

UNIVERSITA' DEGLI STUDI DI PADOVA

Dipartimento di Fisica e Astronomia "Galileo Galilei"
Corso di laurea in Fisica

Tesi di Laurea

Realizzazione e test di un prototipo dimostratore per la
misura on-line della radioattività nelle acque

Relatore

Prof. Marcello Lunardon

Correlatore

Dott. Paolo Sartori

Laureando

Sabrina Ciarlantini

Anno Accademico 2020-2021

Indice

1	Introduzione	1
1.1	Monitoraggio	1
1.1.1	Normativa Europea	1
1.1.2	Modalità campionamento	1
1.1.3	Progetto TAWARA_RTM	2
1.1.4	Criticità emerse nel progetto e sviluppi successivi: il progetto SID2019	2
2	Il Rivelatore	3
2.1	Come è fatto	3
2.2	Test Preliminari	4
2.3	Test con sorgenti alfa e beta	4
2.3.1	Apparato Sperimentale	4
2.3.2	Misure rivelatore alfa	5
2.3.3	Misure rivelatore alfa beta	5
3	Analisi dati	7
3.1	Particelle alfa	7
3.1.1	Elaborazione segnali	7
3.1.2	Sorgente su padellino e confronto misure	9
3.1.3	Sorgente su supporto con rivelatore alfa	10
3.2	Particelle beta	12
3.2.1	Monitoraggio rate	12
3.2.2	Tenuta di luce	13
4	Costruzione del prototipo	15
4.1	Assemblaggio	15
5	Conclusioni	17
	Bibliografia	19

Capitolo 1

Introduzione

L'acqua per consumo umano rappresenta sicuramente il bene comune più importante per la società, dal punto di vista non solo vitale ma anche economico, ed è da sempre al centro dell'attenzione mondiale per quanto riguarda la distribuzione e il controllo.

1.1 Monitoraggio

Il monitoraggio dell'acqua e delle sostanze in essa disciolte è un problema cruciale che deve essere affrontato da ogni Stato per la tutela dei suoi cittadini.

1.1.1 Normativa Europea

La direttiva numero 51 della Comunità Europea dell'energia atomica (EURATOM), sottoscritta nell'ottobre del 2013, regola il monitoraggio dell'acqua destinata al consumo umano, ossia tutte le acque trattate o meno, ad uso alimentare o domestico, fornita al cittadino sia tramite reti di distribuzione che tramite cisterne, e quella destinata all'impresa alimentare, per quanto concerne il rischio radiologico-nucleare. In particolare stabilisce i requisiti per la tutela della salute della popolazione in materia di sostanze radioattive presenti nell'acqua destinata al consumo umano.

Essa contiene norme e limiti massimi che ogni stato membro dell'unione è tenuto a rispettare, lasciando questi ultimi liberi di adottare misure più stringenti: per ogni radionuclide che si potrebbe trovare nell'acqua sono stati fissati dei limiti oltre i quali ciascuno stato membro può valutare se sia un rischio per la salute umana e quindi adottare provvedimenti correttivi.

In particolare stabilisce i livelli massimi di screening dell'attività alfa e beta totali, che sono quelli concernenti lo scopo di questa tesi, posti a 0.1 Bq/l e 1 Bq/l rispettivamente, corrispondenti a una dose efficace calcolata di 0.1 mSv su un anno di ingestione; mentre i limiti di rivelazione sono 0.04 Bq/l e 0.4 Bq/l (pari al 40% del valore di screening). [1]

Sono esclusi dalla normativa il Radon, per cui sono state stilate direttive apposite, e il Potassio-40, che essendo in equilibrio metabolico nel corpo umano, non si accumula.

1.1.2 Modalità campionamento

I radionuclidi sono controllati con campionamenti periodici, la cui frequenza varia in base al volume del bacino di acqua considerato, fino ad un massimo di 10 campioni annui per volumi superiori a centomila metri cubi. Si esegue quindi un campionamento discreto che però è soggetto a due tipi di criticità:

- La possibilità di rilevare falsi positivi, ossia situazioni in cui c'è uno sfioramento del limite consentito per un determinato radionuclide dovuto però a picchi anomali riscontrati in corrispondenza del campionamento, e quindi non rappresentativi della concentrazione media annua.
Per riconoscere questa situazione da quella potenzialmente pericolosa di effettivo aumento della concentrazione del radionuclide nell'arco dell'anno, si effettuano diversi ricampionamenti periodici con frequenza stabilita da ogni stato membro. Se l'attività risulta superiore è necessario effettuare un'analisi relativa agli specifici radionuclidi.
- La natura discreta delle modalità di controllo.
Non essendoci monitoraggio continuo, è possibile che il bacino d'acqua si contami senza che la contaminazione

venga immediatamente rilevata. Potrebbe quindi passare un notevole lasso temporale tra le due fasi, con conseguente ritardo nell'attivazione di controlli secondari ed eventualmente nella comunicazione del pericolo rilevato alla popolazione.

Questo ha conseguenze potenzialmente disastrose per la salute dei cittadini: una delle vie più comuni e veloci per l'ingestione di sostanze radioattive e quindi di contaminazione dell'organismo umano è proprio l'acqua potabile distribuita alla cittadinanza direttamente nelle abitazioni da stabilimenti pubblici. In aggiunta non si può ignorare anche l'aspetto della sicurezza: la contaminazione dell'acqua potabile può avvenire sì fatalmente a causa di disastri nucleari accidentali, ma può anche come conseguenza di attività dolose. Avere un monitoraggio efficiente dei bacini d'acqua quindi può scongiurare anche possibili attacchi terroristici.

1.1.3 Progetto TAWARA_RTM

Il progetto TAWARA nasce come progetto europeo con lo scopo di creare una piattaforma di misurazione e controllo real time della radioattività dell'acqua, confrontando i valori con i limiti stabiliti dalla legislazione europea. E' partito a fine del 2013 e si è concluso nel 2016 con un'installazione finale dimostrativa presso l'acquedotto di Varsavia (PL).

Per raggiungere questo scopo, il sistema di monitoraggio di TAWARA_RTM è stato organizzato di tre sezioni, ognuna delle quali adibita ad una funzione ben precisa.

La prima consente la rilevazione istantanea e continua ad opera del RTM (ossia il Real Time Monitor System) dell'attività radioattiva in acqua, confrontandola con i limiti consentiti.

1.1.4 Criticità emerse nel progetto e sviluppi successivi: il progetto SID2019

La tecnica innovativa di rivelazione di radioattività dell'acqua utilizzate in TAWARA_RTM porta con sé delle problematiche a cui i rilevatori di particelle non sono soggetti nell'uso comune.

