας.

Υπενθυμίζεται ότι το σχετικό σφάλμα $\sigma(Eff_{peak})$ συνδέεται με το απόλυτο σφάλμα

$\delta(Eff_{peak})$ μέσω της σχέσης

$$\sigma(Eff_{peak}) = \frac{\delta(Eff_{peak})}{Eff_{peak}} \quad (A.12)$$

Με τρόπο αντίστοιχο υπολογίζεται και το σχετικό σφάλμα των λόγων peak to total $\sigma(ptt)$ και total to peak $\sigma(ttp)$, το οποίο θα είναι ίδιο και για τα δύο μεγέθη

$$\sigma(ptt) = \sigma(ttp) = \sqrt{(\sigma(Eff_{peak}))^2 + (\sigma(Eff_{total}))^2} \quad (A.13)$$

όπου

$\sigma(Eff_{total})$ είναι το σχετικό σφάλμα στην τιμή της ολικής απόδοσης.

Σε ορισμένες περιπτώσεις απαιτείται ο υπολογισμός του σφάλματος του μεγέθους $\ln(ttp)$. Σύμφωνα με τη θεωρία σφαλμάτων, το απόλυτο σφάλμα θα δίνεται από τον τύπο

$$\delta(\ln(ttp)) = \frac{\delta(ttp)}{ttp} = \sigma(ttp) \quad (A.14)$$

οπότε το αντίστοιχο σχετικό σφάλμα θα είναι

$$\sigma(\ln(tp)) = \frac{\delta(\ln(tp))}{\ln(tp)} = \frac{\sigma(tp)}{\ln(tp)} \quad (\text{A.15})$$

Για την έκφραση των σφαλμάτων χρησιμοποιείται συχνά και το % σχετικό σφάλμα, το οποίο δεν είναι τίποτα άλλο από το σχετικό σφάλμα πολλαπλασιασμένο επί εκατό. Το % σχετικό σφάλμα συνδέεται με το απόλυτο σφάλμα μέσω του τύπου

$$\% \sigma(x) = 100 \times \sigma(x) = 100 \times \frac{\delta(x)}{x} \quad (\text{A.16})$$

Με βάση τις σχέσεις (A.11-A.16) υπολογίζονται τα σφάλματα των μελετώμενων μεγεθών.

A.2 Στατιστικός έλεγχος Z-score

Προκειμένου να ελεγχθεί αν δύο τιμές διαφέρουν στατιστικά ή να εκτιμηθεί η διασπορά των τιμών σε μια ομάδα μετρήσεων χρησιμοποιείται ο στατιστικός έλεγχος, γνωστός ως “Z-score”. Το Z-score ισούται με την απόλυτη διαφορά των δύο τιμών, διαιρεμένη με τις συνδυασμένες αβεβαιότητες τους [Blaauw et al. (1997)] και δίνεται από τον τύπο

$$Z = \frac{x_1 - x_2}{\sqrt{(u(x_1))^2 + (u(x_2))^2}} \quad (\text{A.17})$$

όπου

x_1, x_2 : οι τιμές του μεγέθους x

$u(x_1), u(x_2)$: οι αβεβαιότητες των τιμών x_1, x_2 αντίστοιχα, σε επίπεδο 1σ .

Στη συνέχεια, η τιμή του Z-score εκτιμάται, με βάση καθορισμένα κριτήρια, ως δείκτης που εκφράζει:

- Ικανοποιητική συμφωνία (για $|Z| \leq 2$)
- Αμφίβολη συμφωνία (για $2 < |Z| \leq 3$)
- Μη ικανοποιητική συμφωνία (για $|Z| > 3$)

Υπογραμμίζεται ότι οι συνδυασμένες αβεβαιότητες περιλαμβάνουν όλες τις πηγές σφάλματος που εντοπίζονται κάθε φορά.

A.3 Ελάχιστα όρια ανίχνευσης

Ο υπολογισμός των Ελαχίστων Ορίων Ανίχνευσης (Minimum Detection Limits – MDL) βασίστηκε στη μαθηματική περιγραφή της ανίχνευσης μιας φωτοκορυφής που κείται πάνω σε υπόστρωμα [Currie (1968)], σύμφωνα με τη σχέση:

$$MDL=3.3 \sigma_B \quad (A.18)$$

όπου

σ_B είναι η τυπική απόκλιση του υποβάθρου.

Η ποσότητα σ_B εκφράζεται ως η τετραγωνική ρίζα του αριθμού των κρούσεων υποβάθρου

$$\sigma_B = (B_m)^{1/2} \quad (A.19)$$

όπου

B_m : ο αριθμός των κρούσεων υποβάθρου

Υπογραμμίζεται ότι η τιμή του ορίου ανίχνευσης ενός στοιχείου διαφέρει από δείγμα σε δείγμα καθώς επηρεάζεται από τη συνολική σύσταση του δείγματος. Επομένως, το όριο ανίχνευσης που υπολογίζεται κάθε φορά αφορά το συγκεκριμένο στοιχείο στο συγκεκριμένο δείγμα.

Επισημαίνεται ακόμα ότι σε περίπτωση που το υπό μελέτη υλικό ακτινοβολείται και μετράται μαζί με το δοχείο-φιαλίδιο στο οποίο περιέχεται (όπως για παράδειγμα συμβαίνει με τα μικρά δείγματα τα οποία τοποθετήθηκαν σε βολίδες πολυαιθυλενίου προκειμένου να ακτινοβοληθούν), οι κρούσεις που καταγράφονται στο φάσμα αντιπροσωπεύουν το συνολικό αριθμό κρούσεων που προέρχονται από το δείγμα, δηλαδή από το υλικό και το φιαλίδιο μαζί. Για τον υπολογισμό των ελαχίστων ορίων χρειάζεται ο αριθμός κρούσεων που προέρχονται αποκλειστικά από το υλικό.

Συνεπώς, αν

B_m : ο αριθμός κρούσεων υποβάθρου που προέρχονται αποκλειστικά από το υλικό

B_b : ο αριθμός κρούσεων υποβάθρου που προέρχονται από το φιαλίδιο

B_t : ο αριθμός κρούσεων υποβάθρου από το δείγμα συνολικά (φιαλίδιο και υλικό)

τότε ισχύει

$$B_m = B_t - B_b \quad (\text{A.20})$$

Ο αριθμός κρούσεων υποβάθρου προκύπτει με αφαίρεση των «καθαρών» κρούσεων (Net counts - N) από τις συνολικές (Gross - G) κρούσεις που καταγράφονται στο φάσμα

$$B = G - N \quad (\text{A.21})$$

Επομένως, θα ισχύει

$$B_b = G_b - N_b \quad \text{για το κενό φιαλίδιο, και}$$

$$B_t = G_t - N_t \quad \text{για το δείγμα συνολικά (φιαλίδιο και υλικό)}$$

ενώ η σχέση A.20 θα παίρνει τη μορφή:

$$B_m = (G_t - N_t) - (G_b - N_b) \quad (\text{A.22})$$

όπου

N_b , N_t : ο αριθμός των «καθαρών» κρούσεων (Net counts) που προέρχονται από το φιαλίδιο και το δείγμα αντίστοιχα

G_b , G_t : ο αριθμός των συνολικών (Gross) κρούσεων από το φιαλίδιο και το δείγμα αντίστοιχα.

Συνδυάζοντας τις σχέσεις A.19 και A.22 προκύπτει:

$$\sigma_B = [(G_t - N_t) - (G_b - N_b)]^{1/2} \quad (\text{A.23})$$

Με αντικατάσταση, τέλος, της τιμής σ_B στη σχέση A.18 υπολογίζονται τα ελάχιστα όρια ανίχνευσης σε μονάδες counts (κρούσεων). Η αναγωγή των αντίστοιχων ορίων σε μονάδες συγκέντρωσης (mg/gr) γίνεται με χρήση των πειραματικά υπολογισμένων τιμών συγκέντρωσης για κάθε στοιχείο, σύμφωνα με τη σχέση:

$$\text{MDL}_\sigma = (\text{MDL}_{\text{counts}} \times C) / N_s \quad (\text{A.24})$$

Όπου

MDL_σ : το ελάχιστο όριο ανίχνευσης του στοιχείου σε μονάδες συγκέντρωσης

$\text{MDL}_{\text{counts}}$: το ελάχιστο όριο ανίχνευσης του στοιχείου σε μονάδες counts

C : η τιμή συγκέντρωσης του στοιχείου στο δείγμα και

N_s : ο αριθμός κρούσεων στην φωτοκορυφή που δίνει η συγκεκριμένη συγκέντρωση στοιχείου στο δείγμα.

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Β

B.1 Πιστοποιητικό ανιχνευτή GEM 80 εργαστηρίου ΙΠΤ-Α

QUALITY ASSURANCE DATA SHEET GEM Series HPGe (High-Purity Germanium) Coaxial Detector System			
Model and Serial Numbers		Important Reference Data	
Detector Model No.	<u>GEM 80</u>	Ship Date	<u>6/4/02</u>
Cryostat Configuration	<u>SH-GEM</u>	Serial No.	<u>42-P 41150A</u>
Dewar Model	<u>DWR-30</u>	When calling Customer Service, always reference this Detector Serial No.	
Preamplifier Model	<u>257P</u>		
Preamplifier S/N	<u>1087</u>		
H.V. Filter Model	<u>138</u>		
H.V. Filter S/N	<u>10735</u>		
Cryogenic Information			
Dewar Capacity	<u>300</u>	Static Holding Time	<u>14 days</u>
		Detector Cool-Down Time	<u>12 hrs</u>
Dimensions		Absorbing Layers	
Crystal Diameter	<u>81.5</u> mm	Aluminium	<u>1.00</u> mm
Crystal Length	<u>57.7</u> mm	Magnesium	<u>—</u> mm
End Cap to Crystal	<u>4</u> mm	Inactive Germanium	<u>700</u> μm
High Voltage Bias			
Recommended Operating Bias, POSITIVE <u>2500</u> V			
Performance Specifications*			
	Warranted	Measured	Amplifier Time Constant
Resolution (FWHM) at 1.33 MeV, ⁶⁰ Co	<u>2.00</u> keV	<u>1.67</u> keV	<u>6</u> μs
Peak-to-Compton Ratio, ⁶⁰ Co	<u>77.1</u>	<u>93.1</u>	<u>6</u> μs
Relative Efficiency at 1.33 MeV, ⁶⁰ Co	<u>80</u> %	<u>85</u> %	<u>6</u> μs
Peak Shape (FWTM/FWHM), ⁶⁰ Co	<u>2.0</u>	<u>1.9</u>	<u>6</u> μs
Peak Shape (FWFM/FWHM), ⁶⁰ Co	<u>—</u>	<u>2.5</u>	<u>6</u> μs
Resolution (FWHM) at 122 keV, ⁵⁷ Co	<u>1.10</u> keV	<u>0.67</u> keV	<u>6</u> μs
Other: _____			
Data Certified by: <u>Caral DeBartter</u>		Date: <u>6/4/02</u>	
*Measured at a nominal rate of 1000 counts/s unless otherwise specified.			

