



UNIVERSITÀ DEGLI STUDI DI PADOVA

Dipartimento di Fisica e Astronomia "Galileo Galilei"

Corso di Laurea in Fisica

Tesi di Laurea

Caratterizzazione e primi test con uno scintillatore LBC
per la misura della produzione di Ag-111 nel progetto

ISOLPHARM

Relatore

Prof. Marcello Lunardon

Correlatore

Dr. Luca Morselli

Laureando

Ludovico Mattavelli

Anno Accademico 2021/2022

Indice

Introduzione	1
1 Apparato sperimentale	3
1.1 Assemblaggio del Rivelatore	3
1.2 Elettronica e software di acquisizione	4
2 Caratterizzazione del rivelatore	7
2.1 Ottimizzazione dei parametri di acquisizione	7
2.2 Analisi del tempo morto	9
2.3 Efficienza e Linearità	12
3 Misure di produzione dell'Ag-111 presso il laboratorio Lena	15
3.1 Verifica del rapporto isotopico	16
4 Conclusioni	19

Introduzione

Nella medicina nucleare moderna un filone di crescente interesse scientifico e clinico è quello dei radiofarmaci, un composto chimico contenente al proprio interno un radioisotopo, che viene adoperato per diagnosi e terapie di vario tipo.

Il progetto ISOLPHARM è un progetto multidisciplinare finalizzato alla produzione di una vasta gamma di radioisotopi attraverso un processo innovativo, che permetterà di ottenere isotopi difficilmente ottenibili con le metodologie standard, con costi inferiori rispetto alle tecniche tradizionali, con un ridotto impatto ambientale e con un elevato grado di purezza.

I radionuclidi verranno prodotti facendo collidere fasci di ioni radioattivi (RIB, *Radioactive Ion Beam*), estratti dal ciclotrone SPES (*Selective Production of Exotic Species*), attualmente in costruzione ai Laboratori Nazionali di Legnaro. Successivamente si isoleranno gli ioni di interesse utilizzando la separazione di massa On-Line (nella facility ISOL, *Isotope Separation On – Line*) ed, infine, saranno purificati attraverso processi chimici [1].

Il seguente lavoro di tesi è strettamente collegato al progetto ISOLPHARM: il rivelatore LBC oggetto di questo studio verrà utilizzato per la misura della produzione degli isotopi prodotti, in particolare dell'Ag-111, sfruttando la spettroscopia gamma. Dopo una breve introduzione dell'apparato sperimentale (Capitolo 1), si passerà alla caratterizzazione del rivelatore (Capitolo 2), per poi analizzare i dati acquisiti sull'isotopo Ag-111 ottenuti al laboratorio Lena il 28 e 29 Marzo 2022 (Capitolo 3).

Capitolo 1

Apparato sperimentale

Il setup sperimentale utilizzato per le misure spettroscopiche è composto da:

- **Cristallo a scintillazione LBC**;
- **PMT Hamamatsu R6231-100-01**, un tubo fotomoltiplicatore [2];
- **Modulo CAEN DT5471**, un alimentatore ad alta tensione [3];
- **Digitizer CAEN DT5725**, che digitalizza il segnale e si interfaccia con il sistema di acquisizione [4];
- **ABCD**, il software di acquisizione utilizzato [5].

1.1 Assemblaggio del Rivelatore

Il rivelatore a scintillazione LBC è composto da tre elementi: il cristallo scintillatore LBC (riportato nella figura accanto), dove LBC indica la sua composizione (*Lanthanum BromoChloride*), ricoperto da uno shield di alluminio, il PMT e il rivestimento di protezione. Il PMT Hamamatsu R6231-100-01 è un tubo fotomoltiplicatore SBA (*super biakali*), che possiede un'efficienza quantica molto buona che permette al rivelatore di avere una buona risoluzione. Il PMT è ricoperto da uno shield che funge da schermo elettrostatico, principalmente per limitare gli effetti che un campo magnetico presente nell'ambiente avrebbe sugli elettroni lo attraversano.



Per l'assemblaggio del rivelatore innanzitutto si è attuata un'accurata pulizia delle superfici del cristallo e del PMT. Successivamente, le due componenti sono state incollate tra di loro in modo coassiale, utilizzando una pad silconica ad alta trasmissione ottica (EJ560), per ottimizzare l'accoppiamento ottico. Dopo aver oscurato la superficie rimanente, l'oggetto è stato inserito nel rivestimento di protezione, una struttura stampata usando come materiale l'acido polilattico ed impostando un'elevata densità in modo da isolare il più possibile le due componenti dall'esterno. Poi l'apparato è stato ricoperto da un nastro isolante nero, come ulteriore protezione dai possibili fotoni provenienti dall'esterno ed il risultato è riportato nella Figura [1.1].

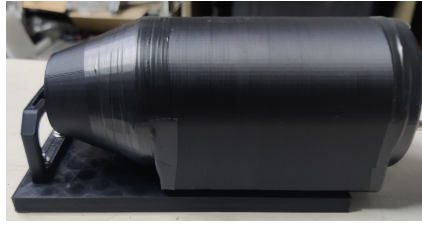


Figura 1.1: Fotografia del rivelatore a scintillazione LBC.

Al momento il rivelatore è montato su una guida di supporto che permette l'inserimento con delle spine di una serie di portasorgenti o portacampioni dedicati che garantiscono una precisa collocazione della sorgente di misura rispetto al rivelatore.

1.2 Elettronica e software di acquisizione

Il DT5471 è un alimentatore ad alta tensione che può erogare fino a $3kV$ e $500\mu A$ (con un limite in potenza di $1W$); è alimentato tramite un cavo USB, mentre l'output in alta tensione avviene tramite un connettore SHV. Tramite un cavo USB si possono monitorare e programmare alcuni parametri, tra cui la pendenza della rampa di uscita (da 1 a $500V/s$) e la risoluzione (fino a $10nA$).

Il DT5725 è un sistema di acquisizione digitale in grado di registrare forme d'onda e allo stesso tempo di effettuare una rielaborazione real time su FPGA su tali forme d'onda con algoritmi avanzati per il processamento di impulsi digitali, denominato anche *Digital Pulse Processing* (DPP). Lo strumento, che ha un campionatore a 14bit con una frequenza di campionamento fino a $250MS/s$, è adatto a segnali mediamente veloci (ovvero che possono essere rappresentati da un sistema con campionamento fino a $4ns$), come quelli provenienti da scintillatori accoppiati ad un tubo fotomoltiplicatore (PMT), ma può essere utilizzato anche per rivelatori ad alta precisione, come ad esempio quelli al Silicio. I dati possono essere salvati con un'elevata frequenza di campionamento, includendo il salvataggio dell'istante temporale di campionamento per migliorare le prestazioni di acquisizione. L'acquisizione in DPP è completamente controllata dal software.



Figura 1.2: In sequenza: il DT5471 e il DT5725.

