

ΑΝΑΠΤΥΞΗ ΚΑΙ ΕΦΑΡΜΟΓΗ ΜΕΤΡΗΤΙΚΩΝ ΤΕΧΝΙΚΩΝ ΓΙΑ ΤΗΝ ΑΝΑΛΥΣΗ ΤΗΣ ΦΥΣΙΚΗΣ ΚΑΙ ΤΗΣ ΤΕΧΝΟΛΟΓΙΚΑ ΕΠΑΓΟΜΕΝΗΣ ΡΑΔΙΕΝΕΡΓΕΙΑΣ ΣΕ ΟΙΚΟΣΥΣΤΗΜΑΤΑ

Κ.Α. Καρφόπουλος

Σχολή Μηχανολόγων Μηχανικών ΕΜΠ - Τομέας Πυρηνικής Τεχνολογίας
Ελληνική Επιτροπή Ατομικής Ενέργειας, Δ/ση Έρευνας, Ανάπτυξης και
Εκπαίδευσης

e-mail: kkarfop@eeae.gr

ΠΕΡΙΛΗΨΗ

Στην παρούσα εργασία μελετήθηκαν και αναπτύχθηκαν τεχνικές μέτρησης της φυσικής και της τεχνολογικά επαγόμενης ραδιενέργειας σε οικοσυστήματα. Οι τεχνικές για τις οποίες γίνεται λόγος, αφορούν σε όλα τα στάδια της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης και εφαρμόζονται σε μετρήσεις τόσο στο εργαστήριο (in vitro), όσο και επιτόπου στο πεδίο (in situ). Τεχνικές που εφαρμόζονταν στο Εργαστήριο Πυρηνικής Τεχνολογίας του ΕΜΠ (ΕΠΤ – ΕΜΠ) αξιολογήθηκαν και βελτιώθηκαν, ενώ ταυτόχρονα αναπτύχθηκαν και νέες τεχνικές. Σε αυτό το πλαίσιο, αξιολογήθηκε ο χρησιμοποιούμενος κώδικας γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης, SPUNAL, με χρήση κατάλληλων πειραματικών φασμάτων ελέγχου τα οποία κατασκευάστηκαν στο πλαίσιο της εργασίας.

Ιδιαίτερη αναφορά γίνεται στη χρήση τεχνικών αριθμητικής προσομοίωσης με κώδικες Monte Carlo – χρησιμοποιήθηκε ο κώδικας PENELOPE – για τον προσδιορισμό της απόδοσης γ-ανιχνευτικής διάταξης. Οι τεχνικές αξιοποιήθηκαν και κατά τη μελέτη του φαινομένου της πραγματικής σύμπτωσης (true coincidence).

Σε ό,τι αφορά στα ατμοσφαιρικά αερολύματα, προτείνεται πρωτόκολλο δειγματοληψίας ατμοσφαιρικού αέρα και προσδιορισμού της συγκέντρωσης του ^7Be σε αυτόν. Η εφαρμογή του πρωτοκόλλου επέτρεψε τη διαπίστωση της ημερήσιας κύμανσης του ισοτόπου. Συστηματική εφαρμογή του για περίοδο δύο ετών, επέτρεψε τη μελέτη της εποχιακής κύμανσης της συγκέντρωσης του ισοτόπου και τη συσχέτισή της με μετεωρολογικές παραμέτρους.

Παράλληλα, αναπτύχθηκαν και εφαρμόστηκαν τεχνικές που αφορούν στη βαθμονόμηση in situ ανιχνευτών γερμανίου, τόσο πειραματικά, όσο και με χρήση κωδίκων προσομοίωσης Monte Carlo. Οι τεχνικές εφαρμόστηκαν για τη βαθμονόμηση του ανιχνευτή BEGe του ΕΠΤ – ΕΜΠ .

Τέλος, η πλειοψηφία των τεχνικών που αναπτύχθηκαν και των βελτιώσεων που προτάθηκαν, αξιολογήθηκε μέσω της συμμετοχής του ΕΠΤ-ΕΜΠ σε σειρά Ασκήσεων Διασύγκρισης που οργανώθηκαν από διεθνείς ή/και εθνικούς φορείς.

Λέξεις Κλειδιά: γ-φασματοσκοπία, , φάσματα ελέγχου, Monte Carlo, true coincidence, ^7Be

ABSTRACT

Aim of this work was the development and implementation of techniques for measuring the natural and the technologically enhanced radioactivity in ecosystems. The study

covers all aspects of γ -spectrometry analysis, while measurements were performed both in vitro and in situ. Techniques used at the Nuclear Engineering Department of the National Technical University of Athens (NED-NTUA) were evaluated and improved, while new techniques were developed. To this end, the computer code SPUNAL (SPectrum UNix AnaLysis) that is used at the NED-NTUA for the analysis of the gamma spectra was evaluated by using a group of test spectra constructed in the framework of this work.

For the determination of the full energy peak and the total efficiency Monte Carlo simulation techniques were developed and implemented. The computer code PENELOPE was used. The Monte Carlo simulation techniques were also applied for the true coincidence correction factors calculation.

A protocol for the determination of the short-term ^7Be air activity concentration variations, using a 4-hour sampling interval was developed. The implementation of the protocol allowed for the observation of diurnal ^7Be concentration variations, while its systematic implementation for a 2-years period allowed for the observation of the corresponding seasonal variations as well as of the correlations between ^7Be activity concentration and the meteorological parameters.

Techniques for the calibration of the in situ BEGe detector of NED-NTUA were also developed and applied. The detector was calibrated both experimentally and numerically via Monte Carlo simulation.

Most of the techniques developed and proposed in the frame of this work, were evaluated by the NED-NTUA participation in National and International Intercomparisons.