B.2 Πιστοποιητικό ανιχνευτή GEM 90210-P εργαστηρίου RID

QUALITY ASSURANCE DATA SHEET

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

<p>Model and Serial Numbers</p> <p>Detector Model No. <u>GEM-90210-P</u></p> <p>Cryostat Configuration <u>Pop Top</u></p> <p>Dewar Model _____</p> <p>Cryogenic Information</p> <p>Dewar Capacity _____ Static Holding Time _____ Detector Cool-Down Time <u>12 Hrs.</u></p> <p>Dimensions</p> <p>Crystal Diameter <u>75.5</u> mm</p> <p>Crystal Length <u>97.1</u> mm</p> <p>End Cap to Crystal <u>4</u> mm</p> <p>Total Active Volume _____ cc</p> <p>High Voltage Bias</p> <p>Recommended Operating Bias, POSITIVE <u>3500</u> V</p> <p>Performance Specifications*</p> <table border="0" style="width: 100%;"> <thead> <tr> <th></th> <th style="text-align: center;">Warranted</th> <th style="text-align: center;">Measured</th> <th style="text-align: center;">Amplifier Time Constant</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>Resolution (FWHM) at 1.33 MeV, ⁶⁰Co</td> <td style="text-align: center;"><u>2.10</u> keV</td> <td style="text-align: center;"><u>1.82</u> keV</td> <td style="text-align: center;"><u>6</u> μs</td> </tr> <tr> <td>Peak-to-Compton Ratio, ⁶⁰Co</td> <td style="text-align: center;"><u>80:1</u></td> <td style="text-align: center;"><u>97.1</u></td> <td style="text-align: center;"><u>6</u> μs</td> </tr> <tr> <td>Relative Efficiency at 1.33 MeV, ⁶⁰Co</td> <td style="text-align: center;"><u>90</u> %</td> <td style="text-align: center;"><u>96.3</u> %</td> <td style="text-align: center;"><u>6</u> μs</td> </tr> <tr> <td>Peak Shape (FWTM/FWHM), ⁶⁰Co</td> <td style="text-align: center;"><u>2.00</u></td> <td style="text-align: center;"><u>1.84</u></td> <td style="text-align: center;"><u>6</u> μs</td> </tr> <tr> <td>Peak Shape (FWFM/FWHM), ⁶⁰Co</td> <td style="text-align: center;"><u>3.00</u></td> <td style="text-align: center;"><u>2.41</u></td> <td style="text-align: center;"><u>6</u> μs</td> </tr> <tr> <td>Resolution (FWHM) at 122 keV, ⁵⁷Co</td> <td style="text-align: center;"><u>1200</u> eV</td> <td style="text-align: center;"><u>964</u> eV</td> <td></td> </tr> </tbody> </table> <p>Other <u>Capsule NUCA #1854</u> <u>Cryl PH-2 #2332</u></p>		Warranted	Measured	Amplifier Time Constant	Resolution (FWHM) at 1.33 MeV, ⁶⁰ Co	<u>2.10</u> keV	<u>1.82</u> keV	<u>6</u> μs	Peak-to-Compton Ratio, ⁶⁰ Co	<u>80:1</u>	<u>97.1</u>	<u>6</u> μs	Relative Efficiency at 1.33 MeV, ⁶⁰ Co	<u>90</u> %	<u>96.3</u> %	<u>6</u> μs	Peak Shape (FWTM/FWHM), ⁶⁰ Co	<u>2.00</u>	<u>1.84</u>	<u>6</u> μs	Peak Shape (FWFM/FWHM), ⁶⁰ Co	<u>3.00</u>	<u>2.41</u>	<u>6</u> μs	Resolution (FWHM) at 122 keV, ⁵⁷ Co	<u>1200</u> eV	<u>964</u> eV		<p style="text-align: center;">Important Reference Data</p> <p>Ship Date <u>12-11-90</u></p> <p>Serial No. <u>30-T PH0190A</u></p> <p style="font-size: small;">When calling Customer Service, always refer- ence this Detector Serial No.</p>
	Warranted	Measured	Amplifier Time Constant																										
Resolution (FWHM) at 1.33 MeV, ⁶⁰ Co	<u>2.10</u> keV	<u>1.82</u> keV	<u>6</u> μs																										
Peak-to-Compton Ratio, ⁶⁰ Co	<u>80:1</u>	<u>97.1</u>	<u>6</u> μs																										
Relative Efficiency at 1.33 MeV, ⁶⁰ Co	<u>90</u> %	<u>96.3</u> %	<u>6</u> μs																										
Peak Shape (FWTM/FWHM), ⁶⁰ Co	<u>2.00</u>	<u>1.84</u>	<u>6</u> μs																										
Peak Shape (FWFM/FWHM), ⁶⁰ Co	<u>3.00</u>	<u>2.41</u>	<u>6</u> μs																										
Resolution (FWHM) at 122 keV, ⁵⁷ Co	<u>1200</u> eV	<u>964</u> eV																											

Data Certified By J Barrow Date 12-11-90

*Measured at a nominal rate of 1000 counts/s unless otherwise specified.

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Γ

Γ.1 Δομή κώδικα MCNP

Γ.1.1 Αρχείο εισόδου

Στο αρχείο εισόδου, περιέχονται όλες οι παράμετροι που καθορίζουν το προς επίλυση πρόβλημα. Τα δεδομένα εισάγονται από το χρήστη με καθορισμένη σειρά και σε καθορισμένες θέσεις μέσα στο αρχείο, κατηγοριοποιημένα σε ενότητες, κάθε μία από τις οποίες περιλαμβάνει ένα συγκεκριμένο τύπο δεδομένων. Οι ενότητες αυτές, που ονομάζονται κάρτες (cards), δομούνται εσωτερικά με εξίσου αυστηρό τρόπο και χωρίζονται μεταξύ τους με κενές γραμμές. Σημειώνεται ότι κάθε παραβίαση της αυστηρά καθορισμένης δομής του αρχείου εισόδου θα οδηγήσει σε σφάλμα με άμεση συνέπεια την ακύρωση εκτέλεσης της προσομοίωσης. Με τη σειρά που περιέχονται στο αρχείο εισόδου, οι κάρτες που το αποτελούν είναι οι εξής:

- Κάρτα τίτλου του προβλήματος: περιλαμβάνει οποιαδήποτε πληροφορία και σχόλιο επιλέξει ο χρήστης, συνήθως τις γενικές παραμέτρους για το χαρακτηρισμό του προβλήματος. Η χρήση της είναι υποχρεωτική.
- Κάρτα κελιών: σε αυτή την κάρτα περιγράφεται αναλυτικά η γεωμετρία του προβλήματος. Για τον καθορισμό της, χρησιμοποιούνται στοιχειώδεις όγκοι, που ονομάζονται κελιά (cells). Οι γεωμετρικοί αυτοί όγκοι οριοθετούνται από μια σειρά επιφάνειες -καθώς και ενώσεις ή τομές επιφανειών- οι οποίες περιγράφονται σε επόμενη κάρτα. Σε κάθε γεωμετρικό κελί που ορίζεται, αντιστοιχίζεται το υλικό από το οποίο αποτελείται και η πυκνότητά του.
- Κάρτα επιφανειών: ορίζεται το είδος της κάθε επιφάνειας (π.χ. επίπεδη, σφαιρική, κυλινδρική, ελλειψοειδής επιφάνεια), η θέση της στο καρτεσιανό σύστημα συντεταγμένων και οι διαστάσεις της. Διευκρινίζεται ότι, αν και η κάρτα των επιφανειών έπεται αυτής των κελιών -για τον ορισμό των οποίων χρησιμοποιούνται οι επιφάνειες-, ο κώδικας απαιτεί να τηρείται αυτή η, κατά τ' άλλα παράδοξη, σειρά προκειμένου να "διαβάσει" σωστά όλα τα δεδομένα.
- Κάρτες δεδομένων: πρόκειται για μια ακολουθία καρτών, μέσω της οποίας εισάγονται όλα τα δεδομένα που συνθέτουν το πρόβλημα, πλην φυσικά της

γεωμετρίας που έχει ήδη οριστεί. Στις κάρτες αυτές περιέχεται -σε συγκεκριμένη πάντα σειρά- η πληροφορία για το είδος και τις ενέργειες των σωματιδίων που θα προσομοιωθούν (φωτόνια, ηλεκτρόνια, νετρόνια ή συνδυασμός τους), τον τύπο της πηγής (π.χ. σημειακή, επιφανειακή, πηγή όγκου) και τις διαστάσεις της, τη διεύθυνση των σωματιδίων, τα υλικά, τους εικονικούς ανιχνευτές (tallies) που θα χρησιμοποιηθούν. Επιπλέον, ορίζονται από το χρήστη παράμετροι όπως η σημαντικότητα που έχουν τα σωματίδια για τον κώδικα σε κάθε κελί (δηλαδή σε ποια κελιά ο κώδικας θα παρακολουθεί την εξέλιξη των ιστοριών και σε ποια θα τις αγνοεί), ο συνολικός αριθμός των ιστοριών που θα εκτελεστούν και ο μέγιστος χρόνος προσομοίωσης.