Innanzitutto le particelle non si muovono in un gas più o meno rarefatto o addirittura nel vuoto, ma in un mezzo denso che è l'acqua: il cammino libero medio ad esse associato è molto corto. Ciò comporta che la loro rivelazione con detector di dimensioni standard sia piuttosto difficoltosa e soprattutto non efficiente: per questo sono necessari grandi aree attive di rilevazione, dell'ordine del 1 m². Nei primi test effettuati è stato usato un array di rilevatori industriali EJ-440 quadrato di circa 200 mm di lato, in modo da sposare l'esigenza di una grande area con la praticità di utilizzo, garantita dalla geometria scelta.

Inoltre il continuo contatto tra l'acqua radioattiva da analizzare e il rivelatore implica anche la contaminazione di quest'ultimo, che nel tempo provoca un aumento consistente dei conteggi di fondo e quindi un peggioramento della MDA (Minimum Detectable Activity), fino a valori inaccettabili rispetto alle specifiche richieste. E' necessario perciò garantire la massima idrofobicità all'apparato e costruire rivelatori facilmente decontaminabili. Queste criticità giustificano la ricerca di nuovi rivelatori di grande area che siano idonei alla misura e che non si contaminino con l'uso. E' questo il tema di ricerca del progetto dipartimentale SID2019 a cui si aggancia questo lavoro di tesi. Verranno infatti mostrati una serie di test di caratterizzazione di questi rivelatori innovativi e di un prototipo dimostratore di Real Time Monitor di nuova generazione equipaggiato con questi detectors.

Capitolo 2

Il Rivelatore

Il punto cruciale e di innovazione del progetto SID2019 è lo sviluppo di nuovi rivelatori, adatti alla tipologia di misura richiesta.

Gli scintillatori normalmente usati infatti, composti da polveri scintillanti incluse in matrici di polimeri e per questo a basso costo e con tempi di risposta rapidi, hanno il grande inconveniente di contaminarsi molto facilmente quando immersi in acqua. In particolare i rivelatori industriali EJ-440/EJ-444 della Eljen, che sono stati usati nei primi test come riferimento, presentano una superficie idrofila e in alcuni casi addirittura porosa. Si è resa necessaria quindi la ricerca e produzione di rivelatori poco contaminabili con l'utilizzo in acqua.

2.1 Come è fatto

I detector in silicene sviluppati presso i laboratori del Dip. di Fisica e Astr. dell'Università di Padova sfruttano come volume attivo di rivelazione un composto ionico, il Solfuro di Zinco opportunamente drogato con Argento ossia ZnS(Ag).

Per la produzione di questi tipi di rivelatori, si parte da silicene liquido a cui si aggiunge la polvere di ZnS(Ag), per circa il 60% della massa totale, e il reticolante, che aiuta alla solidificazione. Con questa miscela, opportunamente sottoposta a basso vuoto (a pressione di circa 10^{-1} mbar) per togliere le bolle d'aria createsi, si forma un sottile strato approssimativamente di 50-60 μm di spessore, lasciando depositare la polvere per precipitazione sul fondo. Quando la sedimentazione è conclusa, il foglio viene essiccato in forno 70 gradi per la funzionalizzazione in fase vapore.

Si ottengono così siliconati con superficie idrofobica e chimicamente inerte molto meno soggetta a contaminazione, quindi adatta al tipo di misure da effettuare. In aggiunta, presentano ulteriori vantaggi dal punto di vista dei costi di produzione, dato che non necessitano di attrezzature sofisticate, e dal punto di vista della flessibilità di utilizzo, perché possono essere sagomati a piacimento a seconda delle necessità e perché presentano buona resistenza chimica e termica.

Dal punto di vista fisico lo ZnS è un solido cristallino dielettrico con grande gap tra banda di conduzione e banda di valenza, pari a circa 4 eV. Quando la particella alpha incide sulla superficie del rivelatore, eccita gli elettroni che passano in banda di conduzione e creano lacune in quella di valenza: le coppie elettroni-lacune così formatesi si diseccitano e diseccitandosi rientrano nel materiale emettendo un fotone con energia pari al valore dell'energy gap.

I cristalli di ZnS tuttavia non sono trasparenti ma opachi ai fotoni emessi, per cui è molto probabile che essi vengano riassorbiti per produrre nuovamente una coppia elettrone-lacuna. Dato che il segnale che arriva ai fotomoltiplicatori è prodotto dai fotoni tramite effetto fotoelettrico ed è quindi proporzionale al loro numero, il fenomeno del riassorbimento comporta una perdita di segnale misurabile. Il drogaggio del cristallo serve a evitare questo fenomeno perché l'Argento, sostituito ad atomi del cristallo, riduce il gap energetico, creando livelli legati tra le bande di conduzione e di valenza. In questo modo le coppie elettrone-lacuna non si ricombinano a 4 eV ma a un'energia inferiore: i fotoni prodotti non hanno energia sufficiente a superare il gap e conseguentemente la probabilità che siano riassorbiti per creare una nuova coppia è molto bassa.

I siliconici sono stati adagiati sopra una guida di luce WLS, ossia Wave Length Shifter, che modifica la lunghezza d'onda della radiazione incidente, shiftandola di una certa quantità e bloccando il riassorbimento durante le riflessioni multiple.

I fotoni che escono dal silicene, attraversano la guida e arrivano ai fotomoltiplicatori. La parte di energia ceduta ai PMT che non è stata persa per agitazione termica e vibrazionale, produrrà per effetto fotoelettrico

un elettrone di frequenza leggermente diversa da quella del fotone entrante a causa della presenza della guida.

2.2 Test Preliminari

Una prima serie di rivelatori silicici alpha e alpha-beta così creati di piccole dimensioni, sono stati sottoposti a test di contaminazione radioattiva e i risultati sono stati confrontati con quelli ottenuti dai test sui rivelatori commerciali EJ-440.

Essi sono stati montati in serie su un supporto in modo tale che potessero essere immersi con facilità nell'acqua radioattiva, ottenuta come soluzione di acqua distillata con gli isotopi di Cesio ^{137}Ce e Cobalto ^{60}Co .

Le variabili principali che sono state modificate sono la concentrazione di isotopi presenti nella soluzione, in modo da variare la loro attività da 1 kBq/l fino a 100 kBq/l, e il tempo di esposizione del rivelatore alla radiazione, con periodi di immersione compresi tra 30 minuti fino ad un massimo di 15 ore. Il lavaggio dei silicici è stato effettuato sia semplicemente con acqua e detergente ("soft wash"), sia applicando frizione con un panno ("strong wash"). In entrambi i casi si è verificato che l'efficienza non è alterata dalla procedura di decontaminazione.

Sono state misurate sia la contaminazione residua dopo il lavaggio tramite detector gamma con un livello di background molto basso, sia gli effetti della decontaminazione.

Lo stesso test e le stesse misure sono state realizzate anche per il rivelatore EJ-440.