Keywords: gamma spectrometry, test spectra, Monte Carlo, true coincidence, ^7Be

1. Εισαγωγή

Στην παρούσα εργασία παρουσιάζεται η Διδακτορική Διατριβή (ΔΔ) μου, η οποία εκπονήθηκε στο Εργαστήριο Πυρηνικής Τεχνολογία (ΕΠΤ) του ΕΜΠ κατά το χρονικό διάστημα: Μάρτιος 2004 – Νοέμβριος 2012 με σκοπό την ανάπτυξη και εφαρμογή μετρητικών τεχνικών για την ανάλυση της φυσικής και της τεχνολογικά επαγόμενης ραδιενέργειας σε οικοσυστήματα. Στόχος της παρούσας εργασίας είναι να παρατεθούν οι θεματικές ενότητες με τις οποίες καταπιάστηκε η ΔΔ και να περιγραφούν ορισμένα από τα συμπεράσματα στα οποία κατέληξε.

Το μεγαλύτερο ποσοστό της ετήσιας δόσης που δέχεται ο μέσος άνθρωπος οφείλεται στην ύπαρξη ραδιενεργών πηγών που βρίσκονται στο περιβάλλον. Ανάλογα με την προέλευσή τους οι πηγές αυτές διακρίνονται σε πηγές φυσικής ραδιενέργειας και τεχνητές πηγές.

Οι πηγές φυσικής ραδιενέργειας είναι κυρίως ραδιενεργά ισότοπα που υπάρχουν στο περιβάλλον, ή παράγονται από τη διάσπαση άλλων ραδιενεργών ισοτόπων που υπάρχουν σε αυτό (έδαφος, υπέδαφος, αέρας, νερό). Τέτοια ισότοπα είναι το ^{238}U , ^{232}Th , ^{235}U και τα θυγατρικά τους ραδιενεργά ισότοπα, καθώς και το ^{40}K . Στις φυσικές πηγές ραδιενέργειας μπορεί να περιληφθεί και το διάστημα, καθώς ~10% της ετήσιας δόσης του μέσου ανθρώπου οφείλεται στην κοσμική ακτινοβολία. Αντίστοιχα, η προέλευση των τεχνητών ραδιενεργών πηγών σχετίζεται με διεργασίες όπως η σχάση ραδιενεργών πυρήνων στους πυρηνικούς αντιδραστήρες, η χρήση πυρηνικών όπλων, ο βομβαρδισμός ατόμων με υποατομικά σωματίδια στους επιταχυντές κ.λ.π. Η ραδιολογική σημασία των φυσικών και

τεχνητών ραδιενεργών ισοτόπων που υπάρχουν στο περιβάλλον εξαρτάται άμεσα από τη συγκέντρωσή τους σε αυτό.

Από ραδιολογικής άποψης, μεγάλο ενδιαφέρον παρουσιάζει επίσης μια κατηγορία υλικών όπως ορυκτά, ορυκτά καύσιμα, βιομηχανικές πρώτες ύλες, τα οποία εμφανίζουν υψηλά επίπεδα φυσικής ραδιενέργειας. Τα υλικά αυτά, χαρακτηρίζονται ως υλικά με επαυξημένη φυσική ραδιενέργεια (Naturally Occurring Radioactive Materials, NORM). Η χρησιμοποίηση τέτοιων υλικών σε ανθρώπινες δραστηριότητες, είναι δυνατό να επιφέρει επαύξηση της ειδικής ραδιενέργειας σε ορισμένα από τα παραγόμενα προϊόντα ή παραπροϊόντα, λόγω της εκλεκτικής συγκέντρωσης των ραδιοϊσοτόπων σε αυτά. Τα υλικά αυτά, χαρακτηρίζονται ως «υλικά με τεχνολογικά επαυξημένη φυσική ραδιενέργεια» (Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Materials, TENORM). Βιομηχανικές δραστηριότητες που ενδεχομένως οδηγούν στην παραγωγή υλικών TENORM είναι: η εξόρυξη ουρανίου, η εξόρυξη και επεξεργασία ορυκτών και μεταλλευμάτων, η καύση ορυκτών καυσίμων για παραγωγή ενέργειας, η εξόρυξη και επεξεργασία πετρελαίου και φυσικού αερίου, η παραγωγή γεωθερμικής ενέργειας, η παραγωγή φωσφορικών λιπασμάτων, η επεξεργασία νερού, η ανακύκλωση μετάλλων κλπ.

Πέρα από τη ραδιολογική τους σημασία, τα φυσικά και τεχνητά ραδιενεργά ισότοπα που υπάρχουν στο περιβάλλον, είναι δυνατό να αξιοποιηθούν ως ιχνηλάτες (tracers) στη μελέτη φαινομένων που προκαλούν την ανακατανομή τους στο έδαφος ή στον αέρα (μετεωρολογικά φαινόμενα, φαινόμενα ιζηματογένεσης και διάβρωσης). Ενδεικτικά αναφέρεται η χρήση του κοσμογενούς ισοτόπου ^7Be στην παρακολούθηση της μετακίνησης των αερίων μαζών στην ατμόσφαιρα, αλλά και των ισοτόπων ^{137}Cs και ^{210}Pb στη μελέτη φαινομένων διάβρωσης και ιζηματογένεσης.

Καθίσταται επομένως σαφές πως, είτε για λόγους ακτινοπροστασίας, είτε για άλλους λόγους είναι σημαντική η ύπαρξη κατάλληλων τεχνικών προσδιορισμού και μέτρησης της φυσικής και της τεχνολογικά επαγόμενης ραδιενέργειας στις διάφορες συνιστώσες του οικοσυστήματος. Καθοριστικό παράγοντα στην αξιοποίηση τέτοιων μετρήσεων αποτελεί η ποιότητα των αποτελεσμάτων που λαμβάνονται. Η έννοια της ποιότητας των αποτελεσμάτων δεν αναφέρεται μόνο στην απόκλισή τους από μια «πραγματική» τιμή, αλλά και στα επίπεδα αβεβαιότητας που τα συνοδεύουν.