Παράδειγμα αρχείου εισόδου του κώδικα MCNP απεικονίζεται στο Σχήμα Γ.1.1.

```

Simulation of a 90% eff. GEM series HPGe coaxial detector DELFT
c
c      90% HPGe detector absolute efficiency calibration study
c      Dead layer 0.7 mm, end cap-to-crystal 4 mm, window Al thickness 1 mm
c      Crystal Diameter 75.5 mm, Crystal Length 97.1 mm
c      Absolute Efficiency for 100 keV
c      Volume Source (cylinder Rin=2.56cm / Rout=3.0cm),thickness=0.44cm
c      at 20 cm from front end / Results/1keV
c
c      Cell cards
1      3      -8.96 -1 23 -17 $ Cu r
2      0              -1 17 -16 $ hole
3      1      -5.323 -2 18 -15 #1 #2 $ acti
4      1      -5.323 -3 18 -14 #1 #2 #3 $ Ge d
5      7      -0.534 -4 18 -13 #1 #2 #3 #4 $ Lith
6      2      -2.699 -5 18 -12 #1 #2 #3 #4 #5 $ Al h
7      0              -6 18 -11 #1 #2 #3 #4 #5 #6 $ Dete
8      2      -2.699 -7 21 -10 #1 #2 #3 #4 #5 #6 #7 #9 #10 #11 $ Al e
9      3      -8.96 -6 19 -18 #1 $ Cu p
10     0              -6 20 -19 #1 $ Void
11     6      -1.18 -6 21 -20 #1 $ Luci
12     4      -11.35 -6 22 -21 #1 $ Pb
13     2      -2.699 -8 23 -21 #1 #12 $ Al e
14     5      -0.001205 -9 8 23 -21 $ Air
15     5      -0.001205 -9 7 21 -10 $ Air
150    5      -0.001205 -101 -25 251 $
151    8      -2.5 -100 -25 26 #150 $ volume
16     5      -0.001205 -9 10 -24 #150 #151 $ Air
17     0              9 :-23 :24 $ Oute

c      Surface cards
c      Cylindrical surfaces
1      cx 0.54
2      cx 3.705
3      cx 3.775
4      cx 3.845
5      cx 3.895
6      cx 4.2
7      cx 4.36
8      cx 4.45
9      cx 30
101    c/z 20 0 2.56
100    c/z 20 0 3.0
c      Planes perpendicular to x-axis
10     px 0
11     px -0.1
12     px -0.5

```

Σχήμα Γ.1.1. Αρχείο εισόδου MCNP


```

13      px -0.503
14      px -0.573
15      px -0.643
16      px -1.753
17      px -10.2
18      px -10.283
19      px -12.283
20      px -14.283
21      px -16.283
22      px -18.283
23      px -19
24      px 100
c  Planes perpendicular to y-axis
25      pz 7.8
251     pz -7.7
26      pz -7.8

mode p
c  material cards
m1  32000.          1  $ Ge
m2  13027.          1  $ Al
m3  29000.          1  $ Cu
m4  82000.          1  $ Pb
m5  7014.           -0.755 $ Air
      8016.           -0.232 18000.          -0.013
m6  1001.           -8.05 $ Lucite
      6012.           -59.98 8016.           -31.96
m7  3007.           -0.975 $ Lithium
      3006.           -0.025
m9  6012.           1  $ C
m8  8016.           -47.8 $ brick -2.5
      14000.          -28 13027.          -10.9 22000.          -0.6
      26000.          -4.2 20000.          -3.6 12000.          -2.6
      19000.          -1.8 11023.          -0.5
imp:p          1 17r          0  $ 1, 17
c  source specification
sdef erg=0.1 pos=20.0 0.0 0.0 rad=d1 cell=151
      ext=d2 axs=0 0 1
si1 0.0 3.201
si2 7.801
c  tallies specification
f8:p 3
c ft8 GEB a b c $ fwhm=a+b*(E+c*E2)1/2
e8  0 1E-5 0.001 3198i 1.6
c  problem cut-offs
nps 80000000
ctme 10

```

Σχήμα Γ.1.1. Αρχείο εισόδου MCNP (συνέχεια)

Γ.1.2 Εικονικοί ανιχνευτές

Οι εικονικοί ανιχνευτές (tallies) είναι ένα εργαλείο που χρησιμοποιεί ο κώδικας για να υπολογίσει τα ζητούμενα από το χρήστη μεγέθη, π.χ. τη ροή των σωματιδίων, την εναποτιθέμενη ενέργεια, την ενεργειακή κατανομή παλμών κ.α. Πρόκειται ουσιαστικά για στοιχειώδεις γεωμετρικούς όγκους που δεν αποτελούν αληθινά κομμάτι της κατασκευής αλλά ορίζονται εικονικά σε θέσεις που επιλέγει ο χρήστης προκειμένου να καταγραφούν στις θέσεις αυτές οι πληροφορίες της προσομοίωσης. Οι εικονικοί ανιχνευτές μπορεί να είναι είτε σημειακοί είτε ογκώδεις, να είναι τμήματα επιφανειών ή κελιών, να περιέχουν ή ακόμα και να ταυτίζονται με ένα ή περισσότερα κελιά του προβλήματος. Ο κώδικας MCNP διαθέτει έξι τύπους εικονικών ανιχνευτών για φωτόνια, έξι τύπους για νετρόνια και τέσσερις τύπους για ηλεκτρόνια. Το πλήθος, το είδος καθώς και οι θέσεις των εικονικών ανιχνευτών που θα χρησιμοποιηθούν σε μια προσομοίωση καθορίζονται από το χρήστη στο αρχείο εισόδου. Επιπλέον, ο χρήστης μπορεί να επιλέξει αν τα αποτελέσματα θα εκφράζονται ως ενεργειακές ή χρονικές κατανομές. Σε κάθε περίπτωση πάντως, τα αποτελέσματα δίνονται από τον κώδικα κανονικοποιημένα ανά αρχικό σωματίδιο που εκπέμπεται από την πηγή.

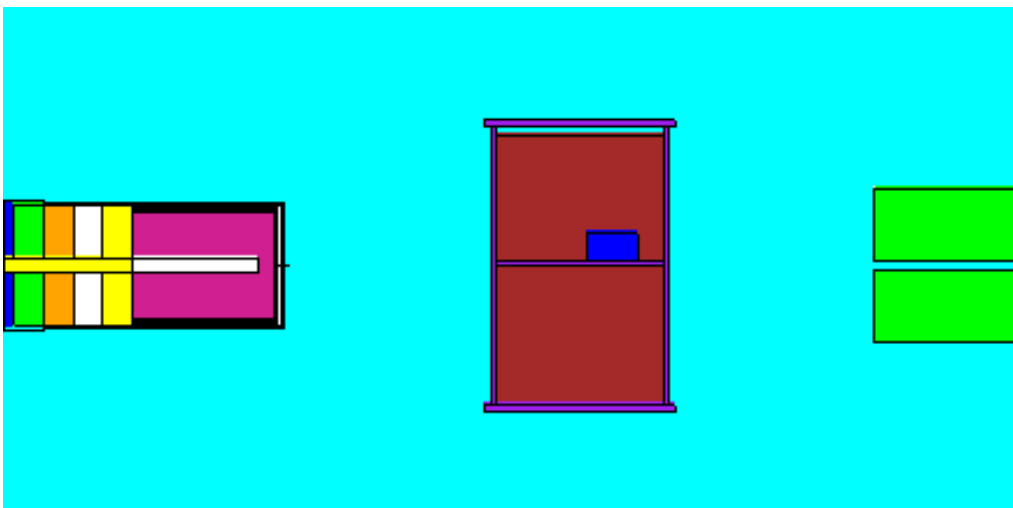
Σημειώνεται ότι στις προσομοιώσεις προβλημάτων νετρονικής ενεργοποίησης και φασματοσκοπίας-γ οι εικονικοί ανιχνευτές που χρησιμοποιούνται συνήθως είναι οι:

- F4 track length estimate tally - υπολογίζει τη μέση ροή σωματιδίων σε ένα κελί (σωματίδια / cm^2). Χρησιμοποιείται για τον προσδιορισμό της νετρονικής ροής σε μια επιφάνεια, αξιολογείται σε προσομοιώσεις πυρηνικών αντιδραστήρων και άλλων πηγών, σε προβλήματα σχεδιασμού θωρακίσεων.
- F8 pulse height tally - υπολογίζει την ενεργειακή κατανομή παλμών που δημιουργούνται σε έναν ανιχνευτή λόγω ραδιενεργής ακτινοβολίας. Καταγράφει την ενέργεια που αποτίθεται σε ένα κελί από κάθε σωματίδιο της πηγής καθώς και τα δευτερεύοντα σωματίδια, αξιολογείται ως επί το πλείστον για τον προσδιορισμό της καμπύλης απόδοσης ανιχνευτών.

Γ.1.3 Γραφικό πρόγραμμα Vised

Το πρόγραμμα Vised (Visual Editor), το οποίο διανέμεται μαζί με τον κώδικα MCNP, είναι ένας κειμενογράφος αρχείων εισόδου που επιτρέπει τη γραφική απεικόνιση του προβλήματος. Με τη χρήση του συγκεκριμένου προγράμματος, ο χρήστης μπορεί να παράγει εικόνες της γεωμετρίας που έχει ορίσει, να δει το εσωτερικό της κατασκευής, να ελέγξει τα υλικά που αντιστοιχούν σε κάθε κελί. Σημειώνεται ότι τυχόν λάθη ή παραλείψεις στην κατασκευή της γεωμετρίας ή στον ορισμό των υλικών επισημαίνονται στο χρήστη μέσω κατάλληλων μηνυμάτων, εμποδίζοντας παράλληλα την εμφάνιση εικόνας στην οθόνη, με στόχο να εντοπιστούν και να διορθωθούν τα λάθη. Εκτός των μεγάλων δυνατοτήτων του σχετικά με την απεικόνιση της κατασκευής, το πρόγραμμα Vised διαθέτει επίσης λειτουργίες "αναπαράστασης" της κίνησης και κατανομής των σωματιδίων έτσι ώστε να μπορεί να ελεγχθεί, για παράδειγμα, η έκταση της πηγής ή η ομοιομορφία στην κατανομή, πράγμα που είναι εξαιρετικά σημαντικό στις περιπτώσεις προσομοίωσης πηγών όγκου. Έτσι, ο χρήστης μπορεί να επιβεβαιώσει ότι ο ορισμός τόσο της γεωμετρίας όσο και της πηγής είναι, όχι μόνο σωστός, αλλά και αυτός που πραγματικά ανταποκρίνεται στο πρόβλημα που επιθυμεί να προσομοιώσει.

Στο Σχήμα Γ.1.2 παρουσιάζεται δισδιάστατη απεικόνιση όπως έχει παραχθεί με χρήση του προγράμματος Vised.



Σχήμα Γ.1.2. Δισδιάστατη απεικόνιση διάταξης για μέτρηση εξασθένισης ακτίνων-γ (ανιχνευτής – δείγμα – σύστημα κατευθυντήρα-πηγής)

Γ.1.4 Αρχείο εξόδου

Μετά την ολοκλήρωση της προσομοίωσης παράγεται από τον κώδικα αρχείο εξόδου, το οποίο περιέχει τις παραμέτρους του προβλήματος όπως αυτές έχουν δοθεί από το χρήστη (γεωμετρία, υλικά κ.α.), στοιχεία που αφορούν τις αλληλεπιδράσεις των σωματιδίων με την ύλη, τις ενεργές διατομές των στοιχείων που έχουν χρησιμοποιηθεί και τα αποτελέσματα των εικονικών ανιχνευτών, κανονικοποιημένα ανά αρχικό σωματίο και συνοδευόμενα από το αντίστοιχο στατιστικό σφάλμα. Στο αρχείο εξόδου του MCNP περιλαμβάνεται επίσης στατιστική ανάλυση των αποτελεσμάτων των ανιχνευτών, η οποία μπορεί να αξιοποιηθεί για την εκτίμηση της απόκρισης του κάθε εικονικού ανιχνευτή. Χρησιμοποιώντας τα δεδομένα που καταγράφονται στο αρχείο εξόδου, υπολογίζονται -με ή χωρίς επεξεργασία ανάλογα με την περίπτωση- τα ζητούμενα μεγέθη (π.χ. αποδόσεις ανιχνευτή) καθώς και οι αντίστοιχες αβεβαιότητες.