Il software utilizzato è ABCD (*Acquisition and Broadcast of CollectedData*), un sistema di acquisizione dati (DAQ) distribuito, nel quale ogni task di acquisizione è gestito da un processo separato. Nelle successive acquisizioni dati, il sistema viene impostato in modo tale da restituire direttamente lo spettro del campione in analisi, avendo in input il segnale proveniente dal Digitizer. Per ottenere questa impostazione, è necessario inizializzare alcuni parametri per il salvataggio e l'integrazione del segnale. Il primo studio di caratterizzazione eseguito in questa tesi è consistito nella ricerca dei parametri di integrazione che ottimizzano la risoluzione in energia del detector.

La Figura [1.3](#) illustra 3 dei parametri principali che verranno variati nel presente lavoro di tesi: il Pretrigger, che rappresenta il numero di samples precedenti al punto di Trigger da cui il sistema inizia a salvare i dati; il Preact, il numero di samples prima del Trigger dal quale il software inizierà a integrare il segnale; il Longgate, il numero di passi che vengono considerati per l'integrazione.

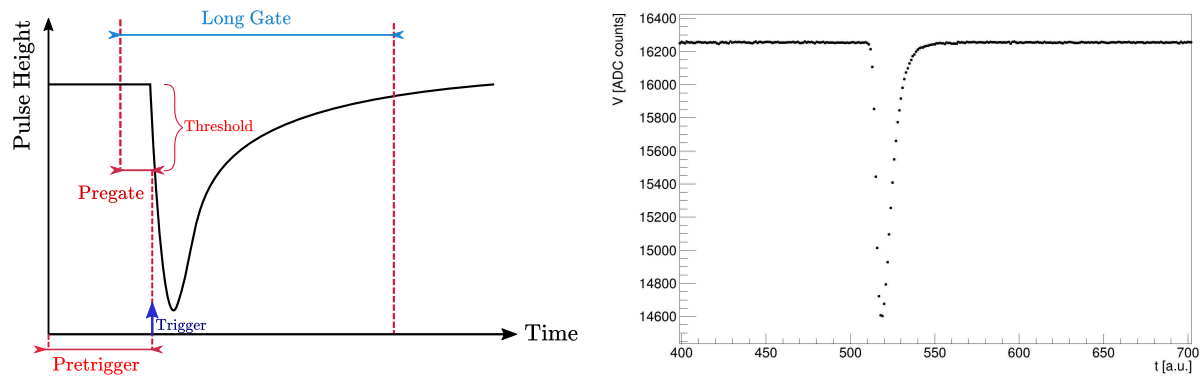


Figura 1.3: A sinistra: visualizzazione dei principali parametri di ABCD su un generico segnale. A destra: esempio di segnale acquisito con il rivelatore a scintillazione LBC.

A seconda dei segnali che si vogliono analizzare utilizzando lo scintillatore in questione, bisognerà avere una configurazione ottimale dei parametri del sistema di acquisizione.

Capitolo 2

Caratterizzazione del rivelatore

Questo capitolo tratterà la caratterizzazione sperimentale del rivelatore a scintillazione LBC. Una caratterizzazione dettagliata di un rivelatore è molto importante, in quanto fornisce informazioni e dati che verranno utilizzati da chiunque adopererà lo strumento, ora ed in futuro.

2.1 Ottimizzazione dei parametri di acquisizione

Per prima cosa si vogliono trovare i parametri da dare in ingresso al sistema di acquisizione per fare in modo che la risoluzione dei picchi dello spettro d'interesse sia la migliore possibile e per poter distinguere picchi molto vicini tra loro in uno stesso spettro¹. In generale, la risoluzione R in percentuale di un picco è determinata dalla sua larghezza e si può quantificare facendo il rapporto tra la *Fullwidth* ΔE ed il valore in energia E , ovvero: $R = \frac{\Delta E}{E}$.

Per calcolare questi valori, innanzitutto bisogna effettuare la calibrazione in energia dello spettro del segnale, in modo da convertire i valori da *ADCcounts* a *keV*. Questa calibrazione si effettua andando ad individuare le posizioni dei centroidi di alcuni picchi conosciuti ed andando ad interpolare queste ultime con i loro rispettivi valori in energia noti. Per il campione in esame i picchi che si prendono in considerazione sono quello a 59 keV dell'Am-241 e quelli a 511 keV e 1274 keV dell'Na-22.

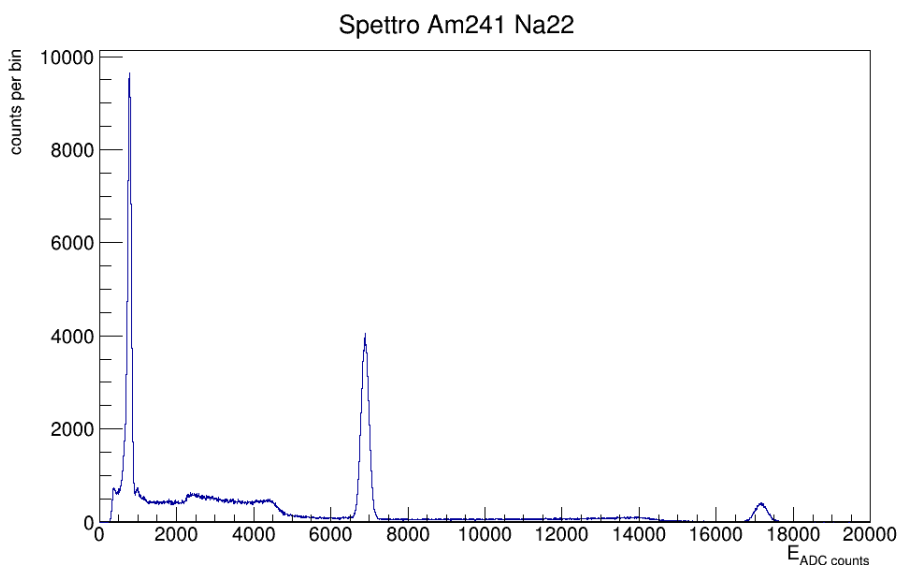


Figura 2.1: Spettro non calibrato di Am-241 e Na-22, con i parametri di acquisizione Pg=10, Lg=50, PTrigger=512 e tensione 600V.

¹Questo aspetto sarà importante per l'individuazione di alcuni picchi dell'Eu-152 che si esamineranno nel Capitolo 3.

Conoscendo i parametri di calibrazione, si può ora riscalarare l'asse x e calcolare la larghezza dei picchi in keV . Nella tabella 2.1 vengono riportati, come esempio, i valori che si ottengono scegliendo come parametri di acquisizione $Pg=10$, $Lg=50$, $PreTrigger=512$ e tensione pari a $600V$.

Tabella 2.1: Risoluzione R dei picchi a $59 keV$ dell'Am-241 e a $511 keV$ e $1274 keV$ dell'Na-22.