2. Μέθοδοι και όργανα

Το ΕΠΤ-ΕΜΠ δραστηριοποιείται στο πεδίο των ραδιοπεριβαλλοντικών αναλύσεων για περίπου τέσσερις δεκαετίες, διαθέτοντας σημαντική εμπειρία σε μεθόδους ισοτοπικής ανάλυσης δειγμάτων, όπως η α-φασματοσκοπία, η γ-φασματοσκοπία, η μέτρηση με ανιχνευτές υγρού σπινθηριστή αλλά και μεθόδους στοιχειακών αναλύσεων, πυρηνικές ή μη, όπως η μέθοδος της νετρονικής ενεργοποίησης, η μέθοδος του φθορισμού των ακτίνων $-X$, η μέθοδος της ανάλυσης της κινητικής του φωσφορισμού.

Η μέθοδος με την οποία καταπιάστηκε η ΔΔ ήταν αυτή της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης. Οι τεχνικές για τις οποίες γίνεται λόγος αφορούν σε όλα τα στάδια της μεθόδου: την προετοιμασία των δειγμάτων, τη βαθμονόμηση των ανιχνευτικών διατάξεων, τον προσδιορισμό συγκεκριμένων ισοτόπων και τη μελέτη φαινομένων που σχετίζονται με αυτόν (π.χ. το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης), καθώς και την επεξεργασία των αποτελεσμάτων και τον ποιοτικό τους έλεγχο. Αφορούν επίσης σε δείγματα στερεά, υγρά και αέρια (φίλτρα αέρα) και σε μετρήσεις οι οποίες πραγματοποιούνται τόσο στο εργαστήριο (in-vitro), όσο και επιτόπου στο πεδίο (in-situ).

Συγκεκριμένα χρησιμοποιήθηκαν οι ανιχνευτικές διατάξεις με ανιχνευτή:

- GeLi σχετικής απόδοσης 23.5% με παράθυρο Al και FWHM=1.07 keV @ 122.06 keV και FWHM=1.97 keV @ 1332.5 keV
- HPGe σχετικής απόδοσης 33.8% με παράθυρο Al και FWHM=0.85 keV @ 122.06 keV και FWHM=1.78 keV @ 1332.5 keV
- LEGe (**L**ow **E**nergy **G**ermanium) επιφάνειας 2000 mm² με παράθυρο Be και FWHM=0.341 keV @ 5.9 keV και FWHM=0.530 keV @ 122 keV
- XtRa (**E**Xtended **R**ange) Ge σχετικής απόδοσης 104% με παράθυρο από ανθρακονήματα και FWHM=1.03 keV @ 122.06 keV και FWHM=2.043 keV @ 1332.5 keV
- BEGe (**B**road **E**nergy **G**ermanium) επιφάνειας 3800 mm², με παράθυρο από ανθρακονήματα και FWHM=0.440 keV @ 5.9 keV, FWHM=0.658 keV @ 122 keV και FWHM=1.780 keV @ 1332.5 keV. Ο ανιχνευτής αυτός, χρησιμοποιήθηκε για τις in situ μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν.

Για την ανάλυση των γ-φασμάτων που λήφθηκαν με τους παραπάνω ανιχνευτές χρησιμοποιήθηκε ο κώδικας SPUNAL (**S**Pectrum **U**Nix **A**na**L**ysis) ο οποίος έχει εξ' ολοκλήρου αναπτυχθεί στο ΕΠΤ-ΕΜΠ σε περιβάλλον UNIX.

3. Αξιολόγηση γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης στο ΕΠΤ-ΕΜΠ

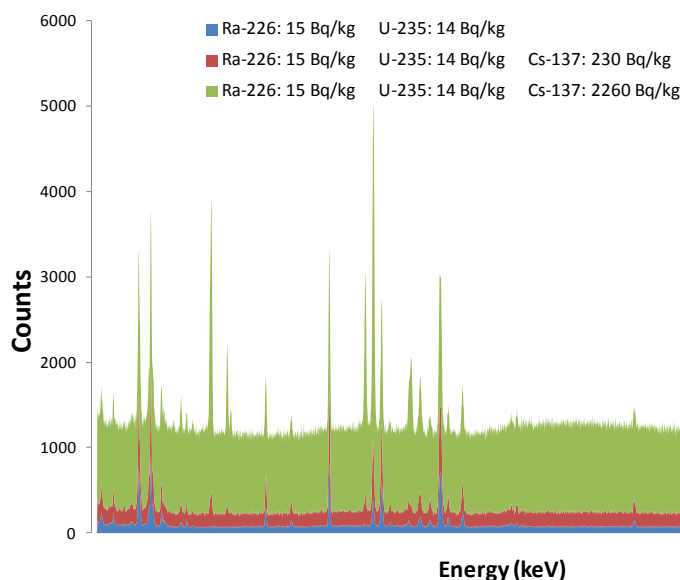
Αρχικά, προκειμένου για την αξιολόγηση των εφαρμοζόμενων τεχνικών γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης στο ΕΠΤ-ΕΜΠ συλλέχθηκαν και αναλύθηκαν στοιχεία από όλες τις βαθμονομήσεις που είχαν διενεργηθεί και όλες τις ασκήσεις διασύγκρισης στις οποίες είχε λάβει μέρος, από τις αρχές τις δεκαετίας του '80. Σε κάθε περίπτωση, η ανάλυση πραγματοποιήθηκε σε επίπεδο ισοτόπου, ανιχνευτή και φωτοκορυφής οδηγώντας σε χρήσιμα συμπεράσματα με χαρακτηριστικότερο τη διαπίστωση της επίδρασης αθροιστικών φωτοκορυφών στις διενεργούμενες βαθμονομήσεις – μετρήσεις.