Τμήμα τέτοιου αρχείου παρουσιάζεται στο Σχήμα Γ.1.3.

cell	tracks entering	population	collisions	collisions * weight (per history)	number weighted energy	flux weighted energy	average track weight (relative)	average track mfp (cm)	
1	1	43	44	66	1.9537E-06	8.8174E-02	8.8174E-02	1.0000E+00	1.8739E-01
2	2	224	215	0	0.0000E+00	9.8508E-02	9.8508E-02	1.0000E+00	0.0000E+00
3	3	204052	210317	365023	1.0805E-02	9.5440E-02	9.5440E-02	1.0000E+00	3.0800E-01
4	4	281911	270405	115288	3.4128E-03	9.4129E-02	9.4129E-02	1.0000E+00	2.9956E-01
5	5	297194	278171	2352	6.9624E-05	9.4098E-02	9.4098E-02	1.0000E+00	1.4404E+01
6	6	315124	285552	7085	2.0973E-04	9.4061E-02	9.4061E-02	1.0000E+00	2.0672E+00
7	7	375977	334072	0	0.0000E+00	9.4469E-02	9.4469E-02	1.0000E+00	0.0000E+00
8	8	459252	372989	62051	1.8368E-03	9.4279E-02	9.4279E-02	1.0000E+00	2.0714E+00
9	9	4241	4313	7378	2.1840E-04	9.3722E-02	9.3722E-02	1.0000E+00	2.1385E-01
10	10	737	668	0	0.0000E+00	8.1043E-02	8.1043E-02	1.0000E+00	0.0000E+00
11	11	972	878	440	1.3025E-05	8.3952E-02	8.3952E-02	1.0000E+00	4.8826E+00
12	12	1100	1282	2058	6.0921E-05	8.2177E-02	8.2177E-02	1.0000E+00	3.0395E-02
13	13	2105	2009	1408	4.1680E-05	9.3930E-02	9.3930E-02	1.0000E+00	2.0650E+00
14	14	3443026	3442872	1918	5.6777E-05	9.5879E-02	9.5879E-02	1.0000E+00	5.3011E+03
15	15	6915776	6910617	18997	5.6235E-04	9.5854E-02	9.5854E-02	1.0000E+00	5.3006E+03
16	150	13890318	12943967	11542	3.4167E-04	9.5383E-02	9.5383E-02	1.0000E+00	5.2895E+03
17	151	46374781	33817530	15152750	4.4855E-01	9.5696E-02	9.5696E-02	1.0000E+00	2.1358E+00
18	16	31373541	31338087	195929	5.7999E-03	9.5926E-02	9.5926E-02	1.0000E+00	5.3020E+03
total		103940374	90213988	15944285	4.7198E-01				
ltally	8	nps =	33781422						
		tally type	8	pulse height distribution.		units	number		
		tally for	photons						
cell	3								
	energy								
	0.0000E+00	0.00000E+00	0.0000						
	1.0000E-05	1.69590E-04	0.0132						
	1.0000E-03	1.48010E-06	0.1414						
	1.4998E-03	1.12488E-06	0.1622						
	1.9997E-03	1.39130E-06	0.1459						
	2.4995E-03	1.09528E-06	0.1644						
	2.9994E-03	1.00647E-06	0.1715						
	3.4992E-03	1.12488E-06	0.1622						
	3.9991E-03	1.30249E-06	0.1508						
	4.4989E-03	1.00647E-06	0.1715						
	4.9987E-03	1.59851E-06	0.1361						
	5.4986E-03	1.18408E-06	0.1581						
	5.9984E-03	1.15448E-06	0.1601						

Σχήμα Γ.1.3. Τμήμα αρχείου εξόδου

Γ.2 Δομή κώδικα PENELOPE

Γ.2.1 Αρχεία εισόδου

Τα αρχεία εισόδου του Κώδικα PENMAIN, τα οποία παρέχονται από το χρήστη και περιέχουν όλα τα απαραίτητα για την προσομοίωση δεδομένα, είναι τα εξής:

- Αρχείο τύπου .in. Είναι το βασικό αρχείο εισόδου δεδομένων του προβλήματος. Μέσω αυτού περιγράφονται:
 - Η πηγή ακτινοβολίας: το είδος εκπεμπόμενης ακτινοβολίας (φωτόνια, ηλεκτρόνια, ποζιτρόνια), η αρχική ενέργεια των σωματιδίων (δυνατότητα εισόδου είτε μίας ενέργειας είτε ενεργειακού φάσματος), τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά της πηγής καθώς και η απόσταση πηγής-ανιχνευτή
 - Η γεωμετρία του προβλήματος: ορίζονται οι ονομασίες του αρχείου περιγραφής της γεωμετρίας (τύπου .geo) και του αρχείου περιγραφής των υλικών (τύπου .mat). Τα ξεχωριστά αυτά αρχεία (που βρίσκονται εκτός αρχείου εισόδου .in) θα «αναζητήσει» και θα «διαβάσει» ο κώδικας προκειμένου να προμηθευτεί όλα τα δεδομένα που αφορούν το πρόβλημα.
 - Οι παράμετροι της προσομοίωσης: ορίζεται το είδος και ο αριθμός των ανιχνευτών, η ενεργειακή διαμέριση, το κατώφλι ενέργειας. Ορίζεται επίσης από το χρήστη η επιθυμητή διάρκεια της προσομοίωσης και ο επιθυμητός αριθμός γεγονότων που θα προσομοιωθούν (προεπιλέγεται δηλαδή ο χρόνος που θα διαρκέσει η προσομοίωση και ο αριθμός των ιστοριών που θα προσομοιωθούν) καθώς και κάποιες ακόμα παράμετροι που αφορούν τα αρχεία εξόδου της προσομοίωσης (όπως το κάθε πότε θα καταγράφονται τα αποτελέσματα στα αρχεία εξόδου).
- Αρχείο τύπου .geo. Είναι το αρχείο στο οποίο περιγράφεται αναλυτικά η γεωμετρία του προβλήματος. Ορίζονται με λεπτομέρειες όλα τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά, τόσο η δομή (επιφάνειες, όγκοι, ακριβείς διαστάσεις) όσο και τα υλικά από τα οποία αποτελείται κάθε τμήμα της κατασκευής. Για την

περιγραφή της γεωμετρίας, ο χρήστης μπορεί να αξιοποιήσει έτοιμες επιφάνειες και όγκους (δίνονται μαζί με τον κώδικα) ή να εκφράσει με δικές του εξισώσεις το κάθε σώμα.

- Αρχείο τύπου `.mat`. Πρόκειται για το αρχείο ορισμού όλων των υλικών που χρησιμοποιούνται στην περιγραφή του προβλήματος. Περιέχει όλες τις απαραίτητες φυσικές σταθερές που χρειάζεται να ληφθούν υπ'όψιν στη διαδικασία προσομοίωσης των αλληλεπιδράσεων της ακτινοβολίας με τα συγκεκριμένα υλικά. Το αρχείο `.mat` δημιουργείται με την εκτέλεση συγκεκριμένης εντολής και την επιλογή κατάλληλου υλικού από -διαθέσιμο με τον κώδικα- πίνακα υλικών [A.F. Bielajew and F. Salvat et al., 2001]. Σε περίπτωση που επιθυμείται η κατασκευή μίας γεωμετρίας που περιέχει πολλά διαφορετικά υλικά, ο χρήστης έχει τη δυνατότητα να συνθέσει, μέσω κατάλληλων εντολών, ένα συνολικό αρχείο, το οποίο θα περιλαμβάνει όλα τα υλικά, τοποθετημένα με τη σειρά που αναγράφονται και στο αρχείο γεωμετρίας.

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

Παραδείγματα αρχείων τύπου `.in` και τύπου `.geo` παρουσιάζονται στα Σχήματα Γ.2.1 και Γ.2.2, αντίστοιχα.

```

TITLE Ge detector-A1 window-dead layer-well 50mm-Ba-133(276.4kev)source.

>>>>>> Source definition.
SKPAR 2 [Primary particles: 1=electron, 2=photon, 3=positron]
SENERG 27.64e4 [Initial energy (monoenergetic sources only)]
SPOSIT 0 0 29.55 [Coordinates of the source]
SDIREC 0 0 [Beam axis direction angles, in deg]
SAPERT 180 [Beam aperture, in deg]

>>>>>> Material data and simulation parameters.
NMAT 2 [Number of different materials, .1e.10]
SIMPAR 1 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 [M, EABS, C1, C2, WCC, WCR]
SIMPAR 2 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 [M, EABS, C1, C2, WCC, WCR]

The following material data file must be copied from directory
..\mains\pencyl\ to the working directory.
PFNAME germanium.mat [Material definition file, 20 chars]

>>>>>> Geometry definition file.
GEOMFN gewell3.geo [Geometry definition file, 20 chars]

>>>>>> Emerging particles. Energy and angular distributions.
NBE 1e3 1.3e6 100 [E-interval and no. of energy bins]
NBTH 45 [No. of bins for the polar angle THETA]
NBPH 18 [No. of bins for the azimuthal angle PHI]

>>>>>> Energy deposition detectors (up to 5).
ENDDET 1e3 27.642e4 1000 [Energy window and number of channels]
EDBODY 2 [Active body; one line for each body]
EDBODY 3

>>>>>> Job properties
RESUME dump1.dat [Resume from this dump file, 20 chars]
DUMPTO dump1.dat [Generate this dump file, 20 chars]
DUMPP 300 [Dumping period, in sec]

TIME 5.0e15 [Allotted simulation time, in sec]

```

Σχήμα Γ.2.1 Αρχείο εισόδου τύπου .in

Γ.2.2 Εικονικοί ανιχνευτές

Κατά τη διάρκεια της προσομοίωσης ο χρήστης του κώδικα χρειάζεται να καταγράψει διάφορες πληροφορίες, οι οποίες θα επιτρέψουν τελικά και την επίλυση του σχετικού φυσικού προβλήματος. Αυτό επιτυγχάνεται με τη χρήση εικονικών ανιχνευτών. Πρόκειται ουσιαστικά για στοιχειώδεις γεωμετρικούς όγκους που δεν αποτελούν αληθινά κομμάτι της κατασκευής αλλά ορίζονται εικονικά σε θέσεις που επιλέγει ο χρήστης προκειμένου να καταγραφούν στις θέσεις αυτές οι πληροφορίες της προσομοίωσης. Οι εικονικοί ανιχνευτές εκφράζονται ως σειρές εντολών μέσα στον κώδικα χρήστη (π.χ. τον PENMAIN) με τις οποίες καταγράφονται ορισμένοι παράμετροι όταν κάποιο σωματίδιο εισέλθει στο «σώμα» που έχει καθοριστεί από το χρήστη ως ανιχνευτής ή τμήμα ενός ανιχνευτή. Τα «σώματα» που αντιστοιχούν σε ανιχνευτές ή τμήματα ανιχνευτών ορίζονται από το χρήστη στο αρχείο εισόδου (τύπου .in). Ο κώδικας PENELOPE περιλαμβάνει τρία είδη εικονικών ανιχνευτών: τους ανιχνευτές αλληλεπίδρασης, τους ανιχνευτές δόσης και τους ανιχνευτές εναποτιθέμενης ενέργειας.