	59 keV	511 keV	1274 keV
R %	12.5 ± 0.1	3.36 ± 0.01	2.12 ± 0.02

La risoluzione dipende sensibilmente dagli estremi di integrazione utilizzati dal software per ottenere lo spettro: se il periodo nel quale avviene l'integrazione è troppo piccolo, si potrebbe perdere parte del segnale; se, al contrario, è troppo grande, si andrebbe a integrare un tratto dell'onda che non appartiene più al segnale, introducendo rumore non necessario. Allora, secondo la definizione di Longgate e di Pregate data nel Capitolo 1.2, è naturale che ad una loro variazione corrisponda una variazione degli estremi di integrazione e quindi di R . In pratica, però, il solo parametro che influisce considerevolmente sulla risoluzione è il LG. Il PG, infatti, definisce l'estremo di integrazione inferiore, che è sempre precedente al punto di Trigger. Essendo quest'ultimo ben definito, per piccoli valori di PG, R non varierà in modo significativo.

Di seguito viene riportato lo studio dell'andamento del picco a $511 keV$ in funzione del LongGate, tenuto fisso il PG. Lo studio è stato effettuato per tensioni di alimentazione diverse, in modo da evidenziare come varia R in funzione di V . Le tensioni considerate sono: $550 V$, $600 V$, $650 V$ e $700 V$.

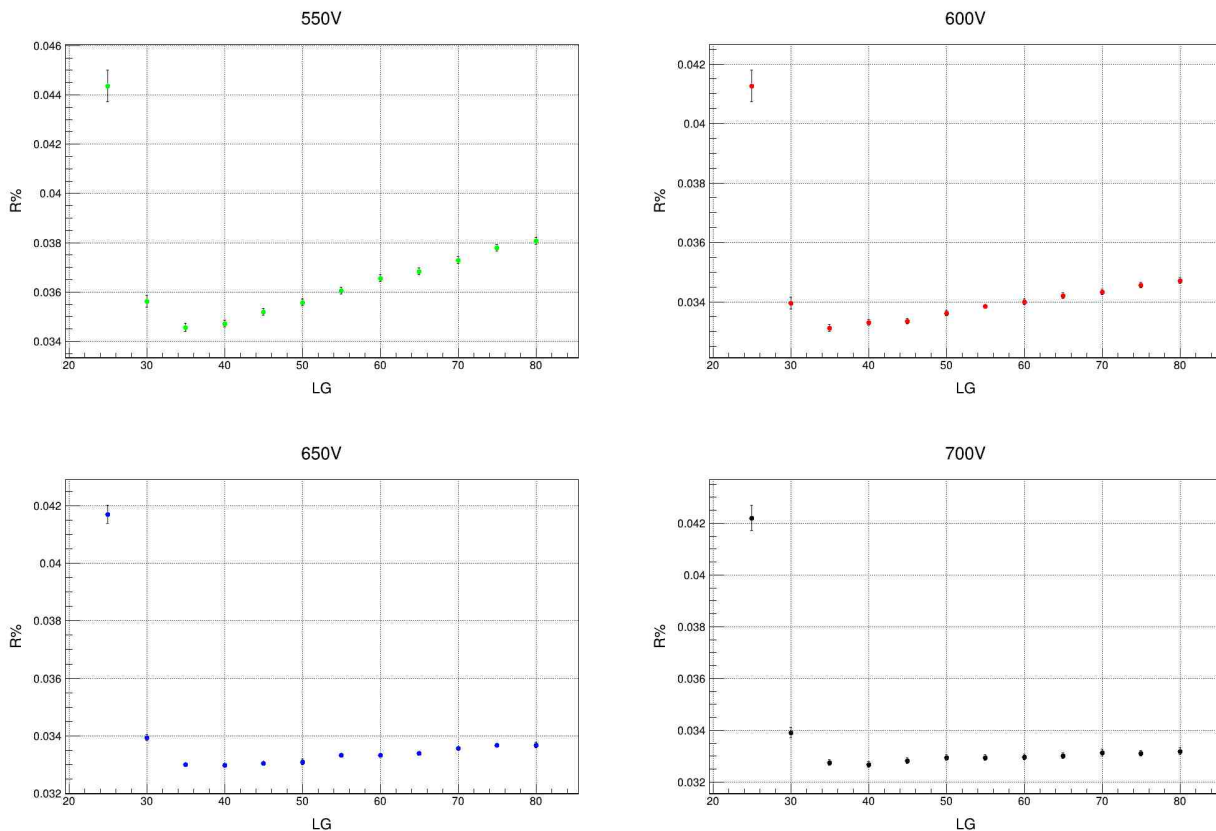


Figura 2.2: Grafici Risoluzione vs Energia a varie tensioni.

Dai grafici si nota immediatamente come R cambi a seconda della tensione: all'aumentare di V , il valore della risoluzione diminuisce leggermente. Questo comportamento non è di facile interpretazione, in quanto vi sono vari effetti presenti, tuttavia si può supporre che l'effetto predominante sia quello dovuto al fatto che all'aumentare della tensione c'è una più efficace e stabile moltiplicazione delle cariche. Nonostante ciò, la curva che segue R in funzione di LG è simile indipendentemente dalla

tensione V scelta: tutti e 4 i grafici presentano una ripida discesa fino al minimo, seguita da una zona di assestamento ed infine da una lenta risalita. Questo andamento conferma le nostre considerazioni precedenti sull'estremo superiore di integrazione del segnale. Tuttavia non è corretto assumere a priori che la posizione di minimo sia la stessa per ogni V . Infatti, se si considerano ancora più punti intorno alla posizione di minimo, si trovano i risultati² riportati nella tabella 2.2

Tabella 2.2: Risoluzione R del picco a 511 dell'Na-22 al variare di V e LG .

V [V]	550	600	650	700
LG	34	36	33	37
R %	3.43 ± 0.01	3.31 ± 0.01	3.30 ± 0.01	3.26 ± 0.01

Anche se, come detto precedentemente, il valore dell'estremo inferiore influenzi molto poco R , poiché il PreGate è un parametro che è necessario definire per utilizzare il rivelatore, si è deciso di studiare il valore ottimale anche del PG nel caso specifico di $V=700V$, in quanto sarà la tensione utilizzata per lo studio dei campioni nei paragrafi successivi. Lasciando fisso l'estremo superiore di integrazione a 27 passi dopo il PreTrigger (ossia il punto per cui si ottiene la R minima a 700V)³ e variando l'estremo inferiore, si trova un minimo a $PG=3$. E' però necessario precisare che le variazioni di R sono molto piccole, come ci si aspettava, e che i suoi valori per PG appartenenti all'intervallo $[1,10]$ rientrano tutti dentro un sigma dal valore del minimo. Comunque come valori finali dei parametri di acquisizione si è deciso di considerare $PG=3$ e $LG=30$.