Seguono i risultati ottenuti come esposto in [2].

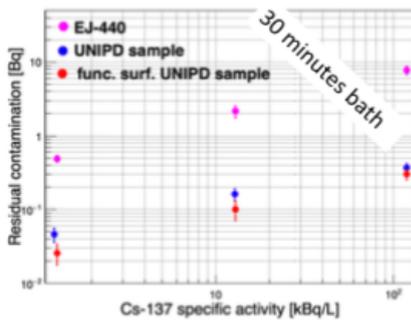


Figura 2.1: Test contaminazione

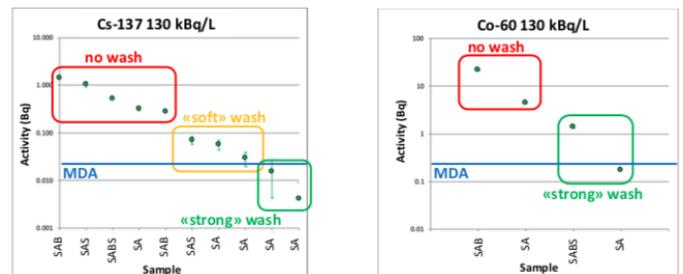


Figura 2.2: Test decontaminazione

Si nota come i rivelatori realizzati nei laboratori di Padova abbiano una contaminazione residua nettamente inferiore rispetto ai rivelatori commerciali EJ-440, prendendo come riferimento un'esposizione di mezz'ora alla soluzione radioattiva. Inoltre il lavaggio dei silicici, sia "soft" che "strong", ha portato risultati soddisfacenti per quanto riguarda la contaminazione degli stessi.

Si può affermare quindi che, almeno per quanto concerne rivelatori di piccole dimensioni, sono state raggiunte le proprietà richieste dalla metodologia di misura.

2.3 Test con sorgenti alfa e beta

La seconda fase del progetto prevedeva la realizzazione e i test di rivelatori simili ai precedenti ma di grandi dimensioni (20x20 cm²), che sono stati testati preliminarmente in aria.

2.3.1 Apparato Sperimentale

Set Up

L'apparato di misura utilizzato in questa fase si compone di un box sigillato al cui interno sono state poste le sorgenti alpha e beta su un apposito sostegno mobile, che permette di effettuare misure a diverse posizioni per testare l'intera area del rivelatore, e anche misure del fondo con la sorgente fuori dall'area attiva di rivelazione. I rivelatori con la guida di luce sono stati inseriti in una struttura di acciaio di dimensioni 35x25 cm circa, con due bocchette di lato per connetterla al circuito chiuso di acqua e una guida centrale per inserire il rivelatore montato sul WLS. I PMT sono stati posizionati su uno dei due lati del WLS rivolto verso l'esterno, sopra degli appositi sostegni attaccati alla struttura, mentre sull'altro lato è stato applicato uno strato di materiale

altamente riflettente, così da contenere quanta più luce possibile all'interno della guida e non avere perdite di segnale.(fig 2.3)

Alimentazione e modalità acquisizione

A differenza dei primi test effettuati, per le misure sui nuovi rivelatori è stato utilizzato un nuovo modulo di alimentazione ad alta tensione. Rispetto al precedente mod. DT1470ET, questo dovrebbe essere meno rumoroso e quindi potrebbe permettere l'abbassamento della soglia di rumore a 2 mV, contro i 5 mV con cui si lavora con l'altro sistema di alimentazione. L'acquisizione dei segnali è stata effettuata col modulo CAEN DT5725B a 8 canali con campionamento a 250 MHz e 14 bit di risoluzione verticale. Grazie al firmware delle schede è possibile impostare una richiesta di coincidenza veloce tra i canali direttamente in fase di acquisizione. Le forme d'onda sono state acquisite e riproccate offline.

Per prima cosa quindi sono state ottimizzate le soglie, monitorando il valore del rate medio dei due canali a cui sono collegati i PMT al variare del valore di treshold, partendo da 160 (corrispondente a 5 mV) e variando di 16 in 16 fino ad arrivare al valore ottimale di 64 (corrispondente a 2 mV).

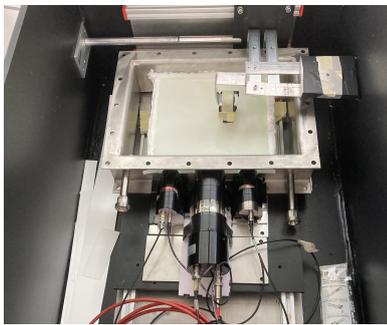


Figura 2.3: Set up sperimentale

Per quanto riguarda il canale CH0 a cui è connesso il PMT Hamamatsu R878 da 2" (denominato successivamente con il termine "grande"), si osserva un andamento pressoché lineare del rate fino al valore di soglia di 112, poi la crescita è esponenziale. E' probabile quindi che abbassando la soglia sotto i 112, si scenda sotto il rumore di fondo rilevabile dai PMT. Tuttavia il rate raggiunto per la treshold di 64, nonostante sia ben superiore a quello con treshold 112, è ancora ragionevole e accettabile: per questo motivo è stato comunque deciso di porre la treshold a 64. Per il CH1 a cui sono connessi i due PMT Hamamatsu R3550A low-noise da 1" (denominati successivamente con il termine "piccoli"), il valore del rate medio è pressoché costante per ogni valore di soglia: si è deciso quindi di impostarla al valore minimo, ossia a 64.

2.3.2 Misure rivelatore alfa

Sono state eseguite due tipi di misura con la sorgente alpha di Polonio 210, rivelata principalmente dal PMT grande posto al centro della guida di luce.

- Con la sorgente posta sul supporto mobile, è stato preso un set di 6 misure per la rivelazione di particelle alpha e un set di due misure del fondo residuo. Le prime sono state effettuate spostando la sorgente lungo l'asse centrale del rivelatore di circa 2 cm alla volta, per avere un feedback sulla sua efficienza in diversi punti. Le seconde invece sono state prese con la sorgente totalmente fuori dall'area attiva di rivelazione, in modo che i PMT misurassero solo il fondo e non l'attività alpha della sorgente.
- Con la sorgente posta su un padellino di plastica forato posto al centro del rivelatore e poi il più vicino possibile al PMT grande, in modo da replicare le misure effettuate con il rivelatore commerciale.

2.3.3 Misure rivelatore alfa beta

Sono state eseguite misure con la sorgente alpha di Polonio 210 e con la sorgente beta di Stronzio 90. L'attività beta è rivelata tramite i due fotomoltiplicatori piccoli che lavorano in coincidenza. Il PMT grande ha poca rilevanza per queste misure ed è stato quindi sostituito da un PMT gemello dei due piccoli che è stato posizionato in modo da essere il più riparato possibile dalla attività della sorgente. In questo modo è stato possibile effettuare anche un test della tenuta di luce della camera e valutare sia il residuo di attività beta presente (se dovuto alla sorgente o alla luce naturale) sia il comportamento del fotomoltiplicatore stesso (in termini di smaltimento della luce a cui è stato esposto).