Ιδιαίτερα σημαντικό τμήμα της εργασίας κατέλαβε η αξιολόγηση του γ-φασματοσκοπικού κώδικα ανάλυσης, SPUNAL. Συγκεκριμένα αξιολογήθηκαν οι αλγόριθμοι εντοπισμού και ανάλυσης απλών και διπλών φωτοκορυφών, μέσω της ανάλυσης φασμάτων ελέγχου (test spectra) τα οποία είτε αναζητήθηκαν στη βιβλιογραφία, είτε, κατά κύριο λόγο, κατασκευάστηκαν στο πλαίσιο της ΔΔ. Σε ό,τι αφορά στην πρώτη περίπτωση χρησιμοποιήθηκαν τα φάσματα ελέγχου Sanderson, ενώ για τη δεύτερη περίπτωση κατασκευάστηκαν πειραματικά 2 σειρές φασμάτων τα οποία εστιάζουν στην ανάλυση της διπλής φωτοκορυφής ²³⁵U-²²⁶Ra στην περιοχή των ~186 keV.

Αναλυτικότερα, η πρώτη σειρά φασμάτων, η οποία περιλαμβάνει 140 φάσματα, προσομοιώνει περιβαλλοντικά δείγματα διαφορετικών συνδυασμών συγκεντρώσεων ²³⁵U (0.1-600 Bq/kg) - ²²⁶Ra (15-1000 Bq/kg), ενώ η δεύτερη σειρά φασμάτων, η οποία περιλαμβάνει 280 φάσματα, αποτελείται από φάσματα της πρώτης σειράς τα οποία «ρυπαίνονται» με ¹³⁷Cs. Η κατασκευή της δεύτερης σειράς φασμάτων στηρίχθηκε στην παρατήρηση ότι η αιχμή οπισθοσκέδασης των φωτονίων 661.66 keV του ¹³⁷Cs εντοπίζεται στην ενεργειακή περιοχή της διπλής φωτοκορυφής ²³⁵U-²²⁶Ra, καθιστώντας την ανάλυσή της σε δύο συνιστώσες, ιδιαίτερα απαιτητική. Στο Σχήμα 1, ενδεικτικά παρουσιάζονται 3 από τα φάσματα ελέγχου που κατασκευάστηκαν. Από το σχήμα είναι εμφανής η αύξηση του συνεχούς υποστρώματος γενικά αλλά και ειδικά στην περιοχή ανίχνευσης της διπλής φωτοκορυφής.

Από την αξιολόγηση των αποτελεσμάτων της ανάλυσης των φασμάτων προέκυψε ότι η πιθανότητα ορθής ανάλυσης της διπλής φωτοκορυφής εξαρτάται από τη διάρκεια ανάλυσης του φάσματος, αλλά και την αναλογία συγκέντρωσης ^{226}Ra και ^{235}U στο φάσμα. Επιπλέον, προέκυψε ότι η παρουσία ^{137}Cs δυσχεραίνει την ανάλυση της διπλής φωτοκορυφής, με συνέπεια το ποσοστό των ορθών αναλύσεων να μειώνεται αισθητά. Ο κώδικας SPUNAL αποδείχθηκε ιδιαίτερα αξιόπιστος, αναλύοντας σωστά – με βάση τα κριτήρια που τέθηκαν – πάνω από το 90% των φασμάτων τα οποία αντιστοιχούν σε εκείνους τους συνδυασμούς συγκεντρώσεων ^{226}Ra και ^{235}U που συνήθως απαντώνται στα περιβαλλοντικά δείγματα. Τέλος, η αξιολόγηση του κώδικα SPUNAL ολοκληρώθηκε με τη σύγκριση του με το πρόγραμμα γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης ANGES, το οποίο διατίθεται ελεύθερα από το Διεθνή Οργανισμό Ατομικής Ενέργειας (ΔΟΑΕ). Και σε αυτή την περίπτωση αποδείχθηκε η αξιοπιστία του κώδικα SPUNAL.

Λεπτομέρειες για την κατασκευή των φασμάτων ελέγχου και αναλυτική περιγραφή των αναλύσεων και της αξιολόγησης που πραγματοποιήθηκε μπορούν να αναζητηθούν στα (Karfopoulos K.L. et al. 2006, Karfopoulos K.L. et al. 2012).



Σχήμα 1: Παρουσίαση τριών από τα συνολικά 420 φάσματα ελέγχου που κατασκευάστηκαν πειραματικά. Οι συγκεντρώσεις ^{226}Ra και ^{235}U παραμένουν σταθερές, η συγκέντρωση ^{137}Cs αυξάνεται σταδιακά

4. Μελέτη κατωτέρων ορίων ανίχνευσης.

Στο πλαίσιο της εργασίας μελετήθηκε η μεθοδολογία υπολογισμού των κατωτέρων ορίων ανίχνευσης στην περίπτωση της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης. Για το σκοπό αυτό, αναλύθηκαν οι προτεινόμενες στη βιβλιογραφία τεχνικές και εντοπίστηκαν οι αδυναμίες τους στις περιπτώσεις μελέτης πολλαπλών φωτοκορυφών και φωτοκορυφών που εμφανίζονται στα φάσματα υποστρώματος των χρησιμοποιούμενων ανιχνευτικών διατάξεων. Για τις ειδικές αυτές περιπτώσεις προτάθηκαν νέες τεχνικές, οι οποίες εφαρμόστηκαν στην περίπτωση ανίχνευσης ^{235}U και ^{238}U σε δείγματα φυσικής και τεχνολογικά επαγόμενης ραδιενέργειας. Ειδικά για την περίπτωση του διακριτού υποστρώματος αναπτύχθηκε τεχνική η οποία μπορεί να λειτουργήσει συμπληρωματικά ως προς τις προτεινόμενες στη διεθνή βιβλιογραφία, καθώς λαμβάνει υπόψη και περιπτώσεις

σημαντικής κύμανσης του διακριτού υποστρώματος (π.χ. περίπτωση θυγατρικών ραδονίου).