2.2 Analisi del tempo morto

Il tempo morto τ di un rivelatore è definito come il minimo intervallo di tempo che deve intercorrere tra due eventi consecutivi affinché possano essere registrati come distinti. Esso è determinato da vari elementi del rivelatore, ma in particolare dall'elettronica di elaborazione del segnale.

Se un qualsiasi segnale arriva al rivelatore durante il tempo in cui l'elettronica sta processando o registrando un evento sarà ignorato o sovrapposto a quello precedente. In entrambi i casi, l'effetto complessivo della presenza del tempo morto τ è la perdita di eventi nel picco di full-energy.

Questa perdita di eventi si può evidenziare analizzando l'andamento del numero di conteggi N sotto ad un determinato fotopicco in funzione del rate di eventi percepiti dal sistema. Il calcolo di N è stato effettuato con due metodi differenti. Il primo metodo consiste nel prendere come N il valore dell'area sotto il fit gaussiano che meglio approssima il picco⁴. Nonostante sia il metodo più immediato, in questo caso N dipende da alcuni parametri che possono variare a seconda del campione preso in considerazione, tra cui la sigma della gaussiana, la porzione di spettro presa in considerazione per il fit, la forma dello spettro e il tipo di fondo sotto il picco. Questo tipo di incertezze sistematiche non sono state studiate. L'incertezza statistica associata ad N è data dalla somma quadratica dell'incertezza relativa al numero di conteggi totali sotto al picco e dell'incertezza relativa al numero di conteggi appartenenti al fondo, supposto lineare, direttamente restituita dal programma utilizzato per il fit. Se, invece, si calcola N come l'integrale tra due estremi fissi, che restano gli stessi per tutti i campioni, le dipendenze appena discusse vengono eliminate. In questo consiste il secondo metodo. Bisogna precisare che in questo secondo caso, conteggiando anche il fondo, se il fondo varia in maniera diversa dal fotopicco a causa di vari effetti (ad esempio il pile-up), i risultati possono essere leggermente alterati. Se però il fotopicco è dominante, questo contributo può essere considerato, in prima approssimazione, trascurabile. Nella Figura 2.3 vengono riportati i due andamenti⁵

²I valori di LG corrispondono ai minimi per ogni V . Tuttavia si vuole precisare che, detto x il minimo, i valori compresi tra $[x-2, x+2]$ sono comunque molto vicini al valore di minima risoluzione

³Nei calcoli precedenti si era trovato che il minimo per $PG=10$ era $LG=37$, da cui si ricava che i due estremi di integrazione sono 10 prima del PT e $37-10=27$ dopo il PT

⁴I fit in realtà sono dati da una gaussiana sopra ad una retta, che rappresenta il fondo dello spettro

⁵Per questo e i successivi calcoli, allo spettro acquisito dalle varie sorgenti è stato sempre sottratto il fondo ambientale, tramite una misura precedente di quest'ultimo.

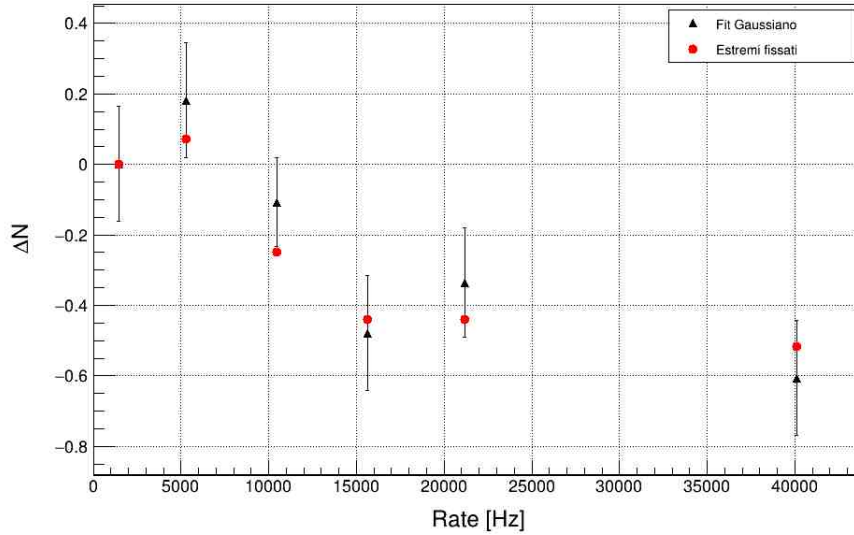


Figura 2.3: Differenza assoluta del numero di conteggi N sotto il picco a $1274keV$ del Na-22 a rate differenti rispetto al valore di N per rate= $1 kHz$.

Come ci si aspetta, dal grafico si nota la presenza di una leggera diminuzione di N all'aumentare del rate: se il numero di eventi che arrivano sul rivelatore al secondo aumenta, è normale che, a causa del tempo morto, ci sia una maggiore perdita di eventi. Tuttavia la perdita non è particolarmente grande, quindi ci aspettiamo che il tempo morto sia molto piccolo.

Per determinare il valore del tempo morto, una possibilità è quella di andare a studiare la distribuzione degli intervalli di tempo tra due conteggi consecutivi. Essendo un processo Poissioniano, la distribuzione dovrebbe avere la forma di una semplice esponenziale decrescente. Tuttavia il tempo morto altera questa distribuzione, comportando un offset iniziale, pari al suo valore. Facendo uno

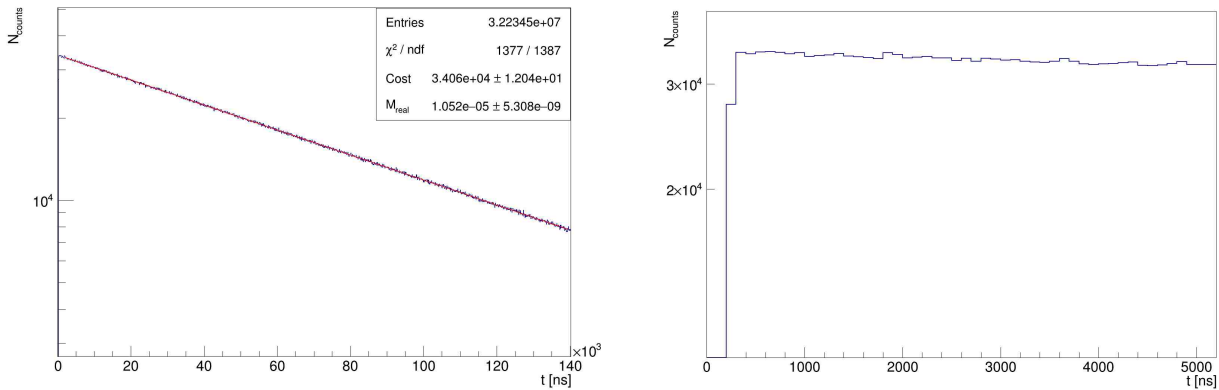


Figura 2.4: A sinistra, la distribuzione degli intervalli di tempo tra due conteggi consecutivi a Rate= $10 kHz$. A destra, zoom sulla prima parte per vedere la presenza del tempo morto.

zoom sulla prima parte del grafico troviamo quindi un valore approssimativo di τ pari a $212ns$.