- Con la sorgente alfa sul padellino di plastica forato al centro del detector, è stato effettuata una presa dati dell'attività della sorgente alfa.

- Con la sorgente beta posta sul collimatore, ma fuori della zona attiva di rivelazione, è stato misurato il fondo, monitorando i rate di tutti e tre i fotomoltiplicatori.
- Con la sorgente beta posta sul collimatore, è stato monitorato il rate dei PMT in funzione della posizione della sorgente stessa, partendo dal centro e variando la sua posizione di 2 cm alla volta, controllando anche il rate di fondo corrispondente a ciascuna misura in modo da avere anche il netto dell'attività beta.

Capitolo 3

Analisi dati

3.1 Particelle alfa

I segnali di particella alfa sono stati acquisiti e registrati su file grezzi dal programma di acquisizione. Sono state condotte analisi diverse a seconda del tipo di misura effettuata.

3.1.1 Elaborazione segnali

I file grezzi contenenti i segnali acquisiti sono stati convertiti in file root con un apposito programma e poi analizzati con una macro realizzata inizialmente per il progetto TAWARA, modificata per adattarla a questo tipo di misurazioni.

Per prima cosa si è reso necessario discriminare i segnali ottenuti per suddividere quelli risultanti da particelle alfa e quelli risultanti da elettroni o fotoni. La maggiore differenza tra i due tipi di segnale sta nella larghezza del picco acquisito, ossia nel tempo di rilascio della carica e dall'energia da essi trasportata. Le particelle alfa formano una curva con una coda molto lunga, a differenza degli elettroni o dei fotoni che scaricano immediatamente la loro energia e risultano avere uno spettro con un singolo spike molto stretto. Questa differenza è dovuta al diverso tipo di interazione con il rivelatore: le particelle alpha interagiscono con il ZnS(Ag) con una componente di luce con decay time di $2 \mu\text{s}$ che genera appunto la coda dei segnali, mentre i beta rilasciano l'energia nel silicone scintillante, la cui componente principale ha un decay time di poche decine di ns. Inoltre proprio perchè le alfa trasportano più energia degli elettroni e sicuramente dei residui di luce che compongono il fondo, produrranno una carica e quindi un segnale molto più intenso.

Queste due caratteristiche sono descritte nella macro da due parametri principali che sono la psd e il qlong. La prima rappresenta il rapporto tra l'area sotto la coda della distribuzione e l'area totale. I valori tipici di psd per le particelle alfa sono 0.6/0.8, mentre quelli degli elettroni o del rumore di fondo sono centrati in zero con piccole fluttuazioni (tipicamente -0.5/0.5). Il qlong invece rappresenta la carica integrata e quindi quella trasferita al silicico dalle particelle.

Il metodo più efficace per distinguere i due tipi di segnale è realizzare un plot delle psd in funzione del qlong portato da ciascuna particella (fig. 3.1). Si riconoscono due tipi di andamento: le particelle distribuite su linee parallele all'asse delle ascisse e centrate su valori di 0.6/0.8 in ordinata sono le particelle alfa che possono raggiungere grandi valori di carica rilasciata, mentre la distribuzione a campana centrata in zero come valore di psd e con valori in ascissa non troppo elevati corrisponde agli elettroni. Questo tipo di grafico è stato creato sia per il rivelatore alfa che per il rivelatore alfa-beta: si nota come nell'ultimo caso gli elettroni rivelati siano molti di più, nonostante entrambe le misure siano state fatte solo in presenza della sorgente di Polonio. Il rivelatore alfa-beta è infatti naturalmente più sensibile a questa tipologia di segnali rispetto al solo segnale alfa.

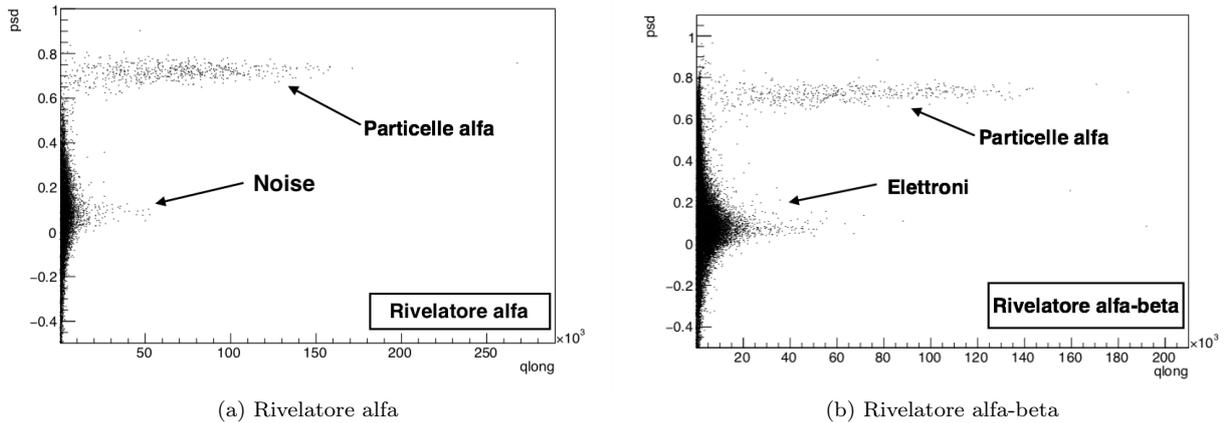


Figura 3.1: Psd in funzione di qlong

Dopo aver discriminato le particella alfa dagli elettroni, è stato necessario pulire il segnale dal rumore di fondo e questa operazione è stata effettuata modificando i parametri della macro root con cui sono stati processati i dati.

Il parametro psd è stato impostato per valori maggiori di 0.6, in modo da considerare solo i segnali alfa, mentre il qlong è stato preso per valori maggiori di 2000.

In aggiunta è stato modificato anche il parametro countup che permette di contare i campionamenti sopra una certa soglia (che si può impostare a seconda delle situazioni). In questo si può distinguere il segnale di una particella alfa dal rumore di fondo, dato che il primo è formato da numerosi conteggi al di sopra della soglia (la curva è molto estesa), mentre gli altri due o non superano la soglia o lo fanno ma con pochi conteggi. Il parametro in questione è utile soprattutto per la situazione in cui bisogna distinguere un segnale alfa da due segnali elettronici ravvicinati. In questo caso infatti potrebbe non essere sufficiente guardare il valore di psd: potrebbe verificarsi che questo parametro per gli elettroni sia confrontabile con quello delle particelle alfa: il secondo spike in ordine temporale infatti potrebbe essere considerato dal programma come la coda della curva, e quindi il rapporto tra area della coda e area totale non risulta essere nullo, come mi aspetterei per un segnale elettronico. Stando solamente alla psd i due segnali sono uguali nonostante abbiano natura differente.