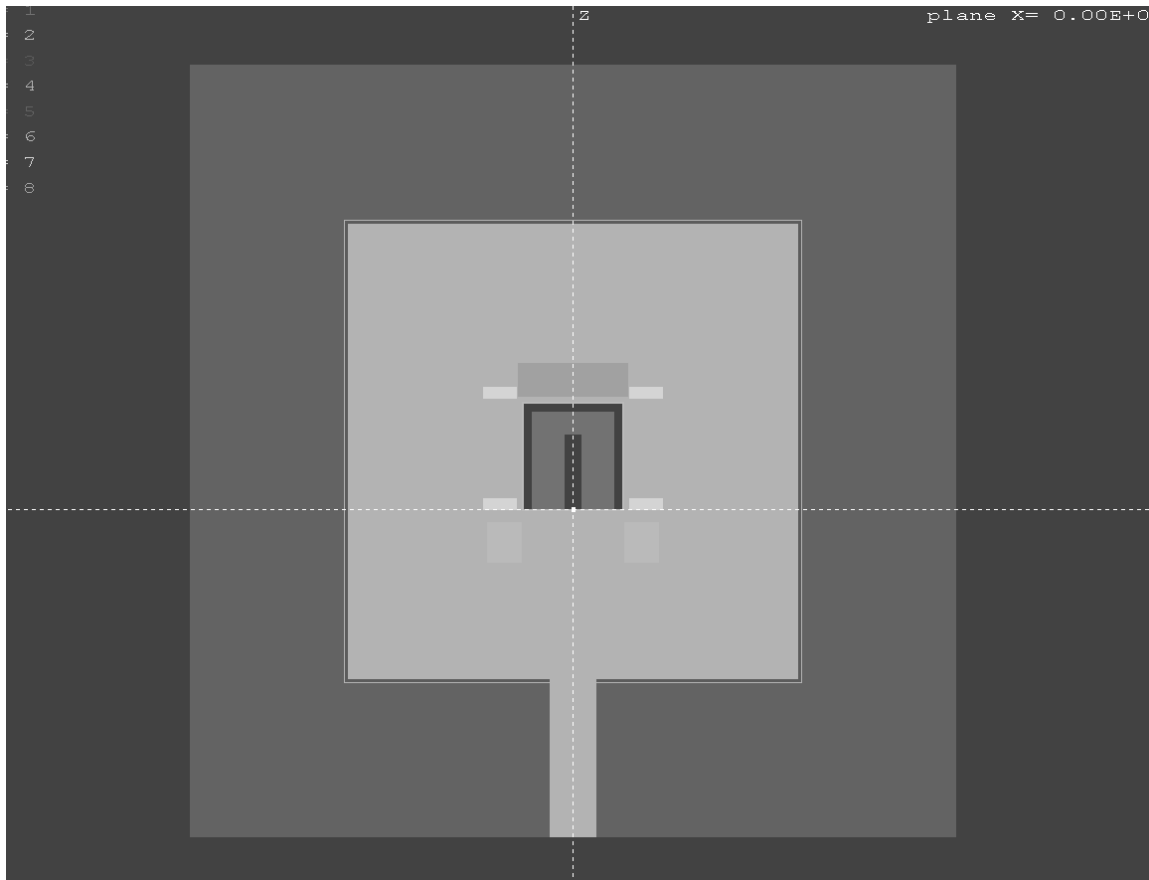
- Ο ανιχνευτής αλληλεπίδρασης (impact detector) καταγράφει την ενέργεια που έχουν τα σωματίδια τη στιγμή που εισέρχονται σε αυτόν. Με την ολοκλήρωση της προσομοίωσης, δημιουργείται ένα αρχείο, το οποίο περιέχει το φάσμα της ενέργειας των σωματιδίων που εισήλθαν στο ορισμένο ως ανιχνευτή αλληλεπίδρασης «σώμα». Τα «σώματα» ή ομάδα «σωμάτων» που αντιστοιχούν σε ανιχνευτή αλληλεπίδρασης, τα οποία ορίζονται από το χρήστη στο αρχείο εισόδου, αποτελούν τμήμα της κατασκευής και πρέπει να περιλαμβάνονται στο αρχείο που περιγράφει τη γεωμετρία (τύπου .geo).
- Ο ανιχνευτής δόσης (dose enclosure) καταγράφει την κατανομή της δόσης σε κάποιο τμήμα της κατασκευής. Σε αντίθεση με τους άλλους δύο ανιχνευτές (αλληλεπίδρασης και εναποτιθέμενης ενέργειας), ο συγκεκριμένος ανιχνευτής δεν αποτελεί τμήμα της κατασκευής και γι'αυτό δεν περιέχεται στο αρχείο γεωμετρίας τύπου .geo. Με την έλευση ενός σωματιδίου στον ορισμένο ως ανιχνευτή δόσης χώρο, καταγράφεται η επιπλέον δόση στη θέση που βρίσκεται το σωματίδιο.
- Ο ανιχνευτής εναποτιθέμενης ενέργειας (Energy deposition detector) καταγράφει –όπως υποδηλώνει και το όνομά του- την ενέργεια που εναποθέτουν

τα εισερχόμενα σε αυτόν σωματίδια. Αφού ολοκληρωθεί η διαδικασία της προσομοίωσης, δημιουργείται ένα επιπλέον αρχείο εξόδου, το οποίο περιέχει το φάσμα της ενέργειας που εναποτέθηκε από τα σωματίδια στον ανιχνευτή. Όμοια με την περίπτωση του ανιχνευτή αλληλεπίδρασης, το «σώμα» ή η ομάδα «σωμάτων» που ορίζεται στο αρχείο εισόδου ως ανιχνευτής εναποτιθέμενης ενέργειας αποτελεί τμήμα της κατασκευής και πρέπει να περιλαμβάνεται και στο αρχείο περιγραφής της γεωμετρίας της (τύπου .geo). Ο χρήστης μπορεί να ορίσει στο αρχείο εισόδου έως και 5 διαφορετικούς ανιχνευτές εναποτιθέμενης ενέργειας, για κάθε έναν από τους οποίους δημιουργείται αντίστοιχο αρχείο εξόδου.

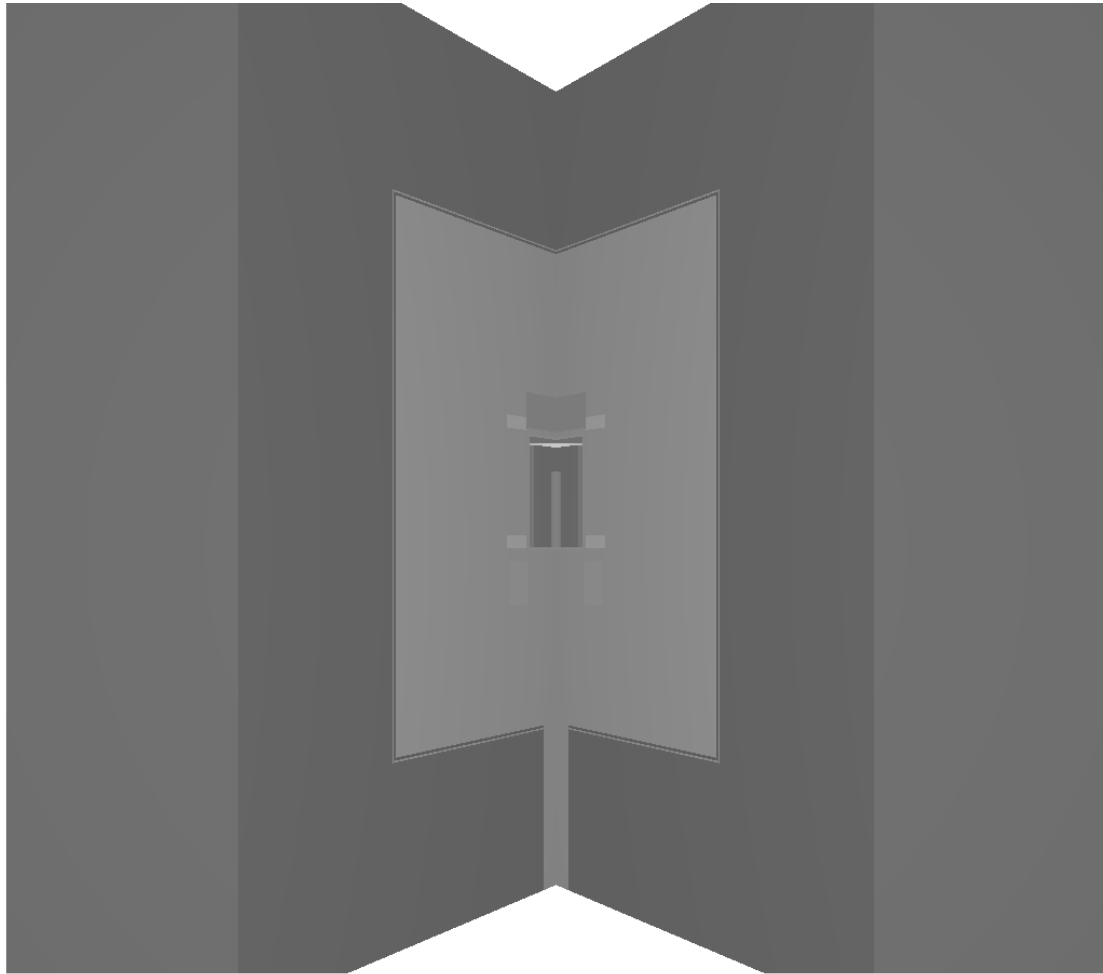
Γ.2.3 Γραφικά προγράμματα *gview*

Στο πακέτο του κώδικα PENELOPE περιλαμβάνονται και τα γραφικά προγράμματα *gview2d* και *gview3d*, τα οποία χρησιμεύουν στην απεικόνιση της κατασκευής, που περιγράφεται στα αρχεία τύπου .geo, σε διδιάστατη (2d) και τρισδιάστατη (3d) μορφή αντίστοιχα. Τα προγράμματα *gview2d* και *gview3d*, τα οποία είναι βοηθητικού χαρακτήρα και τρέχουν μόνο στο λειτουργικό περιβάλλον Windows, παρέχουν πολλές δυνατότητες σχετικά με την απεικόνιση της κατασκευής. Σημειώνεται ότι τυχόν λάθη ή παραλείψεις στην κατασκευή της γεωμετρίας επισημαίνονται στο χρήστη μέσω κατάλληλων μηνυμάτων, εμποδίζοντας παράλληλα την εμφάνιση εικόνας στην οθόνη, με στόχο να εντοπιστούν τα σημεία που χρήζουν διόρθωσης. Τα συγκεκριμένα προγράμματα αποτελούν σημαντικότερα εργαλεία καθώς δίνουν στο χρήστη τη δυνατότητα να ελέγξει όλες τις πλευρές και λεπτομέρειες της κατασκευής, ακόμα και το εσωτερικό της, πριν τρέξει τον κώδικα, επιβεβαιώνοντας ότι είναι όντως η γεωμετρία που επιθυμεί και αποφεύγοντας προσομοιώσεις με γεωμετρίες ελλειπείς ή λανθασμένες.