A questo punto si può fare un fit esponenziale dell'andamento complessivo. Il valore della pendenza del fit corrisponde al rate reale M_{real} , ossia il numero di eventi per unità di tempo che riceve il rivelatore. Nel campione analizzato nella Figura 2.4 si nota come il test del è molto buono e che il rate reale risulta pari a $10.521 \pm 0.005 kHz$. Quindi rispetto al rate misurato dal rivelatore, pari a $10.497 kHz$, la perdita di eventi causata dal tempo morto in questa situazione risulta essere molto piccola.

Come è stato detto in precedenza, il tempo morto è dato da tutti i componenti dell'elettronica del rivelatore. Di conseguenza, τ dipenderà anche dal LongGate: all'aumentare del LongGate, il tempo di integrazione aumenta e di conseguenza aumenta anche il tempo in cui il rivelatore non registra nuovi eventi. Andando perciò a calcolare τ per 3 campioni di dati allo stesso rate, ma con LG differenti, e

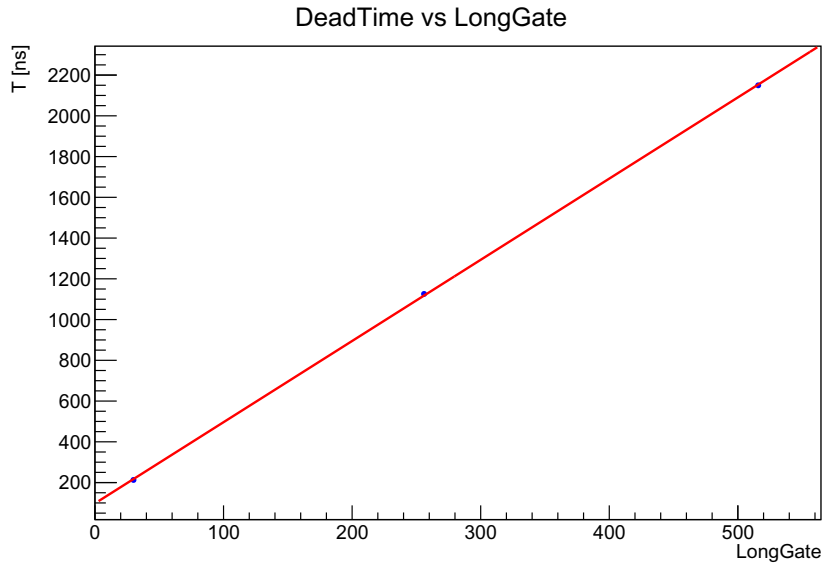


Figura 2.5: Interpolazione lineare del tempo morto in funzione del LongGate.

facendo un'interpolazione lineare, ritroviamo una retta del tipo $\tau = m \cdot LG + q$, dove $m = 3.98 \pm 0.03 \text{ ns}^{-1}$ indica l'aumento di tempo morto ad ogni singolo passo di LG, mentre $q = 96 \pm 1 \text{ ns}$ rappresenta il tempo morto quando $LG=0$, quindi è il tempo morto intrinseco, legato ai tempi di attivazione del trigger e del bus di comunicazione. Si noti che m coincide con il tempo di campionamento nominale, pari a 4 ns , come ci si aspettava. Di seguito viene riportata la riduzione in percentuale rispetto al rate vero sotto al fotopicco 1274 keV per queste 3 acquisizioni, confrontate con la riduzione attesa, calcolata dalla relazione nota⁷:

$$M_{misurato} = \frac{M_{real}}{1 + M_{real} \cdot \tau} \quad (2.1)$$

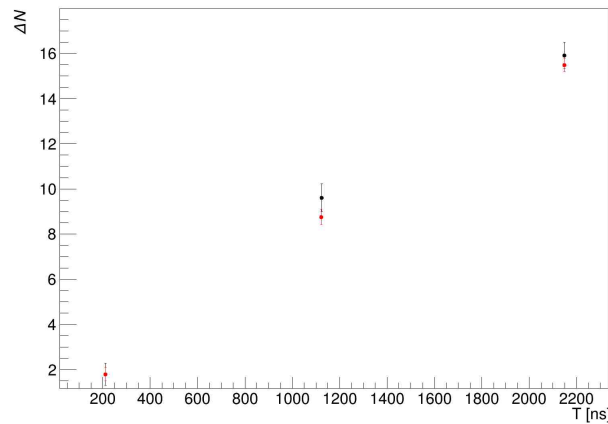


Figura 2.6: Differenza in percentuale di conteggi sotto al picco 1274 keV : in rosso i dati teorici, in nero i dati sperimentali.

⁷ M_{real} è stata calcolata a partire dai dati del campione con $LG=30$. L'incertezza ad essa associata è stata ottenuta per propagazione delle incertezza su $M_{misurato}$ e sul τ .

2.3 Efficienza e Linearità

Un secondo aspetto di caratterizzazione del rivelatore è la linearità nella risposta in energia. Questo tipo di rivelatori sono generalmente abbastanza lineari, tuttavia per alti segnali (alta energia gamma e/o alta HV) ci può essere una progressiva perdita di linearità. Il PMT, infatti, presenta un intervallo di linearità limitato e all'aumentare della tensione immessa il limite di energia per cui si ha una risposta lineare diminuisce.

Per controllare la linearità della risposta del rivelatore, è stata effettuata un'interpolazione lineare della posizione di 9 picchi relativi a raggi gamma (tutti con energia minore di 500 keV⁸) con la loro energia. I picchi provengono da sorgenti differenti (Am-241, Co-60, Ba-133 ed Eu-152) e le misure di questi spettri sono avvenute mantenendo per tutte gli stessi parametri di acquisizione, ovvero quelli ottimali stimati precedentemente, e con la tensione di alimentazione pari a 700 V. Le incertezza statistiche prese in considerazione per questo fit corrispondo agli errori sulla posizione dei picchi, dati dal fit gaussiano che meglio approssima il picco, proiettati sulle energie.