Per semplificare l'analisi e la gestione della macro è stato utilizzato anche il parametro ok, impostato con valore maggiore di 1, racchiude al suo interno condizioni già preimpostate per i segnali alfa, come il tempo di trigger tra due eventi consecutivi. Esso serve per evitare, ad esempio, che fotoni prodotti dalla coda di luce subito dopo il segnale alfa registrato siano acquisiti erroneamente dal programma come nuovo evento e che quindi siano scambiati come segnali buoni da analizzare. Impostando un tempo sufficientemente lungo, si ha la certezza che tutti i possibili eventi casuali tra due segnali buoni siano ignorati dall'elettronica.

Questo procedimento di pulizia del segnale è stato condotto per tutte le misure di particella alfa, sia nel caso del rivelatore alfa che nel caso di rivelatore beta. Segue un esempio (fig. 3.2) della curva del segnale acquisito e poi ripulito dal rumore di fondo.

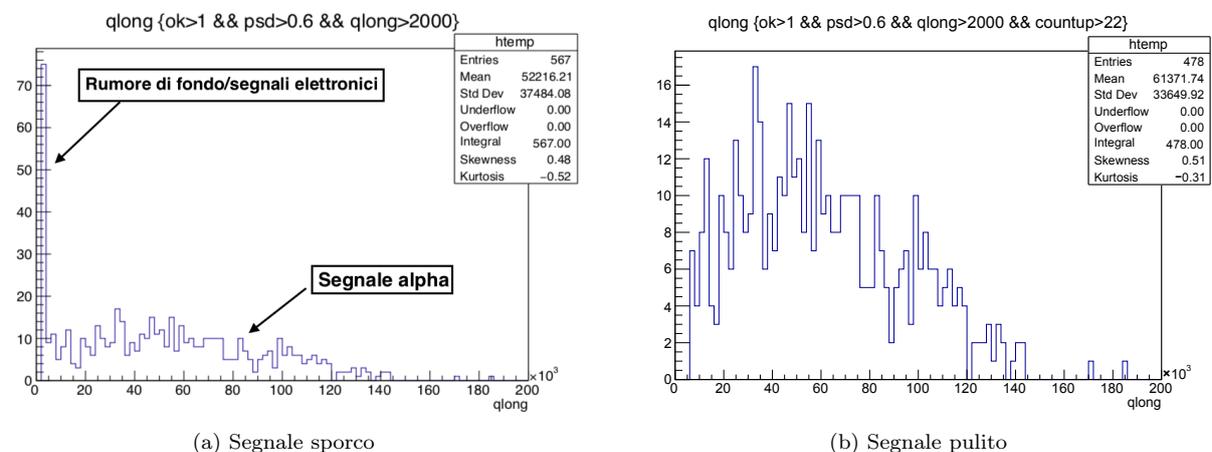


Figura 3.2: Plot qlong

Con riferimento alla figura 3.2, nel primo plot si nota come per bassi valori di carica ci sia un alto numero di conteggi: questi sono dovuti principalmente al rumore e a segnali provenienti da altri processi di decadimento. E' particolarmente alto perchè si riferisce alla misura fatta con il rivelatore alfa-beta che è più sensibile a questo tipo di segnali. Il secondo plot è stato ottenuto ponendo a 22 il valore di countup e tagliando tutti i conteggi sotto questa soglia. Si nota il grande miglioramento del segnale che ha ora la tipica forma a campana. E' stata scelta proprio questa misura su rivelatore alfa-beta, che è più affetto da segnali elettronici, perchè rende più l'idea dell'importanza della pulizia del segnale per ottimizzare la sua analisi.

3.1.2 Sorgente su padellino e confronto misure

Il set up con la sorgente sul padellino forato è stato utilizzato per poter stimare e confrontare l'efficienza dei nuovi rivelatori sviluppati in laboratorio con quella del rivelatore commerciale misurata in passato. Per poter fare questo confronto tuttavia bisogna tenere in considerazione che le prese dati sono state effettuate in momenti diversi: quelle dei siliconici a fine Luglio 2021 mentre quella dell'EJ-440 a fine Aprile 2021. Durante questo lasso di tempo la sorgente è andata incontro a decadimento e quindi il numero di particelle emesse nell'unità di tempo è diminuito.

Il computo del decadimento della sorgente è stato svolto in termini di rate, svincolando l'informazione del numero di particelle dal tempo di acquisizione del segnale, dato che le prese dati non hanno avuto entrambe la stessa durata. Per quantificare la diminuzione è stata utilizzata la legge di decadimento

$$rate = rate_0 e^{-\lambda t} \quad (3.1)$$

in cui rate quantifica le particelle emesse dalla sorgente nell'unità di tempo a fine Luglio, $rate_0$ quantifica le particelle iniziali emesse nell'unità di tempo a fine Aprile, t è il tempo trascorso tra le due misure e λ è la costante di decadimento. La sorgente è composta da ^{210}Po il cui tempo di dimezzamento è pari a $T_{\frac{1}{2}} \simeq 138$ giorni (valore riportato nelle tabelle dell'Istituto Nazionale Henry Bequerel per il ^{210}Po [4]). Esso è legato alla costante di decadimento secondo la legge

$$T_{\frac{1}{2}} = \frac{\ln(2)}{\lambda} \quad (3.2)$$

da cui è stato possibile ricavare λ per questa sorgente.

Per computare il rate iniziale $rate_0$ è stata utilizzata l'efficienza del rivelatore EJ-440 ϵ_{EJ} , che è nota e pari al 95% (come riportato da [5]), e il rate sperimentale dell'EJ-440 $rate_{\text{riv}}$, anche esso noto dopo l'analisi del file contenente il segnale tramite la macro root. In questo modo $rate_0$ è stato calcolato come

$$rate_0 = \frac{rate_{\text{riv}}}{\epsilon_{\text{EJ}}} \quad (3.3)$$

Segue la tabella con i dati

Grandezza	valore	u.m.
ϵ_{EJ}	0.95	
$rate_{\text{riv}}$	1.506	Hz
$rate_0$	1.585	Hz
$T_{\frac{1}{2}}$	138.736	giorni
t	80	giorni
λ	0.00499616	1/giorni
rate	1.1	
diminuzione percentuale	33 %	

Tabella 3.1: Dati decadimento

Dopo aver trovato il rate di emissione della sorgente alfa, si può calcolare l'efficienza per il siliconico alfa e il siliconico alfa-beta, utilizzando la relazione prima descritta per l'EJ-440. Il rate rivelato è stato ricavato analizzando i file con root come descritto nella sezione 3.1.1 per trovare il numero di particelle rivelate, poi normalizzando per il tempo di acquisizione.