Στα Σχήματα Γ.2.3 και Γ.2.4 παρουσιάζονται παραδείγματα δισδιάστατης και τρισδιάστατης απεικόνισης, όπως έχουν παραχθεί με χρήση των γραφικών προγραμμάτων *gview2d* και *gview3d*, αντίστοιχα.



Σχήμα Γ.2.3 Δισδιάστατη απεικόνιση διάταξης ανιχνευτή - πηγής μέσα σε θωράκιση



Σχήμα Γ.2.4 Τρισδιάστατη απεικόνιση (τομή) ανιχνευτικής διάταξης μέσα σε θωράκιση

Γ.2.4 Αρχεία εξόδου

Μετά την ολοκλήρωση της προσομοίωσης, δημιουργείται σειρά αρχείων εξόδου, τα οποία περιέχουν όλα τα αποτελέσματα που προκύπτουν. Τα αρχεία αυτά καθορίζονται από τον κυρίως κώδικα (PENSLAB, PENCYL, PENMAIN) αλλά και από τις παραμέτρους που έχουν επιλεγεί από τον χρήστη στην έναρξη της διαδικασίας προσομοίωσης. Το πλήθος και το περιεχόμενο των αρχείων εξόδου ποικίλει από κώδικα σε κώδικα αλλά και από προσομοίωση σε προσομοίωση καθώς οι πληροφορίες που προκύπτουν ως αποτελέσματα εξαρτώνται από τα στοιχεία που θα οριστούν ως ζητούμενα στα αρχεία εισόδου. Χρησιμοποιώντας τα αποτελέσματα τα οποία καταγράφονται στο αρχείο εξόδου, υπολογίζονται μέσω συγκεκριμένης διαδικασίας τα ζητούμενα μεγέθη (π.χ. αποδόσεις ανιχνευτή) καθώς και οι αντίστοιχες αβεβαιότητες.

Τμήματα αρχείων εξόδου που αφορούν τον κυρίως κώδικα PENMAIN παρουσιάζονται στα Σχήματα Γ.2.5 και Γ.2.6.

```

*****
** Program PENMAIN. Input data file. **
*****

Date and time: 28th Jan 2008. 11:17:10

Ge detector-Al window-dead layer-well 50mm-Co-60(1332.5keV)source.

-----
>>>>> Source description.
Primary particles: photons
Initial energy = 1.332500E+06 eV
Coordinates of centre:   SX0 = 0.000000E+00 cm
                        SY0 = 0.000000E+00 cm
                        SZ0 = 2.955000E+01 cm
Beam direction angles:  THETA = 0.000000E+00 deg
                        PHI   = 0.000000E+00 deg
Beam aperture:         ALPHA = 1.800000E+02 deg

-----
>>>>> Material data and simulation parameters.
Number of different materials = 2

**** 1st material
Electron absorption energy = 1.000000E+05 eV
Photon absorption energy = 1.000000E+03 eV
Positron absorption energy = 1.000000E+05 eV
Electron-positron simulation parameters:
  C1 = 1.000000E-01,   C2 = 1.000000E-01
WCC = 1.000000E+04 eV, WCR = 1.000000E+03 eV

**** 2nd material
Electron absorption energy = 1.000000E+05 eV
Photon absorption energy = 1.000000E+03 eV
Positron absorption energy = 1.000000E+05 eV
Electron-positron simulation parameters:
  C1 = 1.000000E-01,   C2 = 1.000000E-01
WCC = 1.000000E+04 eV, WCR = 1.000000E+03 eV

PENELOPE's material definition file: germanium.mat

>>> SUMGA. Gauss adaptive-bipartition quadrature.
XL = 2.154434690032E+01, XU = 2.371373705662E+01, TOL = 1.0E-10
NCALLS = 11100, SUMGA = 3.7002954336658E+00, ERR = 4.9E-04
Number of open subintervals = 256
WARNING: the required accuracy has not been attained.

```

Σχήμα Γ.2.5 Τμήμα αρχείου penmain.dat

```

# Results from PENMAIN. Output from energy-deposition detector # 1
# WARNING: May be strongly biased if interaction forcing is used!
# 1st column: deposited energy (eV).
# 2nd column: probability density (1/(eV*particle)).
# 3rd column: statistical uncertainty (3 sigma).

1.666300E+03 8.254539E-10 5.279618E-11
2.998900E+03 8.832357E-10 5.461279E-11
4.331500E+03 8.727299E-10 5.428702E-11
5.664100E+03 8.772324E-10 5.442688E-11
6.996701E+03 8.933663E-10 5.492510E-11
8.329301E+03 8.779828E-10 5.445015E-11
9.661901E+03 1.026189E-09 5.886671E-11
1.099450E+04 9.522737E-10 5.670703E-11
1.232710E+04 9.620290E-10 5.699676E-11
1.365970E+04 9.620290E-10 5.699676E-11
1.499230E+04 9.380158E-10 5.628091E-11
1.632490E+04 9.417679E-10 5.639336E-11
1.765750E+04 9.368902E-10 5.624714E-11
1.899010E+04 9.616538E-10 5.698564E-11
2.032270E+04 9.376406E-10 5.626966E-11
2.165530E+04 9.796637E-10 5.751678E-11
2.298790E+04 9.215067E-10 5.578344E-11
2.432050E+04 9.537745E-10 5.675170E-11
2.565310E+04 9.650307E-10 5.708561E-11
2.698570E+04 9.391414E-10 5.631467E-11
2.831830E+04 9.560257E-10 5.681864E-11
2.965090E+04 9.477712E-10 5.657282E-11
3.098350E+04 9.522737E-10 5.670703E-11
3.231610E+04 9.380158E-10 5.628091E-11
3.364870E+04 9.864174E-10 5.771470E-11
3.498130E+04 9.849166E-10 5.767077E-11
3.631390E+04 9.526489E-10 5.671821E-11
3.764650E+04 9.691579E-10 5.720755E-11
3.897910E+04 9.680323E-10 5.717432E-11
4.031170E+04 9.376406E-10 5.626966E-11
4.164430E+04 9.631546E-10 5.703009E-11
4.297690E+04 9.695331E-10 5.721862E-11
4.430950E+04 1.016059E-09 5.857542E-11
4.564210E+04 9.890439E-10 5.779148E-11
4.697470E+04 9.792885E-10 5.750576E-11
4.830730E+04 9.672819E-10 5.715215E-11
4.963990E+04 9.706588E-10 5.725183E-11
5.097250E+04 9.762869E-10 5.741756E-11
5.230511E+04 9.699084E-10 5.722969E-11
5.363771E+04 9.980488E-10 5.805397E-11
5.497031E+04 9.766621E-10 5.742860E-11
5.630291E+04 9.886687E-10 5.778052E-11
5.763551E+04 9.665315E-10 5.712998E-11
5.896811E+04 9.882935E-10 5.776955E-11
6.030071E+04 1.008179E-09 5.834786E-11

```

Σχήμα Γ.2.6 Τμήμα αρχείου pm_spc_enddet_1.dat για ενέργεια 1332 keV

Γ.3 Μελέτη αξιοπιστίας και σύγκλισης κωδίκων Monte Carlo

Οι κώδικες προσομοίωσης αποτελούν, όπως έχει ήδη φανεί, ένα σημαντικότατο εργαλείο που παρέχει στο χρήστη μεγάλη ευελιξία και τεράστιες δυνατότητες για το χειρισμό σύνθετων και πολύπλοκων προβλημάτων. Επιπροσθέτως, με τη χρήση τους εξοικονομείται πολύτιμος χρόνος και πόροι καθώς δεν απαιτείται η χρονοβόρα και συχνά δαπανηρή διεξαγωγή πειραμάτων. Απαραίτητη, ωστόσο, προϋπόθεση για την αξιοποίηση ενός εργαλείου όπως είναι οι κώδικες είναι η επιβεβαίωση της ορθότητας των αποτελεσμάτων που αυτοί παρέχουν. Η συνηθέστερη μέθοδος ελέγχου της αξιοπιστίας ενός κώδικα είναι η σύγκριση των αποτελεσμάτων του με πειραματικά δεδομένα, για δεδομένο πρόβλημα στο οποίο υπάρχουν διαθέσιμα πειραματικά στοιχεία. Εφόσον αποδειχθεί στατιστική συμφωνία μεταξύ των αποτελεσμάτων, εκτιμάται ότι ο κώδικας ανταποκρίνεται και μπορεί στη συνέχεια να χρησιμοποιηθεί χωρίς ενδοιασμούς και αμφιβολίες για την επίλυση άγνωστων προβλημάτων. Ποικίλες μελέτες έχουν δημοσιευτεί σχετικά με τη σύγκριση των υπολογισμών προσομοιώσεων με πειραματικά δεδομένα, πολλές από τις οποίες αφορούν περιπτώσεις υπολογισμού της απόδοσης ανιχνευτών [Rodenas et al. (2000), Tzika et al. (2010)].

Μια ακόμη πλευρά που συμπληρώνει την εικόνα για την απόδοση ενός κώδικα είναι η σύγκρισή του με άλλους κώδικες προσομοίωσης. Στα πλαίσια εκπόνησης της ΔΔ, δόθηκε η δυνατότητα συμμετοχής σε μια άσκηση διαβαθμονόμησης (Intercomparison) κωδίκων προσομοίωσης. Αντικείμενο της συγκεκριμένης άσκησης ήταν η σύγκριση των υπολογισμών που θα παρείχαν οι διάφοροι κώδικες για δεδομένο πρόβλημα με στόχο την εκτίμηση της σύγκλισής τους στην ίδια τιμή. Το πρόβλημα αφορούσε την προσομοίωση μιας σειράς ανιχνευτών Γερμανίου και τον προσδιορισμό της απόδοσής τους για μια σειρά πηγών (σημειακές και πηγές όγκου). Το εργαστήριο του ερευνητικού αντιδραστήρα του ΠΠΤ-Α συμμετείχε στην άσκηση με δύο κώδικες (MCNP5 & PENELOPE 2008). Η στατιστική ανάλυση των αποτελεσμάτων της μελέτης έδειξε συμφωνία και σύγκλιση των υπολογισμών γύρω από την ίδια τιμή, επιβεβαιώνοντας την αξιοπιστία των κωδίκων που χρησιμοποιήθηκαν [Vidmar et al. (2010)]

ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Δ

Δ.1 Πιστοποιητικό σύστασης υλικού SRM 1258-I



National Institute of Standards & Technology

Certificate of Analysis

Standard Reference Material® 1258-I

Aluminum Alloy 6011 (Modified)

(In cooperation with ASTM International)

This Standard Reference Material (SRM) is intended primarily for use in optical emission and X-ray spectrometric methods of analysis. A unit of SRM 1258-I consists of wrought and annealed disks, 35 mm (1 3/8 in) diameter and 19 mm (3/4 in) thick.