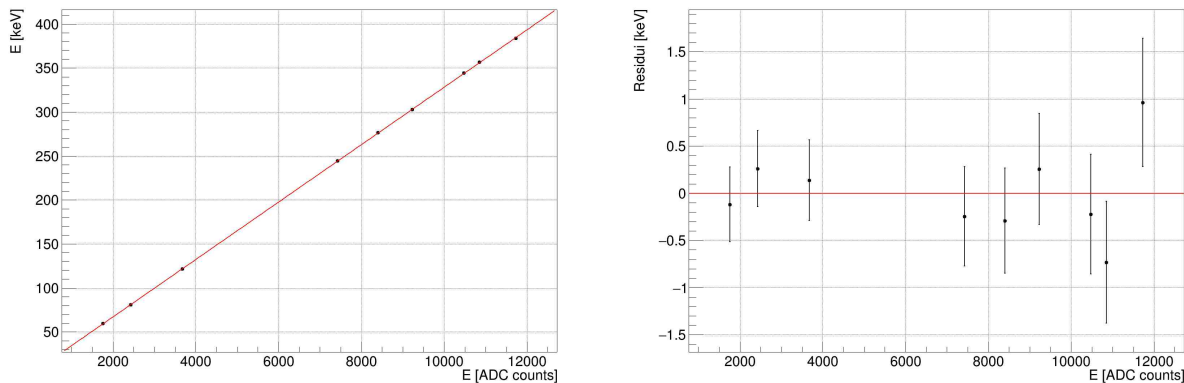


Figura 2.7: Interpolazione lineare $y=m \cdot x+q$ per la calibrazione in energia con i residui.

Tabella 2.3: Risultati dell'interpolazione lineare relativa alla figura 2.7.

m [keV]	q [keV]	$\frac{\chi^2}{dof}$
$(3.266 \pm 0.005) \cdot 10^{-2}$	1.9 ± 0.4	0.26

Si osservi che l'ipotesi di linearità risulta in prima approssimazione verificata, come si evince dal valore del $\frac{\chi^2}{dof}$, minore di uno, e dal fatto che i residui risultano coperti (Figura 2.7). Quindi, come ci si poteva aspettare, per energie sufficientemente basse la linearità è ben rispettata e di conseguenza i valori ottenuti per la retta interpolante potranno essere utilizzati per la calibrazione in energia negli studi successivi.

Tenendo quindi i risultati dell'interpolazione precedente come retta di calibrazione e andando a vedere lo scostamento delle posizioni dei picchi ad energie maggiori di 500 keV misurate sugli spettri acquisiti con quelle attese dalla retta precedente, si può osservare che, compatibilmente con gli errori di misura, il range di energie analizzato si mantiene lineare (Figura 2.8). Infatti, all'aumentare dell'energia, le posizioni dei picchi iniziano a scostarsi dall'andamento della retta interpolante, senza tuttavia allontanarsi troppo da quest'ultima. Quindi anche per energie più grandi la retta di calibrazione può dare una stima sull'energia dei vari picchi presi in considerazione, anche se con una precisione minore. Per energie inferiori a 1 MeV, invece, si può affermare che la linearità è mantenuta con una buona precisione.

⁸Poiché per le misure di Ag-111 si è interessati a energie minori di 500 keV.

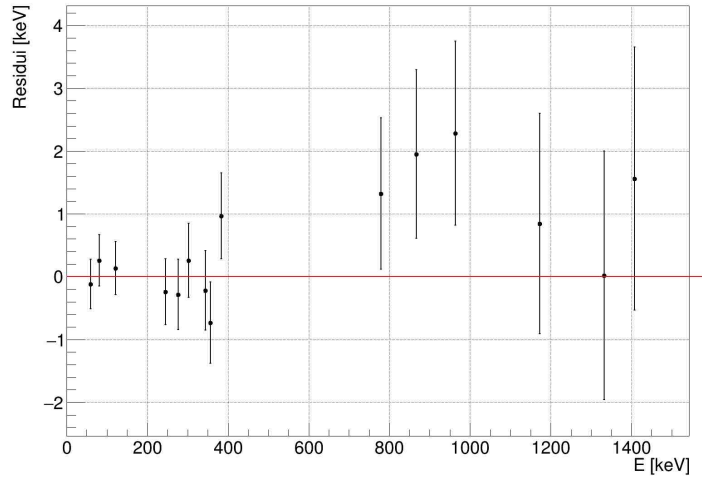


Figura 2.8: Andamento delle posizioni dei picchi rispetto alla retta di calibrazione precedentemente ottenuta.

Per concludere la caratterizzazione del rivelatore, è stato effettuato uno studio dell'efficienza del rivelatore al variare dell'energia dei fotopicchi analizzati, mantenendo fissa la posizione delle sorgenti (5 cm), in modo che l'angolo solido sotteso dal rivelatore per tutte queste misure resti costante. L'efficienza assoluta per una radiazione γ è definita come il rapporto tra il numero di eventi relativi a γ che hanno interagito nel rivelatore e il numero γ emessi dalla sorgente. Quindi, per una radiazione γ di energia E_γ , l'efficienza di fotopicco ϵ_γ è data dalla relazione

$$\epsilon_\gamma = \frac{N}{A \cdot B_\gamma \cdot T} \quad (2.2)$$

dove N è il numero di conteggi sotto il picco di energia E_γ , A è l'attività della sorgente al tempo della misura, B_γ è il *branching ratio* della transizione e T il tempo di acquisizione. L'attività A della sorgente a sua volta è data da

$$A = A_0 \cdot e^{-\frac{\ln(2) \cdot T_{1/2}}{\Delta t}} \quad (2.3)$$

con A_0 l'attività stimata a $t = 0$, a cui è associata un'incertezza pari al 3 %, $T_{1/2}$ il tempo di dimezzamento associato alla sorgente e Δt il tempo dopo la stima di A_0 a cui si effettua la misura. Le incertezze associate ai valori di efficienza sono ottenute tramite propagazione delle incertezze statistiche delle grandezze presenti nella (2.2), ad eccezione di quella associata a T , in quanto trascurabile. Le incertezze associate agli N , calcolati tramite un fit gaussiano sopra un fit lineare (per descrivere la presenza di un fondo), sono state ottenute in modo analogo a quanto fatto nel paragrafo precedente.

La Figura 2.9 riporta un andamento tipico per l'efficienza assoluta di un rivelatore: a basse energie cresce fino ad arrivare ad un massimo, in questo caso intorno a 60 keV ; dopodiché l'efficienza diminuisce all'aumentare dell'energia delle radiazioni, con un andamento quasi esponenziale. Tuttavia i campioni a disposizione sono relativamente pochi, soprattutto per energie minori del punto di massimo, di conseguenza non è stato possibile studiare la curva di efficienza in modo più accurato.

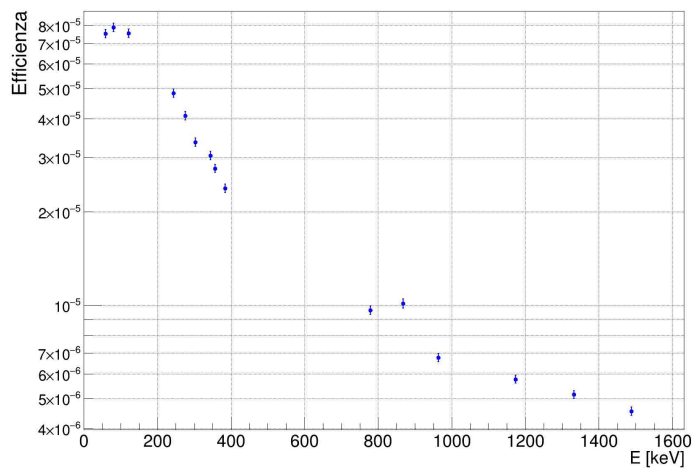


Figura 2.9: Grafico andamento dell'efficienza del rivelatore in funzione dell'energia dei raggi gamma.