Segue la tabella con i risultati ottenuti.

Rivelatore		
alfa-beta	rate di emissione	1.1
	rate rivelato	0.78
	ϵ_{ab}	71%
alfa	rate di emissione	1.1
	rate rivelato	0.85
	ϵ_a	77%

Tabella 3.2: Efficienza

La misura effettuata non è di precisione e per questo non sono state valutate le incertezze da associare ai risultati ottenuti: esse risultano non ben quantificabili in quanto associate alle diverse geometrie utilizzate. Sulla base dell'esperienza di utilizzo di questi dispositivi, si può stimare per il risultato finale una precisione tra il 5 e il 10%.

E' da aggiungere che il valore calcolato per il rate dei silicici risulta leggermente sottostimato rispetto al rate associato al rivelatore commerciale EJ-440 perchè quest'ultimo era stato montato per le misure su una guida di luce più piccola (12x12 cm²), e quindi ,assieme alla sorgente, era posizionato più vicino ai PMT di quanto fossero i silicici. La maggiore vicinanza ai fotomoltiplicatori ha sicuramente comportato una minore dispersione della luce del segnale e quindi un rate in proporzione più alto.

Il valore stimato comunque può essere considerato come una stima conservativa, che prova un'efficienza del silicico pari ad almeno il 77%.

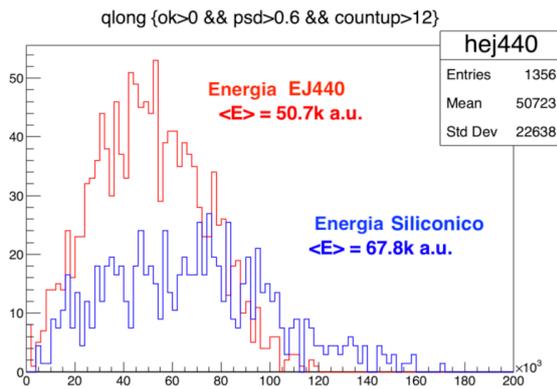


Figura 3.3: Confronto spettro energia

In aggiunta al rate, è stata confrontata anche l'uscita di luce per i due rivelatori, guardando la carica integrata e quindi lo spettro di energia per ciascuno. In figura 3.3 sono presenti due diverse distribuzioni per la carica qlong: quella in blu rappresenta l'energia associata al silicico con media pari a $\langle E \rangle = 67.8k$ (a.u.), mentre quella in rosso rappresenta l'energia associata all'EJ440 con media pari a $\langle E \rangle = 50.7k$ (a.u.). La differenza tra i due valori è di circa il 30% ed è dovuta al diverso valore di HV utilizzato per l'alimentazione dell'elettronica. Nella prima misura con il rivelatore commerciale, il voltaggio è stato impostato a 1200 V, mentre nella misura successiva con il silicico a 1250 V. Una differenza di 50 V ,come

in questa situazione, si può stimare che comporti un aumento dell'uscita di luce del 30-50%: considerato ciò si può affermare che i due rivelatori rispondano in maniera pressochè identica sotto questo punto di vista.

3.1.3 Sorgente su supporto con rivelatore alfa

L'analisi dati di questa parte mira a stimare l'efficienza del rivelatore alfa in funzione della posizione della sorgente su di esso, in modo da verificare l'omogeneità della risposta.

Per prima cosa sono stati elaborati i dati come esposto nella sezione 3.1.1, in modo da avere segnali corrispondenti a eventi alfa abbastanza puliti da poter essere analizzati. Per ognuno di essi è stato ricavato il numero di particelle rivelate nell'unità di tempo, ottenendo quindi un valore di rate di emissione associato ad ogni posizione sul rivelatore. Il valore è naturalmente più basso rispetto a quello ricavato nella sezione precedente per le misure con sorgente sul padellino, perchè la distanza tra sorgente e rivelatore è molto più grande.

Seguono i risultati.

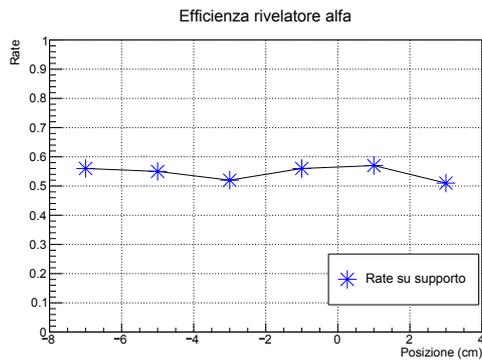


Figura 3.4: Plot rate vs posizione

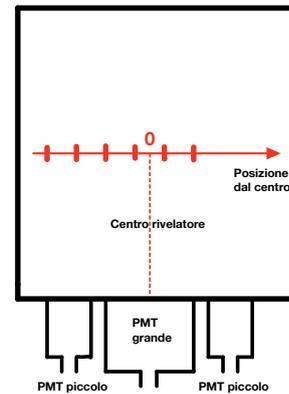


Figura 3.5: Sistema di riferimento

dove le posizioni sono state calcolate in termini di distanza in centimetri rispetto al centro, considerato come lo zero del sistema di riferimento: le distanze positive corrispondono a posizioni a destra del centro, quelle negative alla sinistra (fig. 3.5).

Come per i precedenti, anche questo set di misure è stato acquisito a fine mese di Luglio, per cui per il calcolo dell'efficienza è necessario riprendere la considerazione fatta nella sezione 3.1.2 sul decadimento della sorgente. Il conto però era stato fatto per un set up diverso da quello qua utilizzato: si è reso necessario quindi normalizzare i rate ottenuti da questi dati.

La normalizzazione è stata eseguita calcolando la diminuzione in percentuale del rate della sorgente posizionata sul supporto al centro del rivelatore rispetto a quello della sorgente posizionata sul padellino delle misure precedenti. Come posizione del supporto al centro è stata considerata la media della posizione della seconda misura, che risulta essere 1 centimetro a destra dell'asse centrale, e della posizione della terza misura, che risulta essere 1 centimetro a sinistra dell'asse centrale. Una volta calcolata la percentuale di diminuzione, tutti i rate sono stati ripesati approssimando questo valore come costante per tutto il siliconico, ossia considerando che la diminuzione del rate sul supporto rispetto a quello sul padellino sia uguale per ogni posizione. Si ricalcolano così i rate, ottenendo:

		Posizione dal centro (cm)	Rate Normalizzato
		3	0.78
Rate padellino	0.85	1	0.84
Media rate supporto	0.55	-1	0.86
Diminuzione	35%	-3	0.80
		-5	0.84
		-7	0.86

Tabella 3.3: Rate normalizzati

Ora che le misure sono state ripesate in maniera corretta, è possibile calcolare la stima dell'efficienza come rapporto tra il rate rivelato e il rate teorico ricalcolato considerando anche il decadimento della sorgente, come spiegato nella sezione 3.1.2.