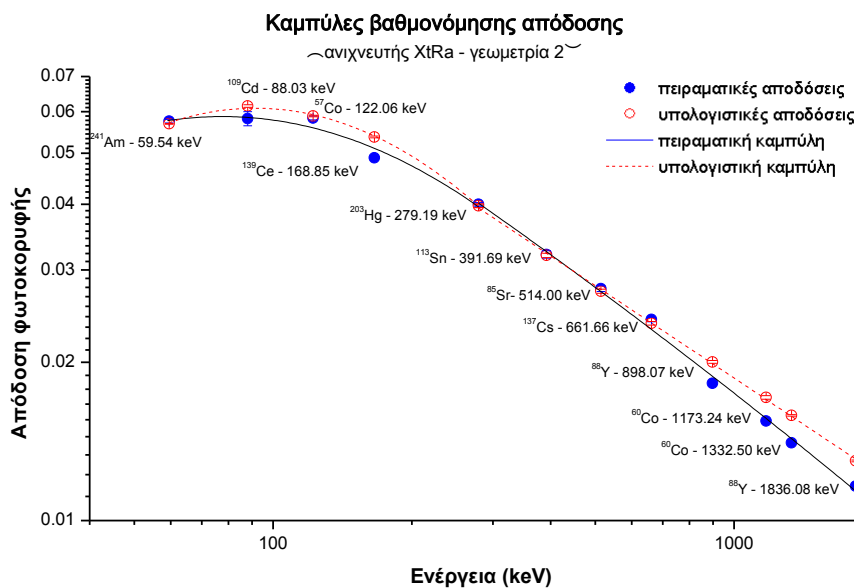
Αποδείχθηκε ότι στις τιμές των κατωτέρων ορίων ανίχνευσης επιδρά το συνεχές υπόστρωμα των φωτοκορυφών των εξεταζόμενων ισοτόπων στο φάσμα του μετρούμενου δείγματος αλλά και η κύμανση της ραδιενέργειας υποστρώματος των ισοτόπων αυτών. Τέλος, εντοπίστηκαν οι παράμετροι της γ -φασματοσκοπικής ανάλυσης που καθορίζουν τα χαρακτηριστικά του συνεχούς υποστρώματος και αναλύθηκε ο τρόπος με τον οποίο επιδρούν σε αυτό και κατ' επέκταση στα όρια ανίχνευσης. Σε κάθε περίπτωση, τα όρια ανίχνευσης χαρακτηρίζουν και προσδιορίζονται ανεξάρτητα για κάθε δείγμα και επομένως, δε θα πρέπει να θεωρούνται a-priori εκτιμήσεις των δυνατοτήτων ανίχνευσης μιας μετρητικής τεχνικής / διάταξης.

5. Τεχνικές με χρήση κωδίκων προσομοίωσης Monte-Carlo

Με τη ΔΔ, εισάγεται για πρώτη φορά στο ΕΠΤ-ΕΜΠ η χρήση των κωδίκων Monte Carlo για τη βαθμονόμηση γ -ανιχνευτικών διατάξεων. Αν και για το σκοπό αυτό χρησιμοποιήθηκε ο κώδικας PENELOPE, η μελέτη που πραγματοποιήθηκε βρίσκει εφαρμογή και σε άλλους κώδικες προσομοίωσης. Προτάθηκε μεθοδολογία για τον προσδιορισμό μέσω προσομοίωσης της απόδοσης ανιχνευτικής διάταξης, ώστε να είναι συγκρίσιμη με την αντίστοιχη πειραματική τιμή. Η ανάγκη αυτή προέκυψε κατόπιν συμμετοχής του ΕΠΤ-ΕΜΠ σε διεθνή Άσκηση Διασύγκρισης και συνέβαλε στην ερμηνεία των αποτελεσμάτων της. Στη διαμόρφωση της μεθοδολογίας αυτής συνέβαλε και η μελέτη που πραγματοποιήθηκε στο πλαίσιο της εργασίας σχετικά με τον τρόπο με τον οποίο ο ορισμός των παραμέτρων εισόδου του κώδικα επιδρά στον υπολογισμό της ολικής απόδοσης και ιδιαίτερα της απόδοσης φωτοκορυφής μίας ανιχνευτικής διάταξης. Συγκεκριμένα, εξετάστηκε ο τρόπος επίδρασης του εύρους και των ορίων του ενεργειακού παραθύρου φωτοκορυφής και των ενεργειών αποκοπής των σωματιδίων και φωτονίων της προσομοίωσης. Λεπτομέρειες μπορούν να αναζητηθούν στην εργασία Karforoulou and Anagnostakis (2010).

Ιδιαίτερη έμφαση δόθηκε στον τρόπο με τον οποίο ο προσδιορισμός των γεωμετρικών χαρακτηριστικών μιας ανιχνευτικής διάταξης επιδρά στην υπολογιστική – μέσω προσομοίωσης – επίλυση προβλημάτων γ -φασματοσκοπικής ανάλυσης. Για το σκοπό αυτό μάλιστα αναπτύχθηκε αλγόριθμος προσδιορισμού των γεωμετρικών χαρακτηριστικών γ -ανιχνευτικής διάταξης, ο οποίος εφαρμόστηκε στην περίπτωση των ανιχνευτών του ΕΠΤ-ΕΜΠ, με σκοπό την βαθμονόμηση απόδοσής τους μέσω προσομοίωσης. Η μεθοδολογία βαθμονόμησης απόδοσης που αναπτύχθηκε στα πλαίσια της ΔΔ αποδείχθηκε αξιόπιστη, ενώ οι αποκλίσεις που παρατηρήθηκαν κατά τη σύγκριση πειραματικών και υπολογιστικών αποτελεσμάτων ερμηνεύτηκαν και αποδόθηκαν σε φαινόμενα, όπως το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης ή η εκπομπή ακτινοβολίας πέδησης. Ειδικά για τη σύγκριση υπολογιστικών και πειραματικών γ -φασμάτων στο πλαίσιο της ΔΔ δημιουργήθηκε πρόγραμμα το οποίο μετατρέπει το φάσμα που προκύπτει από την προσομοίωση σε «ρεαλιστικό», άμεσα συγκρίσιμο με πειραματικό γ -φάσμα, λαμβάνοντας υπόψη και τη διακριτική ικανότητα της ανιχνευτικής διάταξης.