Si nota, inoltre, che alcuni dati si discostano dall'andamento generale, come ad esempio l' ϵ_γ relativo alla radiazione a 867 keV dell'Eu-152. Questo potrebbe essere dovuto alla presenza di altri raggi gamma, ad esempio quello relativo all'energia di 841 keV , che comportano un effetto di pile up sul picco esaminato. Tuttavia, l'errore sistematico principale risiede nel fit utilizzato per la stima di N . Questo errore da associare a N verrà studiato nel prossimo capitolo.

Capitolo 3

Misure di produzione dell'Ag-111 presso il laboratorio Lena

Il Laboratorio Energia Nucleare Applicata (LENA) è un centro di servizi interdipartimentale dell'Università degli Studi di Pavia che gestisce un reattore nucleare di ricerca, un ciclotrone per la produzione di radioisotopi e altre sorgenti di radiazioni ionizzanti mettendole a disposizione di ricercatori dell'Ateneo pavese e di altri utenti, pubblici e privati, per lo svolgimento di attività di ricerca applicata, di didattica e di servizio.

Il reattore presente al suo interno, il TRIGA Mark II, è un reattore nucleare della potenza nominale in regime stazionario di 250 kW e un flusso totale massimo di circa $2 \cdot 10^{13}$ neutroni $cm^{-2}s^{-1}$, il cui utilizzo consiste principalmente nella fornitura di servizi di irraggiamento e di misure nucleari, e nel supporto ad attività di ricerca di base e applicata.



Figura 3.1: Reattore TRIGA Mark II collocato a LENA, Pavia.

La peculiarità di questo rivelatore risiede nelle sue elevate caratteristiche di sicurezza, dovute alle proprietà fisiche del combustibile nucleare impiegato. Questo, infatti, è costituito da una lega metallica di uranio e zirconio, all'interno del quale viene fatto diffondere dell'idrogeno, che conferisce al combustibile nucleare la proprietà di essere anche un moderatore, ossia di ridurre la velocità dei neutroni prodotti dalla fissione nucleare.

Il reattore è dotato di diversi canali d'irraggiamento, che possono essere di due tipologie: in-core e out-core. I canali di irraggiamento in-core penetrano verticalmente nel nocciolo. Uno di questi è il Canale Centrale, che è posizionato al centro della griglia spaziatrice del nocciolo ed è utilizzato

quasi esclusivamente per la realizzazione di analisi per attivazione neutronica e per la produzione di radioisotopi [6].

3.1 Verifica del rapporto isotopico

Questa parte del lavoro di tesi si propone di verificare il rapporto isotopico del Pd-110 tra un campione di palladio naturale e un campione di palladio arricchito. Tale rapporto è stato misurato per mezzo del rivelatore a scintillazione LBC. Lo scopo di questa discende da alcuni risultati precedenti non conformi alle aspettative, in cui il rapporto isotopico era risultato inferiore a quello calcolato sulla base dei valori noti. Nelle precedenti misure i due campioni erano stati misurati in momenti differenti, introducendo quindi una fonte di incertezza aggiuntiva di entità difficilmente quantificabile associata al reale flusso integrale di neutroni in ogni irraggiamento.

Innanzitutto i due campioni sono stati irraggiati assieme nel Canale Centrale del reattore TRIGA Mark II del LENA, in modo da garantire che il flusso di neutroni incidente sui campioni fosse lo stesso per entrambi. All'interno del reattore, il Pd-110 presente all'interno dei campioni effettua una cattura neutronica, diventando quindi Pd-111. Questo isotopo instabile del palladio può essere prodotto in due stati differenti: nello stato fondamentale, con un tempo di dimezzamento $T_{1/2}$ pari a 23.4 minuti, e nel primo stato eccitato, uno stato metastabile con $T_{1/2}$ pari a 5.5 ore. Entrambi i due stati del Pd-111 decadono β^- nell'Ag-111, il quale ha invece un tempo di decadimento molto più lungo, pari a 7.45 giorni. A sua volta, l'Ag-111 decade β^- nel Cd-111, che invece è stabile.

Di seguito vengono riportati gli spettri dei due campioni acquisiti¹ dopo 24 ore dall'irraggiamento: in questo modo le righe di emissione del Pd-111, ormai decaduto quasi del tutto, non andranno a compromettere la visibilità delle righe spettrali relative all'Ag-111.

Le misure hanno lo stesso tempo di acquisizione T pari a 20 minuti e sono state effettuate consecutivamente. In questo modo, il tempo trascorso tra le misure risulta trascurabile rispetto al tempo di dimezzamento dell'Ag-111 (ovvero pari a 7.45 giorni), e quindi non incide sull'attività dei due campioni.

Il rapporto isotopico può essere stimato tramite il rapporto tra le attività dell'Ag-111 dei due campioni normalizzate per la loro massa (in quanto i due campioni presentano due masse leggermente diverse). Infatti, l'Ag-111 prodotto deriva esclusivamente dal Pd-110: quindi una misura dell'emissione di Ag-111 da parte di un campione fornisce una stima della quantità di Pd-110 presente prima dell'irraggiamento di neutroni nel campione stesso.

L'attività viene stimata attraverso il rapporto tra il numero di conteggi presenti sotto al picco di una riga gamma dell'Ag-111, la riga a 342 keV, e il prodotto tra il tempo di acquisizione T , l'efficienza ϵ_γ e il Branching-Ratio B_γ relativi a questa specifica radiazione:

$$A = \frac{N}{\epsilon_\gamma \cdot B_\gamma \cdot T}. \quad (3.1)$$

Avendo preso le misure per lo stesso tempo di acquisizione e poiché, con buona approssimazione, l'efficienza ϵ_γ è uguale per le misure, in quanto i campioni si trovano entrambi a 20 cm di distanza dalla sorgente, allora la stima del rapporto isotopico si traduce in un rapporto tra i due valori di N normalizzati per le loro rispettive masse m . La stima delle incertezze associate a queste due grandezze è stata effettuata in modo analogo a quanto descritto nel Capitolo 2.3 .

$$R_{Pd-110} = \frac{N_{naturale} \cdot m_{arricchito}}{N_{arricchito} \cdot m_{naturale}}. \quad (3.2)$$

¹I parametri di acquisizione utilizzati sono quelli ottimali stimati nel Capitolo 2.1 per la tensione di alimentazione pari a 700V.