Seguono i risultati.

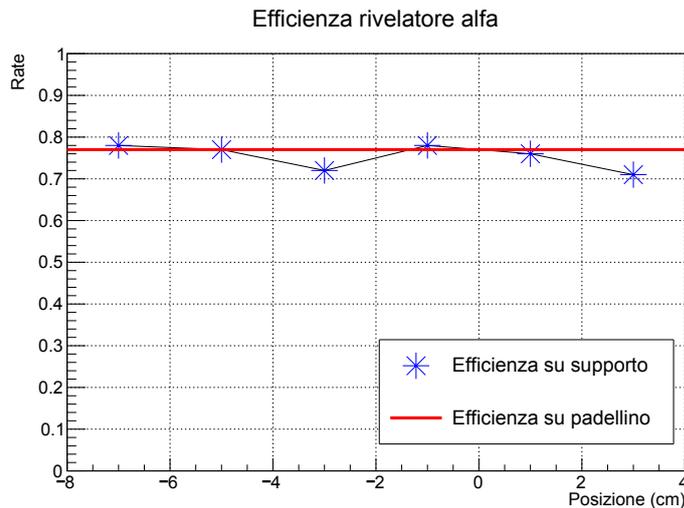


Figura 3.6: Plot efficienza

Si nota come i valori si distribuiscano abbastanza uniformemente attorno alla linea rossa che rappresenta l'efficienza trovata per lo stesso rivelatore alfa con la sorgente sul padellino. Ciò significa innanzitutto che il ripesamento dei dati è stato eseguito correttamente, inoltre la compatibilità di ogni efficienza associata alla posizione con quella ricavata per la posizione centrale e molto vicina al rivelatore suggerisce che questo sia stato creato in modo sufficientemente omogeneo.

3.2 Particelle beta

3.2.1 Monitoraggio rate

Per analizzare i segnali acquisiti dalla sorgente beta è stato seguito lo stesso approccio di quanto fatto per la sorgente alfa, con la differenza che sono stati considerati eventi buoni i segnali con le caratteristiche minime (ad esempio psd compresa tra -0.5 e 0.5). I segnali prodotti infatti sono derivanti da elettroni o fotoni che trasferiscono la loro energia al rivelatore molto velocemente: ne consegue che la curva è uno spike molto stretto. E' stato quindi deciso di analizzare semplicemente rate di conteggio dei PMT in coincidenza in funzione della posizione della sorgente sul rivelatore. Il trend atteso è decrescente, con il rate che diminuisce man mano che la sorgente si allontana dal centro. Questo è dovuto al fatto che i fotoni provenienti dall'eccitazione del silicico all'arrivo degli elettroni, ai bordi del rivelatore piuttosto che al centro di esso, devono percorrere più strada nella guida di luce per arrivare ai fotomoltiplicatori, con conseguente dispersione all'interno di essa e perdita di segnale.

Per raffinare il conteggio del rate e migliorare il valore ottenuto dall'interfaccia del programma, sono state fatte considerazioni geometriche sulla posizione della sorgente. Essa infatti è stata posizionata sopra un collimatore che consiste in una lastra di acciaio spessa circa 1 cm con un foro al centro del diametro di 6 mm. La sorgente stessa non è puntiforme, ma lo ^{90}Sr è stata disposta su un'area circolare di diametro di circa 4mm. Questo comporta ovviamente che la sua attività non sia concentrata in un punto ma al contrario essa vede il rivelatore sotto un certo angolo solido.

Quando la sorgente si trova nei pressi del bordo, non tutta l'area su cui emette batterà sul rivelatore, ma solo una parte di essa. E' ovvio quindi che il rate diminuisca, perchè non tutta l'attività beta può essere rivelata dal silicico.

I rate delle ultime posizioni sono stati quindi pesati considerando quanta porzione del cono solido della sorgente rimane all'interno dell'area attiva di rivelazione.

Per svolgere il conto è stato considerato la situazione semplificata, seppur ragionevole, per cui la sorgente emette isotropicamente ed è stata fatta l'approssimazione che lo Stronzio-90 sia distribuito in maniera uniforme nell'area della sorgente. Ragionando in due dimensioni come suggerisce la figura 3.7, la situazione geometrica è definita da un tronco di cono con base superiore data dalla sorgente

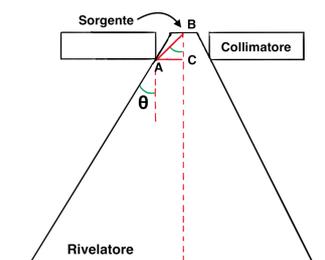


Figura 3.7: Schema 2D

(e quindi di diametro 4mm) e base inferiore dall'area di emissione della stessa. Per isotropia, l'apertura massima del cono è data da lati laterali tangenti ai vertici inferiori del foro sul collimatore. Applicando la trigonometria sul triangolo ABC, è stato stimato l'angolo di apertura θ , pari a $\theta=0.0997$ rad, e da esso il raggio R della base del cono, che risulta essere $R=5.2$ cm, sapendo che la distanza tra la sorgente e il rivelatore è di circa 5cm (approssimazione per difetto). L'angolo solido è stato calcolato integrando il suo differenziale pari a $d\Omega=\sin\theta d\theta d\varphi$, con φ avente valori tra 0 e 2π , mentre θ tra 0 e quello sopra computato. L'angolo solido risulta $\Omega=0.03$ sr.

Con un raggio R dell'area di emissione pari a quello calcolato, considerando che nelle misure la sorgente è stata spostata a partire dal centro del rivelatore di due centimetri alla volta, per le ultime tre misure solo una parte di essa è proiettata sul rivelatore e ne è stata calcolata la percentuale rispetto al riferimento dato dalla misura in posizione centrale, che ovviamente presenta l'area interamente proiettata sul rivelatore. Questo valore può essere considerato come la percentuale di rate teorico rivelato associato a quella determinata posizione, prendendo sempre a riferimento (e quindi come valore 100%) la posizione centrale. Per l'ultima misura quella in prossimità del bordo del rivelatore, è ragionevole pensare che la resa sia la metà di quella presente al centro. Per quanto riguarda le misure prese, è stato calcolato il valore sperimentale, da confrontare con quello teorico, come il valore percentuale del rate netto associato ad una posizione rispetto al rate netto misurato nel centro. Seguono i dati.

