

# Samenvatting

## REDNAILS

### ***Neutronen activeringsanalyse van inhomogene grote monsters – een verkennende studie***

*(Neutron Activation Analysis of Inhomogeneous Large Samples - An Explorative Study)*

Neutronen activeringsanalyse is een succesvolle analysemethode voor de bepaling van de concentratie van sporenelementen in monsters. Omdat zowel neutronen als gamma's een hoog doordringend vermogen hebben, is deze methode bij uitstek ook geschikt voor de analyse van grote monsters (tot 13 liter) zoals aangetoond door Overwater. Zijn methode leverde alleen gemiddelde waarden voor de element concentraties. Dit leidde tot de volgende problemen. Ten eerste geeft het resultaat van één monster geen informatie over de representativiteit van het monster voor het grotere geheel waaruit het getrokken was. Ten tweede, evaluatie door Overwater van de juistheid van resultaten toonde grote fouten, tot 100%, ten gevolge van, kan een inhomogene ruimtelijke verdeling van elementen in het grote monster, zonder dat de onderzoeker dit zou merken als geen aanvullende maatregelen zouden worden getroffen.

Een methode die informatie geeft over de ruimtelijke verdeling van de elementen zou bovenstaande problemen aanpakken, te beginnen bij het laatste. Ten eerste, als de ruimtelijke element verdeling bekend is, dan kan de totale hoeveelheid van het element in het monster nauwkeuriger bepaald worden. Ten tweede geeft de element verdeling informatie over de inhomogeniteit van het monster. Als het grote monster een compositie is van random verzamelde kleinere monsters, dan zal het resultaat ook informatie geven over de representativiteit van het grote monster en de inhomogeniteit van de totale partij. Een derde voordeel is

dat een dergelijke methode informatie kan geven over de structuur van het monster, wat interessant kan zijn voor bijvoorbeeld geologische monsters.

Gezien bovenstaande overwegingen is het onderzoek gestart dat ten grondslag ligt aan dit proefschrift. Het verkent de methodes benodigd voor de bepaling van element verdelingen in grote monsters gebaseerd op de principes van neutronen activeringsanalyse (NAA).

Hoofdstuk 1 voorziet in een overzicht op de ontwikkeling van NAA, van het begin tot de recente stappen die worden beschreven in dit proefschrift. In hoofdstuk 2 worden de problemen van representatief bemonsteren voor de analyse van inhomogene partijen kort bediscussieerd. Zoals hierboven genoemd, is dit een van de grote problemen die een oplossing, zoals verkend in dit proefschrift, benodigden.

De methoden en behaalde resultaten worden beschreven in hoofdstuk 3 tot 9. Hoofdstuk 3 geeft het raamwerk van de methode (het ontwerp van een methode voor neutronen activeringsanalyse van inhomogene grote monsters) en de randvoorwaarden. Het beschrijft ook de stappen van het ontwerp van de methode die niet speciaal in deze studie zijn uitgewerkt. Er wordt verwezen naar hoofdstuk 4 tot 9 voor de onderdelen die wel het werk voor het proefschrift betreffen. De methode is een uitbreiding van de zogenaamde “holistische benadering”: voor elk element in elk blokje van het monster (voxel) wordt het verwachte gamma-stralingsspectrum berekend voor elke meting. Van deze verzameling wordt een gewogen deelverzameling gekozen door die het best past bij de echte metingen. Dit kiezen kan via twee strategieën: de meest waarschijnlijke oplossing wordt gezocht door maximalisatie van de verwachtingswaarde (MLEM), of het verschil tussen voorspelde en gemeten metingen wordt geminimaliseerd door gebruik te maken van de geconjugeerde gradiënt methode met als randvoorwaarde dat concentraties niet negatief mogen zijn (CGNN). Dit is beschreven in hoofdstuk 8.

Zoals besproken door Overwater, kunnen de grootste fouten in grote monster NAA verwacht worden met inhomogene sporenelementen ten gevolge van een verkeerde correctie voor de detectie efficiëntie van gammastraling. Daarom is gekozen zijn methode voor de berekening van de neutronen flux te gebruiken, zonder correcties voor fluctuaties in de neutronenparameters ten gevolge van inhomogeniteiten, op kleinere schaal dan nu al gebeurt in zijn methode.

De methode voor berekening van de detectie efficiëntie voor gammastraling is beschreven in hoofdstuk 4. Allereerst is een aantal Monte-Carlo berekeningen uitgevoerd om de detectie efficiëntie te bepalen als een functie van de energie van de gammastraling en de dimensies van de weg van de gammastraal door het detectorkristal. Met deze resultaten is een methode ontwikkeld die de detectie efficiëntie kan bepalen voor elk punt in het monster, inclusief correctie voor verzwakking in het monster en de collimator. De methode voor de bepaling van de lokale verzwakkingscoëfficiënten wordt weergegeven in hoofdstuk 7.

Voor de metingen is uitgegaan van de opstelling van Overwater. In hoofdstuk 5 wordt de optimalisatie van deze opstelling voor de nieuwe metingen besproken. Uitgaande van een methode van gecollimeerd scannen en verticale en rotatoire richting, wordt het monster beschouwd als te zijn opgebouwd uit taartpuntvormige voxels. De optimale collimator opening en voxel grootte wordt bediscussieerd. Daarbij moet genoemd worden dat daarbij ook de randvoorwaarden van een bepaald monster in acht moeten worden genomen.

In hoofdstuk 6 wordt een snelle scan methode gepresenteerd die statistische informatie oplevert over het monster, om te kunnen bepalen of het monster homogeen genoeg is voor analyse volgens de methode van Overwater. Zo niet, dan moet geanalyseerd worden met behulp van reconstructie van de element verdeling van met neutronen geactiveerde inhomogene grote monsters (REDNAILS).

Hoofdstuk 8 bespreekt de hierboven genoemde reconstructie algoritmes, waarbij ze worden getest met behulp van mathematische modellen. In hoofdstuk 9 wordt REDNAILS getest met monsters uit de praktijk, na een aantal aanpassingen gebaseerd op kennis over algemene eigenschappen van monsters. Aangetoond wordt dat de methode in de meeste gevallen accurate resultaten levert, maar dat in enkele gevallen lokale schommelingen in de parameters voor neutronen interacties ten gevolge van inhomogeniteiten niet genegeerd kan worden.