Στο Σχήμα 2 παρουσιάζεται ενδεικτικά το μοντέλο και οι καμπύλες βαθμονόμησης – πειραματικές και υπολογιστικές- απόδοσης φωτοκορυφής του ανιχνευτή XtRa για συγκεκριμένη πηγή όγκου.



Σχήμα 2: Υπολογιστική και πειραματική καμπύλη βαθμονόμησης της ανιχνευτικής διάταξης XtRa του ΕΠΤ-ΕΜΠ για πηγή όγκου.

6. Ανάπτυξη και εφαρμογή τεχνικών διόρθωσης του φαινομένου της πραγματικής σύμπτωσης (True Coincidence)

Στο πλαίσιο της εργασίας αναπτύχθηκε μεθοδολογία προσδιορισμού των συντελεστών διόρθωσης ως προς το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης. Η μεθοδολογία στηρίζεται στη χρήση του προγράμματος TrueCoinc αλλά και την αξιοποίηση των τεχνικών προσομοίωσης Monte-Carlo, κυρίως για τον προσδιορισμό των απαιτούμενων ολικών αποδόσεων. Μέσω της εφαρμογής της μεθοδολογίας, διορθώθηκαν οι χρησιμοποιούμενες στο ΕΠΤ-ΕΜΠ πειραματικές καμπύλες βαθμονόμησης απόδοσης. Ένδειξη της αποτελεσματικότητας της μεθόδου αποτέλεσε το γεγονός ότι η ποιότητα των καμπυλών βαθμονόμησης του ΕΠΤ-ΕΜΠ βελτιώθηκε μετά την εφαρμογή διορθώσεων και συγκεκριμένα μειώθηκε η τιμή του συντελεστή RMS. Εμπειρισταωμένη αξιολόγηση της μεθόδου πραγματοποιήθηκε μέσω της συμμετοχής σε δύο Ασκήσεις Διασύγκρισης, εστιασμένες στον υπολογισμό συντελεστών διόρθωσης. Οι Ασκήσεις διοργανώθηκαν στο πλαίσιο των εργασιών του Gamma-Ray Spectrometry Working Group της Διεθνούς Επιτροπής Μετρολογίας Ραδιοϊσοτόπων (International Committee for Radionuclide Metrology, ICRM) στην οποία συμμετέχει το ΕΠΤ-ΕΜΠ ήδη από το 2003. Η πρώτη αφορούσε στη μελέτη σημειακών πηγών, ενώ η δεύτερη στη μελέτη πηγών όγκου. Η συμμετοχή του ΕΠΤ-ΕΜΠ κρίθηκε σε κάθε περίπτωση επιτυχής. Η χρησιμοποιούμενη μεθοδολογία φάνηκε να αποδίδει καλύτερα στην περίπτωση πηγών όγκου, οι οποίες είναι και οι κυρίως χρησιμοποιούμενες στην ανάλυση περιβαλλοντικών δειγμάτων. Παράλληλα, για τις ανάγκες των Ασκήσεων, αναπτύχθηκε μεθοδολογία προσδιορισμού της αβεβαιότητας των συντελεστών διόρθωσης. Οι δύο Ασκήσεις περιγράφονται στα (Léry et al. 2012, Léry et al. 2010)

Μέσω των Ασκήσεων διαπιστώθηκε και η αξιοπιστία της τεχνικής μεταφοράς απόδοσης από μία γεωμετρία αναφοράς σε μία άλλη με χρήση κωδίκων προσομοίωσης, ως διαδικασία υπολογιστικής βαθμονόμησης ανιχνευτικών διατάξεων, ειδικά σε περιπτώσεις που ο προσδιορισμός των γεωμετρικών χαρακτηριστικών των ανιχνευτικών διατάξεων παρουσιάζει δυσκολίες ή δεν είναι επαρκώς ακριβής.

7. Βαθμονόμηση in situ ανιχνευτή Ge για τον προσδιορισμό του ρυθμού δόσης και της επιφανειακής απόθεσης ραδιενεργών ισοτόπων στο έδαφος

Στο πλαίσιο του προσδιορισμού της φυσικής και της τεχνολογικά επαγόμενης ραδιενέργειας σε οικοσυστήματα, εντάσσεται και ο προσδιορισμός της συγκέντρωσης ραδιενεργών ισοτόπων στο έδαφος και της συνεπαγόμενης δόσης. Μια ευρέως χρησιμοποιούμενη μέθοδος προσδιορισμού των επιπέδων ραδιενέργειας στο έδαφος συνίσταται στη χρήση ανιχνευτών γερμανίου και τον επιτόπιο προσδιορισμό των επιπέδων ραδιενέργειας στο έδαφος. Για τέτοιου είδους μετρήσεις στο ΕΠΤ-ΕΜΠ χρησιμοποιείται η ανιχνευτική διάταξη με ανιχνευτή BEGe.

Στο πλαίσιο της εργασίας βαθμονομήθηκε ο ανιχνευτής με δύο μεθόδους, μία ημιεμπειρική – πειραματική μέθοδο και μία υπολογιστική μέθοδο, μέσω προσομοίωσης Monte Carlo. Η ημιεμπειρική – πειραματική μέθοδος εφαρμόστηκε για τα ισότοπα ^{137}Cs , ^{241}Am , ^{214}Pb και ^{214}Bi και αποδείχτηκε ότι η κατανομή των ισοτόπων στο έδαφος αλλά και τα χαρακτηριστικά του ανιχνευτή είναι αυτά που κυρίως επιδρούν στα τελικά αποτελέσματα. Μέσω των παραμέτρων της βαθμονόμησης που προσδιορίστηκαν, η βαθμονόμηση μπορεί να επεκταθεί και στη μελέτη άλλων ισοτόπων. Η υπολογιστική μέθοδος χρησιμοποιήθηκε μόνο στη μελέτη επιφανειακών πηγών, ενώ τα τελικά αποτελέσματα – συντελεστές βαθμονόμησης – που προέκυψαν από την εφαρμογή της μεθόδου, συγκρίθηκαν με τα αντίστοιχα της ημιεμπειρικής μεθόδου και διαπιστώθηκε ικανοποιητική σύγκλιση. Η διαδικασία της βαθμονόμησης της ανιχνευτικής διάταξης αναλυτικά περιγράφεται στο Agrafiotis (2010).