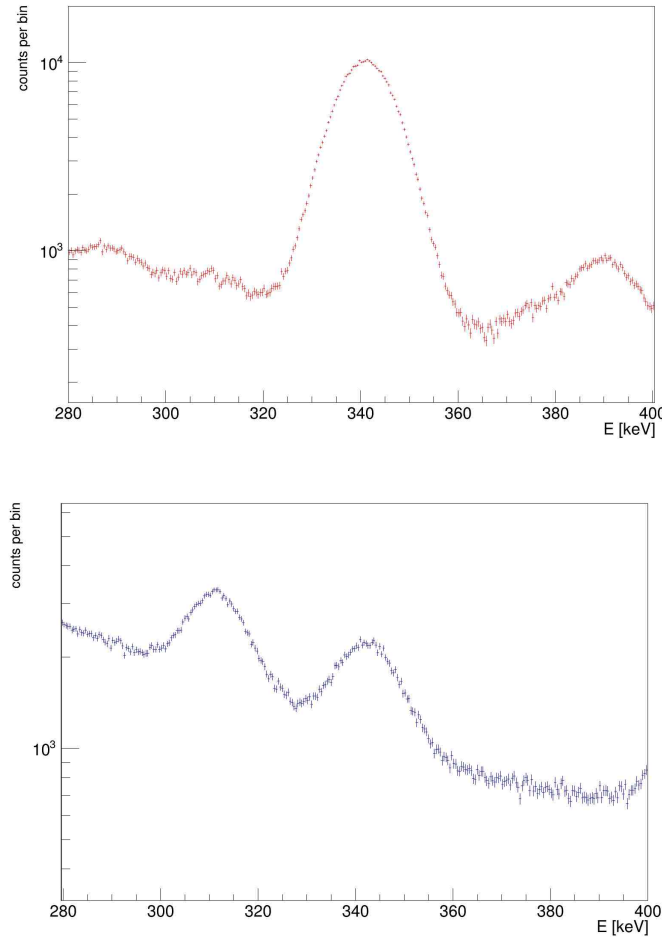


Figura 3.2: Spettri provenienti rispettivamente del campione di palladio arricchito (in alto) e del campione di palladio naturale (in basso) con focus sulla riga 342 keV dell'Ag-111.

Per il calcolo si è deciso di considerare la radiazione a 342 keV , in quanto il suo picco, oltre ad essere di facile individuazione, non presenta effetti di fondo che danno un contributo rilevante al numero di conteggi sotto allo stesso ². I risultati che si ottengono sono riportati nella seguente tabella ³.

Tabella 3.1: Rapporti isotopici

T [s]	R_{Pd-110}	$R_{Pd-110_{teo}}$	Compatibilità
3600	$11.2 \pm 0.1\%$	11.72 %	5

Nonostante il rapporto isotopico trovato è molto vicino a quello calcolato teorico, risolvendo quindi le problematiche ottenutesi nelle misure precedenti; i due risultati non risultano compatibili, quindi si suppone la presenza di qualche errore sistematico non tenuto in considerazione. La prima fonte di errore sistematico è dovuto al fit utilizzato per la stima della grandezza N . Infatti, questo valore può variare a seconda degli estremi di integrazione utilizzati e a seconda del fit utilizzato per stimare il fondo (lineare o esponenziale). E' stato dunque eseguito uno studio semplificato su questo errore sistematico, derivando l'incertezza dal range di valori a cui appartiene N variando questi parametri, che risulta pari a 0.2 % per $N_{arricchito}$, mentre 0.3 % per $N_{naturale}$. Il risultato finale per il rapporto

²Inoltre la riga a 342 keV è una *isotopic fingerprint* dell'Ag-111: viene prodotta nella transizione energetica dallo stato $\frac{3}{2}^+$ del Cd-111, a cui si arriva solamente da un decadimento β^- dell'Ag-111, allo stato fondamentale. Di conseguenza la presenza di questa riga è una conferma dell'effettiva presenza dell'Ag-111 nei campioni analizzati ⁷

³Il valore del rapporto isotopico teorico è stato ottenuto facendo il rapporto tra la quantità dell'isotopo Pd-110 presente nel palladio naturale, pari a 11.72 %, con quella presente nell'isotopo arricchito, pari a circa 99.99 %.

isotopico risulta quindi essere pari a $11.2 \pm 0.4 \%$, con una compatibilità con il valore teorico pari a 1.2. Si ritiene infine necessario precisare che la stima del rapporto isotopico misurato potrebbe essere ulteriormente migliorata considerando le geometrie differenti dei due campioni. I due campioni esaminati, infatti, hanno forme differenti (in polvere il palladio arricchito e in sottili schegge il palladio naturale), quindi l'ipotesi che l'angolo sotteso dal rivelatore sia lo stesso per entrambi potrebbe aver comportato un errore sistematico. Tuttavia, entrambi i campioni sono stati inseriti all'interno di una provetta dal raggio di 0.5 cm , quindi la loro diversa disposizione spaziale all'interno della provetta, che si trova a 20 cm dal rivelatore, comporta una variazione così piccola da poter essere considerata trascurabile.

Capitolo 4

Conclusioni

Questo lavoro di tesi ha trattato la caratterizzazione del rivelatore a scintillazione LBC e i risultati dei primi test di utilizzo del suddetto.

Il rivelatore ha una risoluzione molto buona che a 511 keV è pari a $R = 3.43 \pm 0.01 \%$. La risposta del detector è abbastanza lineare entro 1 MeV di energia e l'efficienza a 5 cm a 344 keV vale $\epsilon_\gamma = (3.04 \pm 0.09) \cdot 10^{-5}$. Inoltre è stato analizzato il tempo morto e si è verificato che la sua presenza non comporta una perdita rilevante di eventi fino a rates di acquisizione di qualche decina di kHz, valori tipici per le misure dell'esperimento ISOLPHARM.

Infine è stato valutato il rapporto isotopico del Pd-110 tra un campione di palladio naturale e un campione di palladio arricchito. Considerando i principali errori sistematici, il valore del rapporto risulta essere $R_{Pd-110} = 11.2 \pm 0.4 \%$, valore in buono accordo con i valori teorici, che conferma il corretto funzionamento del detector.

Alla luce di questi risultati, la caratterizzazione si può ritenere conclusa e il rivelatore può essere considerato pronto per entrare in funzione all'interno del progetto ISOLPHARM.

Bibliografia

- [1] https://isolpharm.pd.infn.it/web/wp-content/uploads/2019/07/ISOLPHARM_EIRA_proposal-PDF.pdf
- [2] <https://www.hamamatsu.com/jp/en/product/optical-sensors/pmt.html>
- [3] <https://www.caen.it/products/dt5471/>
- [4] <https://www.caen.it/products/dt5725/>
- [5] Cristiano Fontana, *ABCD software*, disponibile al link "https://gitlab.com/cristiano.fontana/abcd".
- [6] <https://lena.unipv.it/wp-content/uploads/2020/03/50mo-LENA-web.pdf>
- [7] <https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html>