The certified values for six elements in SRM 1258-I are listed in Table 1. Reference values for three elements are listed in Table 2. Information values for two elements are listed in Table 3. For all elements, values are reported as mass fractions [1]. Value assignment categories are based on the definition of terms and modes used at NIST for chemical reference materials [2] and uncertainties are assessed according to the ISO/NIST Guides [3]. Table 4 summarizes the analytical methods used by NIST and cooperating laboratories for characterization of the composition of this SRM.

Certified Values and Uncertainties: A NIST-certified value is a value for which NIST has the highest confidence in its accuracy, in that all known or suspected sources of bias have been investigated or accounted for by NIST. The certified value listed for a constituent is the present best estimate of the true value based on the results of analyses performed at NIST and cooperating laboratories using test methods listed in Table 4. The uncertainty listed with each value is an expanded uncertainty calculated by combining a between-method variance [4] with a pooled, within-method variance following the ISO/NIST Guides [3]. The expanded uncertainty is expressed at the 95 % confidence level, using a coverage factor, k , calculated on the basis of the estimated degrees of freedom in the experimental results.

Reference Values: The reference values for the constituents of SRM 1258-I are given in Table 2. Reference values are non-certified values that are the present best estimates of the true values. However, the values do not meet the NIST criteria for certification and are provided with associated uncertainties that are based on judgment and represent an evaluation of the combined effects of method imprecision, possible systematic errors among methods, and material variability (No attempt was made to derive exact statistical measures of imprecision.)

Information Values: The information values for the constituents of SRM 1258-I are given in Table 3. These are noncertified values with no uncertainty reported because there is insufficient information with which to make the appropriate statistical assessments.

Expiration of Certification: The certification of this SRM is valid until **01 August 2024**, within the uncertainty specified, provided the SRM is handled and stored in accordance with the instructions given in this certificate (see "Instructions for Use"). However, the certification will be nullified if the SRM is damaged or contaminated.

Stability: This material is considered to be stable during the period of certification. NIST will monitor this material and will report any significant changes in certification to the purchaser. Registration (see attached sheet) will facilitate notification.

Willie E. May, Chief
Analytical Chemistry Division

Gaithersburg, MD 20899
Certificate Revision Date: 04 June 2004

Robert L. Watters, Jr., Acting Chief
Measurement Services Division

SRM 1258-I

Page 1 of 4

The overall coordination of technical measurements leading to certification was performed under the direction of J.I. Schultz, Research Associate, ASTM/NIST Research Associate Program.

Additional technical and analytical support was provided by J.R. Sieber of the NIST Analytical Chemistry Division.

The technical and support aspects involved in the preparation, certification, and issuance of this SRM were coordinated through the NIST Standard Reference Materials Program by B.S. MacDonald of the NIST Measurement Services Division.

INSTRUCTIONS FOR USE

The test surface is the side opposite to the labeled surface, which has the SRM number. The entire thickness of the unit is certified. Each packaged disk has been prepared by finishing the test surface using a milling machine. The user must determine the correct surface preparation procedure for each analytical technique. The user is cautioned to use care when either resurfacing the disk or performing additional polishing as these processes may contaminate the surface. The material should be stored in its original container in a cool, dry location.

Table 1. Certified Values for SRM 1258-I

Constituent	Mass Fraction (%)
Si	0.80 ± 0.04
Fe	0.080 ± 0.003
Cu	0.848 ± 0.010
Mn	0.481 ± 0.010
Mg	1.00 ± 0.03
Zn	1.03 ± 0.02

Table 2. Reference Values for SRM 1258-I

Constituent	Mass Fraction (%)
Cr	0.0011 ± 0.0002
Ni	0.0006 ± 0.0003
Ti	0.040 ± 0.003

Table 3. Information Values for SRM 1258-I

Constituent	Mass Fraction (%)
Be	<0.0001
Ga	0.011

Table 4. Methods of Analysis for SRM 1258-1

Element	Methods
Si	Atomic absorption spectrophotometry X-ray fluorescence spectrometry
Fe	Atomic absorption spectrophotometry X-ray fluorescence spectrometry 1,10 Phenanthroline spectrophotometric method Bathophenanthroline disulfonic acid and solution spectrometry
Cu	Atomic absorption spectrophotometry X-ray fluorescence spectrometry Oxalyl dihydroxide spectrophotometric method Zinc dibenzylthiocarbamate and solution spectrometry
Mn	Atomic absorption spectrophotometry X-ray fluorescence spectrometry Periodate spectrophotometric method Ammonium peroxydisulfate oxidation and solution spectrometry
Cr	Atomic absorption spectrophotometry X-ray fluorescence spectrometry Diphenylcarbazide spectrophotometric method
Zn	Atomic absorption spectrophotometry X-ray fluorescence spectrometry EDTA titration
Mg	Atomic absorption spectrophotometry X-ray fluorescence spectrometry CDTA titration EDTA titration
Be	Fluorimetric with morin after extraction with acetylacetone-chloroform
Ti	Atomic absorption spectrophotometry X-ray fluorescence spectrometry
Ni	Atomic absorption spectrophotometry X-ray fluorescence spectrometry 2,3 Quinoxaline dithiol and solution spectrometry

NOTICE AND WARNING TO USERS

CAUTION: Accurate determinations of copper (Cu), magnesium (Mg), and zinc (Zn) in the 6000 and 7000 aluminum-base alloys by standard ASTM optical emission test methods are extremely sensitive to the metallurgical condition of the samples. Significantly large differences can be expected when wrought samples are compared to cast samples; however, small differences also may occur among wrought samples depending on the temperature and amount of working, and annealing and/or tempering operations. Differences among cast samples may occur depending on the rate and type of solidification from the molten metal. This SRM is in the worked and fully annealed condition and is directly applicable to the analyses of samples in this same metallurgical condition.

X-ray fluorescence methods for the 6000 and 7000 aluminum-base alloys are normally not sensitive to the metallurgical condition of the samples.

PLANNING, PREPARATION, TESTING, AND ANALYSIS¹

SRM 1258-1 was prepared under contract with NIST by the Aluminum Company of America, Alcoa Center, PA., coordinated by D.J. Levin. The material was melted to composition and continuously cast into three ingots, 13.7 cm (5 3/8 in) in diameter and about 330 cm (130 in) long. After cropping the ends and obtaining slices for homogeneity testing, each ingot was cut into four cylinders, 61.0 cm (24 in) long; these were scalped to 11.6 cm (4 9/16 in) in diameter. The cylinders were center-bored (3.7 cm diameter) and then sawed lengthwise into three pieces (one half-round and two quarter-round sections.)

Selected half-round sections were upset-forged, forge-rolled, and annealed at the Naval Research Laboratory, Washington, DC by T. Kissilnitkie. The material was processed to finished specimens at NIST.

Homogeneity testing was performed on both cast and finished specimens using optical emission spectrometry at the Aluminum Company of America, Alcoa Center, PA.; D.J. Levin at the Reynolds Research Laboratory, Richmond, VA.; N. Christ and J.A. Norris at NIST.

Specimens representative of the accepted lot of material were chipped and blended to form a composite sample and portions were distributed for chemical analyses leading to certification.

Cooperative analyses for certification were performed in the following laboratories:

R.C. Obbink; Aluminum Company of America, Alcoa Technical Center; Alcoa Center, PA
L. Girolami; Aluminum Company of Canada, Ltd.; Arvida, Quebec, Canada
H.J. Seim, R.C. Calkins, G.M. Calkins, R.C. Kinne, J.R. Skarset; Kaiser Aluminum and Chemical Corporation; Pleasanton, CA
M.E. Reed; Kaiser Aluminum and Chemical Corporation; Ravenswood, WV
R.W. Burke, T.J. Brady, E.R. Deardorff, B.I. Diamondstone, M.S. Epstein, S. Hanamura, J.D. Messman, T.C. Rains, S.A. Wicks; National Institute of Standards and Technology; Gaithersburg, MD
W.E. Pilgrim; Reynolds Aluminum, Reynolds Metals Company; Richmond, VA

REFERENCES

- [1] Taylor, B.N.; *Guide for the Use of the International System of Units (SI)*; NIST Spec. Pub. 811, U.S. Government Printing Office: Washington, DC (1995).
- [2] May, W.E.; Parris, R.M.; Beck II, C.M.; Fassett, J.D.; Greenberg, R.R.; Guenther, F.R.; Kramer, G.W.; Wise, S.A.; Gills, T.E.; Colbert, J.C.; Gettings, R.J.; MacDonald, B.S.; *Definitions of Terms and Modes Used at NIST for Value-Assignment of Reference Materials for Chemical Measurements*; NIST Spec. Pub. 260-136, U.S. Government Printing Office: Washington, DC, p. 16 (2000).
- [3] ISO; *Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement*; ISBN 92-67-10188-9, 1st ed. International Organization for Standardization, Geneva, Switzerland (1993); see also Taylor, B.N.; Kuyatt, C.E.; *Guidelines for Evaluating and Expressing the Uncertainty of NIST Measurement Results*; NIST Technical Note 1297, U.S. Government Printing Office: Washington, DC (1994); available at <http://physics.nist.gov/Pubs/>.
- [4] Hahn, G.J.; Meeker, W.Q.; *Statistical Intervals: A Guide for Practitioners*; John Wiley & Sons, Inc.: New York (1991).

Users of this SRM should ensure that the certificate in their possession is current. This can be accomplished by contacting the SRM Program at: telephone (301) 975-6776; fax (301) 926-4751, email srminfo@nist.gov; or via the Internet at <http://www.nist.gov/srm>.

¹Certain commercial equipment, instrumentation, or materials are identified in this certificate to specify adequately the experimental procedure. Such identification does not imply recommendation or endorsement by the NIST, nor does it imply that the materials or equipment identified are necessarily the best available for the purpose.