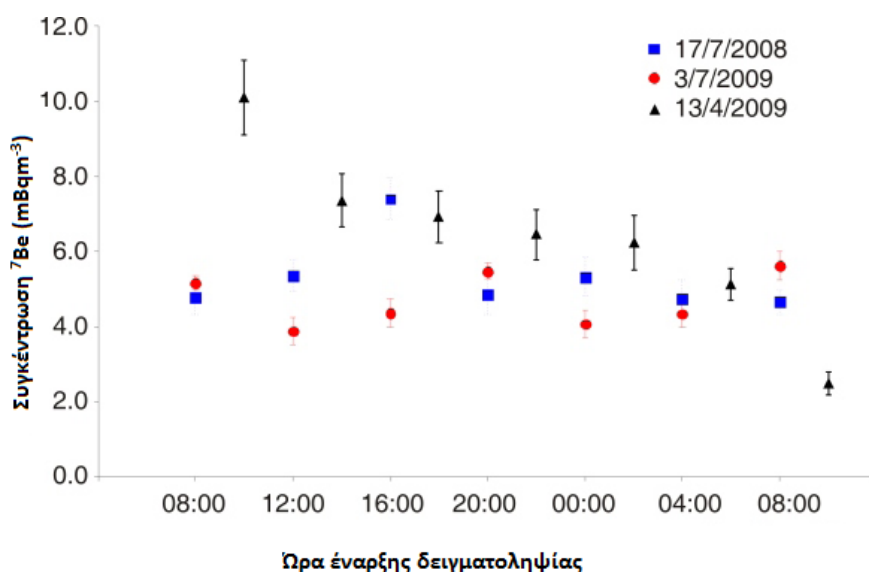
Η μέθοδος θεωρήθηκε αξιόπιστη και χρησιμοποιήθηκε για τον προσδιορισμό της καμπύλης βαθμονόμησης του ανιχνευτή BEGe του ΕΠΤ-ΕΜΠ στην ενεργειακή περιοχή (60-1600 keV), για γεωμετρία επιφανειακής πηγής. Η καμπύλη χρησιμοποιήθηκε στην περίπτωση προσδιορισμού της επιφανειακής συγκέντρωσης του βραχύβιου κοσμογενούς ισοτόπου ^7Be και του ^{131}I , το οποίο αποτέθηκε στο έδαφος μετά από το ατύχημα στη Fukushima, παρέχοντας αξιόπιστα αποτελέσματα.

8. Μέτρηση ραδιενεργών ατμοσφαιρικών αερολυμάτων

Οι δυνατότητες του ΕΠΤ-ΕΜΠ στην ανίχνευση και τον ποσοτικό προσδιορισμό ισοτόπων στα ατμοσφαιρικά αερολύματα αξιοποιήθηκαν και επεκτάθηκαν για τη μελέτη της κύμανσης της συγκέντρωσης του ^7Be στην ατμόσφαιρα, σε μικρή κλίμακα χρόνου. Διαπιστώθηκε η δυνατότητα παρακολούθησης των ημερήσιων μεταβολών της συγκέντρωσης του ^7Be , με δειγματοληψία διάρκειας μόλις 4 h. Σημειώνεται πως στη βιβλιογραφία σπάνια συναντώνται τόσο μικρής διάρκειας δειγματοληψίες. Στο Σχήμα 3 παρουσιάζεται η χρονική εξέλιξη της συγκέντρωσης του ^7Be όπως προέκυψε από τις δειγματοληψίες και τις αναλύσεις δύο τυπικών καλοκαιρινών ημερών και μια ανοιξιάτικης βροχερής ημέρας.

Παράλληλα, κατόπιν 2-ετούς συστηματικής παρακολούθησης των μεταβολών της συγκέντρωσης του ^7Be , μελετήθηκε και διαπιστώθηκε η συσχέτισή του με διάφορες μετεωρολογικές παραμέτρους (π.χ. θερμοκρασία, σχετική υγρασία, πλήθος ηλιακών κηλίδων). Κατά την περίοδο αυτή των 2 ετών συλλέχθηκαν και αναλύθηκαν 93 δείγματα (περίπου ένα δείγμα ανά εβδομάδα), κατά το δυνατόν την ίδια χρονική περίοδο της ημέρας. Η μέγιστη και η ελάχιστη συγκέντρωση ^7Be που ανιχνεύτηκε, συνοδευόμενες από τις αντίστοιχες συνολικές αβεβαιότητές τους σε επίπεδο 1σ ήταν $(10.9 \pm 0.86) \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ και $(1.0 \pm 0.35) \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$, αντίστοιχα. Η μέση τιμή των συγκεντρώσεων υπολογίστηκε ίση

με $5.5 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ με τυπική απόκλιση $2.5 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$. Οι τιμές αυτές, είναι συμβατές με τιμές της βιβλιογραφίας για παρόμοια γεωγραφικά πλάτη.



Σχήμα 3: Παρακολούθηση της ημερήσιας μεταβολής της συγκέντρωσης του ^7Be .

Το πρωτόκολλο δειγματοληψίας και μέτρησης των ατμοσφαιρικών αερολυμάτων αλλά και η παρακολούθηση της κύμανσης της συγκέντρωσης του ^7Be μπορούν να αναζητηθούν στο Papandreou et al. (2011).

9. Αξιολόγηση των τεχνικών που αναπτύχθηκαν

Οι τεχνικές ανίχνευσης των φυσικών και τεχνητών ισοτόπων που αναπτύχθηκαν στα πλαίσια της ΔΔ εφαρμόστηκαν στο πλαίσιο της συμμετοχής του ΕΠΤ-ΕΜΠ σε Ασκήσεις Διασύγκρισης. Πρόκειται για Ασκήσεις που διοργανώθηκαν, είτε από εθνικούς φορείς (π.χ. ΕΕΑΕ) είτε από διεθνείς φορείς (π.χ. IAEA ALMERA network) και εργαστήρια (π.χ. NPL).

Γενική διαπίστωση αποτελεί το γεγονός ότι μέσω και των τεχνικών που αναπτύχθηκαν, το ΕΠΤ-ΕΜΠ έχει τη δυνατότητα παροχής αξιόπιστων αναλύσεων δειγμάτων που περιέχουν φυσικά ή τεχνητά ραδιενεργά ισότοπα και μάλιστα σε σύντομο χρόνο. Από τη συμμετοχή στις Ασκήσεις αυτές προέκυψαν για τα περισσότερα από τα ισότοπα που εξετάστηκαν προτεινόμενες τεχνικές για τον ποσοτικό προσδιορισμό τους.

10. Συμπεράσματα

Αντί συμπερασμάτων στην παράγραφο αυτή συνοψίζονται τα σημεία πρωτοτυπίας της εργασίας:

- Σχεδίαση και κατασκευή πειραματικών φασμάτων ελέγχου για την αξιολόγηση λογισμικού γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης. Μελετήθηκε η περίπτωση της διπλής φωτοκορυφής των ισοτόπων ^{235}U και ^{226}Ra και η επίδραση της αιχμής οπισθοσκέδασης του ^{137}Cs στην ανάλυσή της.

- Διαπίστωση της ανάγκης ορισμού των κατωτέρων ορίων ανίχνευσης σε περιπτώσεις ύπαρξης διακριτού υποστρώματος και πολλαπλών φωτοκορυφών. Προτάθηκαν και εφαρμόστηκαν τεχνικές υπολογισμού των κατωτέρων ορίων για αυτές τις περιπτώσεις. Μέσω συγκεκριμένων εφαρμογών αποδείχθηκε ότι τα όρια ανίχνευσης χαρακτηρίζουν κάθε δείγμα και ως εκ τούτου δε θα πρέπει να θεωρούνται a-priori εκτιμήσεις των δυνατοτήτων ανίχνευσης μιας μετρητικής τεχνικής / διάταξης.
- Εφαρμογή μεθόδων προσομοίωσης Monte Carlo στη γ-φασματοσκοπική ανάλυση. Στο πλαίσιο αυτό, προτάθηκε και μεθοδολογία για τον προσδιορισμό της υπολογιστικής απόδοσης γ-ανιχνευτικής διάταξης και μελετήθηκαν οι παράμετροι της προσομοίωσης που επιδρούν σε αυτόν τον προσδιορισμό.
- Ανάπτυξη τεχνικής προσδιορισμού συντελεστών διόρθωσης ως προς το φαινόμενο της πραγματικής σύμπτωσης και των αντίστοιχων αβεβαιοτήτων τους.
- Ανάπτυξη πρωτοκόλλου δειγματοληψίας και μέτρησης με το οποίο κατέστη δυνατή η παρακολούθηση των ημερήσιων μεταβολών της συγκέντρωσης του ^7Be , με δειγματοληψία διάρκειας μόλις 4 h.
- Βαθμονόμηση του ανιχνευτή in situ BEGe του ΕΠΤ-ΕΜΠ με χρήση ημιεμπειρικής-πειραματικής μεθόδου και υπολογιστικής μεθόδου προσομοίωσης για επιφανειακές πηγές στην ενεργειακή περιοχή 59-1600 keV.
- Εντοπισμός προβλημάτων τα οποία παρουσιάζονται κατά τον ποσοτικό προσδιορισμό συγκεκριμένων φυσικών και τεχνητών ισοτόπων σε διαφορετικά δείγματα (π.χ. ^{109}Cd και ^{210}Pb) και πρόταση τεχνικών για την άρση τους.

11. Βιβλιογραφία

1. K. Agrafiotis, K.L. Karfopoulos, M.J. Anagnostakis, Calibration of an in-situ BEGe detector using semi-empirical, experimental and Monte-Carlo techniques, *Applied Radiation and Isotopes* 69 (8), pp. 1151-1155, 2010
2. K.L. Karfopoulos, D.J. Karangelos, M.J. Anagnostakis and S.E. Simopoulos, Gamma-spectroscopic determination of ^{235}U in environmental samples using Low Energy Germanium detectors (LEGe), *Applied Radiation and Isotopes* 64, pp. 1350, 2006
3. K.L. Karfopoulos, D.J. Karangelos, M.J. Anagnostakis, S.E. Simopoulos, Evaluation of two gamma spectrometry computer codes for the ^{235}U determination using test spectra, 8th Workshop on European Collaboration for Higher Education and Research in Nuclear Engineering and Radiological Protection, Athens, 28-30 May 2012.
4. K.L. Karfopoulos and M.J. Anagnostakis, Parameters affecting full energy peak efficiency determination during Monte Carlo simulation, *Applied Radiation and Isotopes*, Volume 68 (7-8), pp. 1435-1437, 2010
5. M.-C. Lépy et al., Intercomparison of methods for coincidence summing corrections in gamma-ray spectrometry, *Applied Radiation and Isotopes*, Volume 68 (7-8), pp. 1407–1412, 2010
6. M.-C. Lépy et al., Intercomparison of methods for coincidence summing corrections in gamma-ray spectrometry-part II (volume sources), *Applied Radiation and Isotopes* 70(9), pp. 2112-2118, 2012
7. S.M.A. Papandreou, M.I. Savva, K.L. Karfopoulos, D.J. Karangelos, M.J. Anagnostakis, S.E. Simopoulos, Monitoring of ^7Be atmospheric activity concentration using short term measurements, *Nuclear Technology and Radiation Protection* 26 (2), pp. 101-109, 2011