Δ.2 Πιστοποιητικό σύστασης υλικού χαλαζία (Quartz)

Silicon dioxide

purum p.a., powder

▼ DOWNLOAD MSDS (PDF)

Synonym: Cristobalite, Quartz Sand, Silica

CAS Number: 80878-88-0 Linear Formula: SiO₂ Molecular Weight: 80.09 EC Number: 233-873-4

MDL number: MFCD00011232 PubChem Substance ID: 24687632

SiO₂

Purchase ▼

Safety & Documentation

Protocols & References ↗

Ratings & Reviews

Properties

Related Categories	Adsorbents, Filter Aids and Drying Agents, Essential Chemicals, Other Drying Agents, Research Essentials
grade	purum p.a.
form	powder
loss	±0.3% loss on ignition, 900 °C
refractive index	n _{20/D} 1.544(lit.)
particle size	>230 mesh
mp	1610 °C(lit.)
density	2.6 g/mL at 25 °C(lit.)
anion traces	chloride (Cl ⁻): ≤50 mg/kg
cation traces	Ca: ≤200 mg/kg
	Cd: ≤50 mg/kg
	Co: ≤50 mg/kg
	Cu: ≤50 mg/kg
	Fe: ≤200 mg/kg
	K: ≤500 mg/kg
	Na: ≤100 mg/kg
	Ni: ≤50 mg/kg
	Pb: ≤50 mg/kg
	Zn: ≤50 mg/kg

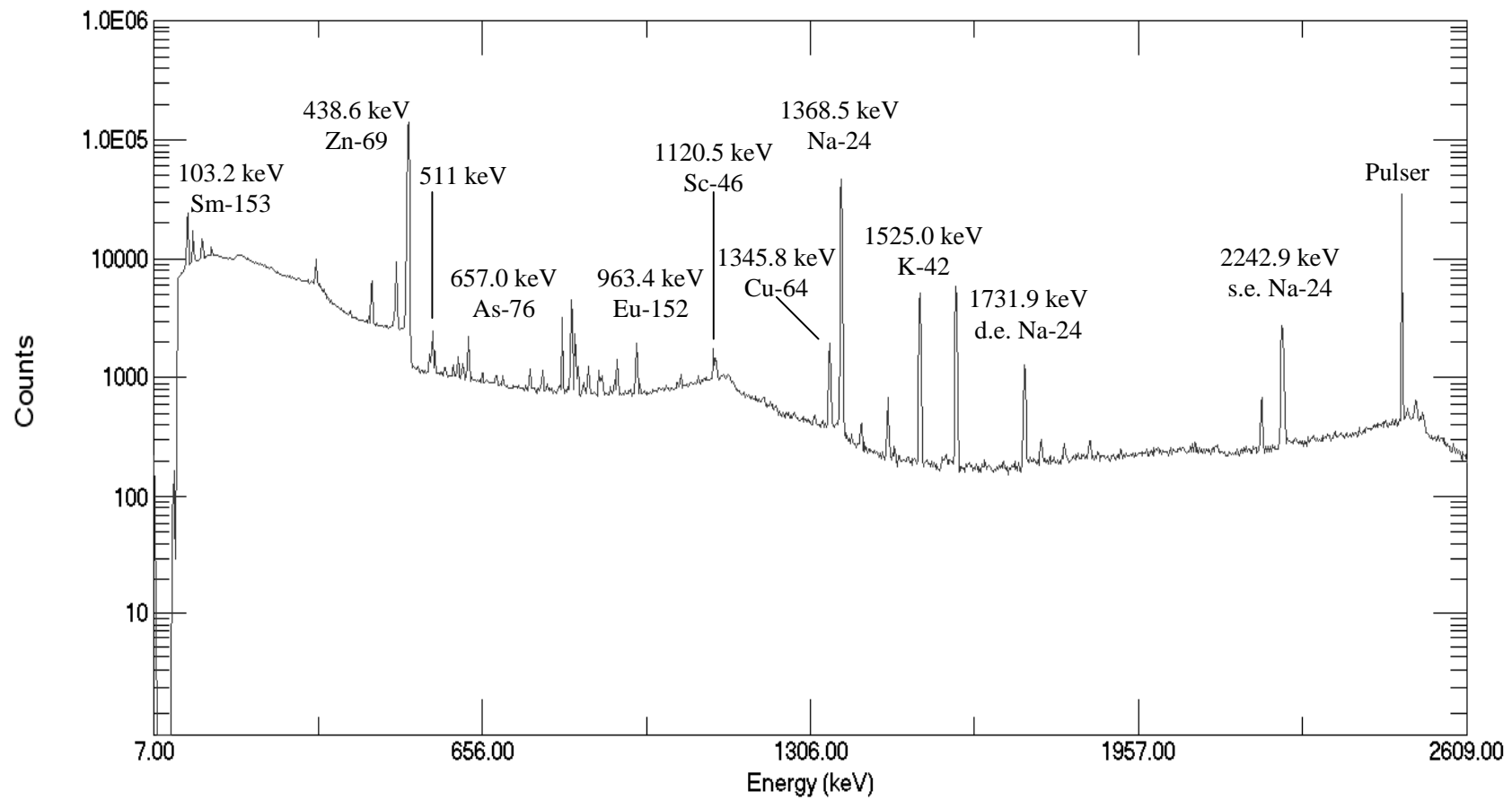
Price and Availability

SKU/Pack Size	Availability	Price (EUR)	Quantity
83340-1KG	Estimated Delivery 10.06.2012 - FROM	51.90	0 <input type="text" value="0"/> <input type="text" value="1"/>
83340-5KG	Estimated Delivery 10.06.2012 - FROM	204.50	0 <input type="text" value="0"/> <input type="text" value="1"/>

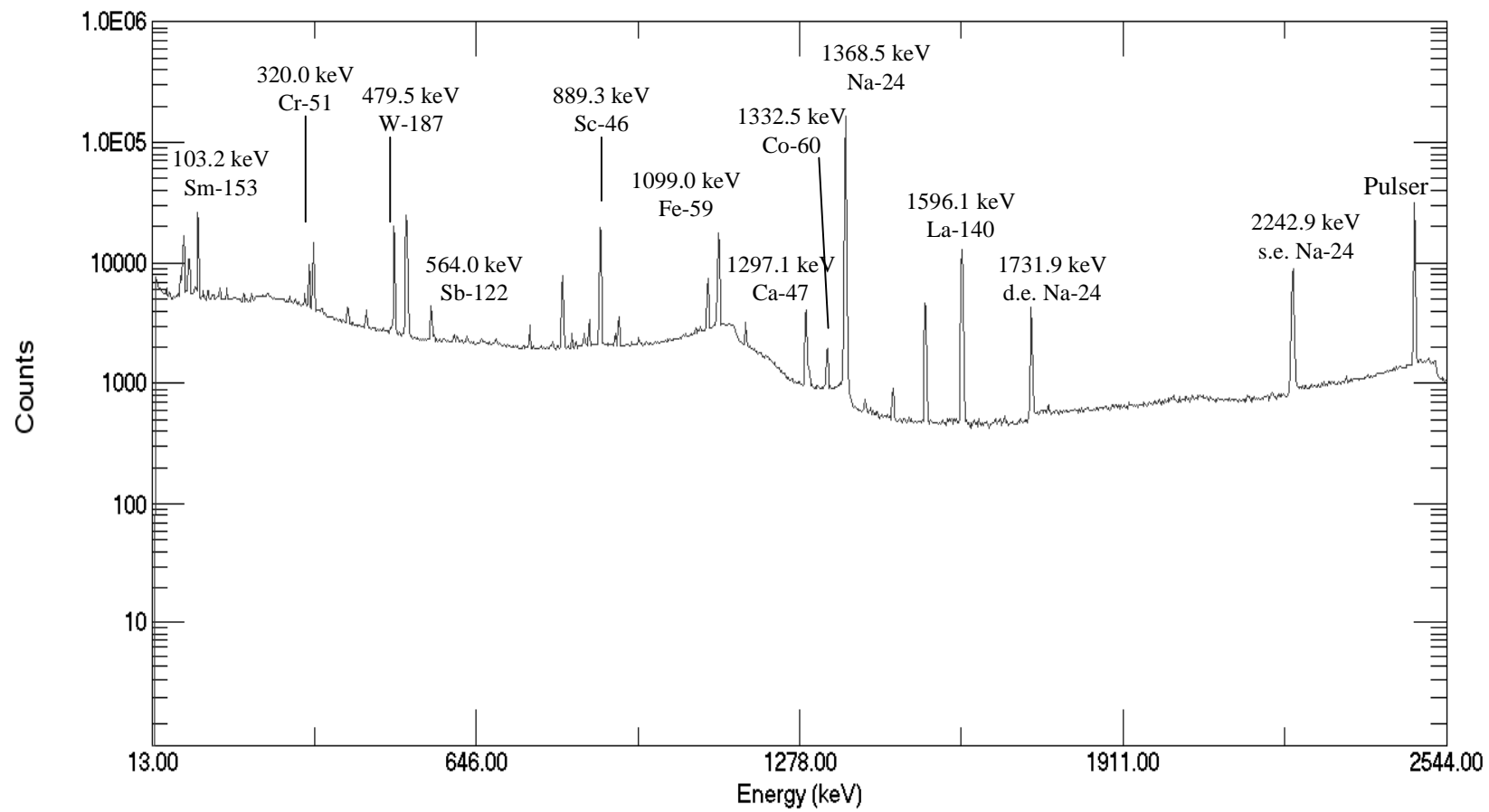
ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Ε

Στα Σχήματα που ακολουθούν παρουσιάζονται ενδεικτικά φάσματα ακτίνων-γ από τις αναλύσεις του ανομοιογενούς δείγματος αναφοράς (Σχήμα Ε.1) και του κεραμικού αγγείου (Σχήμα Ε.2). Και στις δύο περιπτώσεις έχουν ταυτοποιηθεί όλες οι φωτοκορυφές που φαίνονται στο ενεργειακό φάσμα, ωστόσο για οπτικούς λόγους μόνο σε κάποιες από αυτές σημειώνεται η ενέργεια και το αντίστοιχο ισότοπο. Υπογραμμίζεται ότι στα συγκεκριμένα φάσματα, εκτός από τις φωτοκορυφές που αντιστοιχούν σε ισότοπα, διακρίνονται (και σημειώνονται) και κάποιες άλλες φωτοκορυφές, όπως για παράδειγμα οι κορυφές μονής και διπλής διαφυγής που αντιστοιχούν στο ^{24}Na (στην φωτοκορυφή των 2753.9 keV).

Διευκρινίζεται ότι, παρ'ότι και στα δύο φάσματα φαίνονται καθαρά οι φωτοκορυφές του ^{24}Na (τόσο η κορυφή στα 1368.5 keV όσο και οι κορυφές μονής και διπλής διαφυγής), το συγκεκριμένο ισότοπο δεν έχει συμπεριληφθεί στην ανάλυση καθώς και στις δύο περιπτώσεις η τεχνική αναφοράς είτε δεν παρείχε τιμή συγκέντρωσης είτε την κατέγραφε ως αμφίβολη, συνεπώς δεν υπήρχε δυνατότητα σύγκρισης με το αποτέλεσμα της ανάλυσης μεγάλου δείγματος.



Σχήμα Ε.1 Ενεργειακό φάσμα ακτίνων-γ από την ανάλυση του ανομοιογενούς δείγματος αναφοράς



Σχήμα Ε.2 Ενεργειακό φάσμα ακτίνων-γ από την ανάλυση του κεραμικού αγγείου