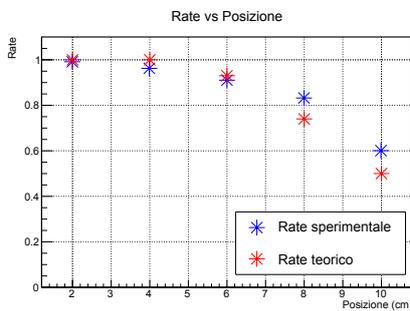


Figura 3.8: Rate vs Posizione

Dist. dal centro (cm)	Rate sperimentale	Rate teorico
2	99.0 %	100.0 %
4	96.1 %	100.0 %
6	90.7 %	93.6 %
8	83.4 %	73.9 %
10	60.5 %	50.0 %

Tabella 3.4: Rate in funzione della posizione

Come previsto, il rate diminuisce all'allontanarsi della sorgente dal centro del rivelatore.

Si notano delle differenze tra la stima sperimentale e la previsione teorica, dovute sicuramente alla semplicità del modello geometrico utilizzato che sfrutta assunzioni abbastanza forti. Innanzitutto l'angolo θ individuato come in figura 3.6, identifica solamente la direzione di emissione delle particelle beta diffuse dall'estremità sinistra della sorgente, mentre quelle provenienti dal lato opposto sono direzionate con un angolo di emissione diverso. Questo ragionamento va ripetuto ovviamente per tutta la superficie sorgente, quindi su tutto il cerchio di diametro 4mm, portando sicuramente a una stima di Ω differente e più accurata. Inoltre, come già accennato sopra, non è noto il grado di omogeneità della sorgente, quindi l'assunzione che il rate di emissione sia costante su tutta la sua area è ideale ed esclusivamente esemplificativa per il conto effettuato.

3.2.2 Tenuta di luce

Durante le misurazioni del fondo con il rivelatore alfa-beta, sono emerse delle anomalie nel valore dei rate dei PMT, non compatibile con quello che avrebbero dovuto avere dopo essere rimasti nella scatola al riparo dalla luce. Le possibili cause di questo fenomeno possono essere diverse: la presenza della sorgente beta che, seppur montata sopra il collimatore, potrebbe generare degli elettroni che scatterando si diffondono nella camera e arrivano ai PMT, il PMT, il rivelatore stesso che potrebbe presentare tempi di diseccitazione molto più lunghi di quanto previsto, la presenza di fori nella scatola che permetterebbe alla luce naturale di filtrare oppure, per ultimo, il rumore intrinseco dell'elettronica.

Per scoprire a quale causa sia dovuto questo problema, è stato condotto un test di tenuta di luce del sistema con il rivelatore coperto, in modo da escluderlo già dalle possibili cause. E' stato poi collegato all'alimentazione un fotomoltiplicatore coperto da un tappo, dello stesso modello dei due che lavorano in coincidenza e che non ha subito esposizioni alla luce da tempo. Il suo conteggio è risultato di qualche centinaio di Hz, perfettamente in linea con le sue caratteristiche. Questo esclude che la linea sia affetta da grande rumore capace di alterare i conteggi.

Successivamente è stata tolta la copertura al fotomoltiplicatore ed è stato monitorato il rate medio raggiunto. La stessa misura è stata fatta ma con il PMT di nuovo coperto. Se i due rate fossero uguali, significherebbe che nella camera non c'è luce residua e che il conteggio è esclusivamente dovuto alla diseccitazione del fotomoltiplicatore.

Al contrario se i due rate fossero diversi allora entra luce nella camera dall'esterno ed è questa che ha generato i segnali rivelati dal PMT scoperto. I rate sono risultati abbastanza compatibili, il che ha fatto escludere la presenza infiltrazioni di luce dall'esterno.

Poichè il test è stato condotto con il rivelatore coperto che quindi non ha potuto contribuire al conteggio dei rate, risultati effettivamente sensati, esso costituisce la causa più plausibile all'anomalia riscontrata: la polvere di solfuro di zinco con cui è stato creato risulta avere tempi di diseccitazione della luce molto lunghi e per questo i fotomoltiplicatori rilevano la sua attività anche dopo grandi lassi temporali.

Capitolo 4

Costruzione del prototipo

4.1 Assemblaggio

Dopo i test effettuati sui rivelatori per attività alpha e beta, condotti per stimare la loro efficienza effettiva e il miglior set up sperimentale possibile, è stato assemblato il prototipo di rivelatore.

Tutta la struttura in acciaio sopra descritta è stata resa idrofobica sigillandola con il silicone e sono state anche realizzate guarnizioni in gomma da interporre tra la scatola e i due coperchi, chiusi da bulloni su tutti i lati, in modo da renderla adatta alle misure in acqua. I PMT sono stati posizionati come nelle prove effettuate per i test dei rivelatori.

Seguono le foto del prototipo montato.

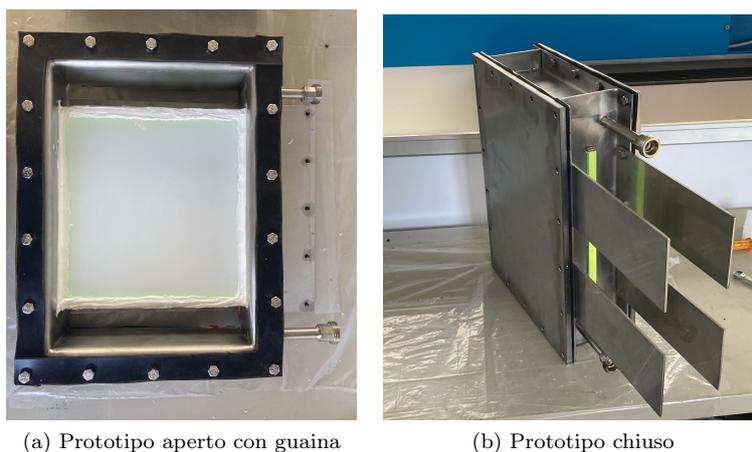


Figura 4.1: Assemblaggio prototipo

Dopo aver montato il prototipo è stato fatto un test di tenuta ad acqua dello stesso, in modo da verificare che non ci fossero perdite di quello che poi sarà il materiale radioattivo da monitorare.

E' stato realizzato un circuito chiuso con una pompa peristaltica che pompa acqua da una tanica verso il prototipo, collegato ad essa tramite un tubo nella bocchetta inferiore. Sempre attraverso un tubo collegato alla bocchetta superiore, l'acqua esce ritornando poi nella tanica.

E' molto importante avere un circuito chiuso di pompaggio dell'acqua come quello sopra realizzato per motivi di sicurezza: in questo modo il contenimento dell'acqua radioattiva è migliore e si riesce a gestire in modo più efficiente.

Sono stati effettuati due test di tenuta ad acqua entrambi con risultati negativi. Dopo il primo, la scatola è stata smontata ed è stato applicato del silicone aggiuntivo anche sulle giunzioni saldate in metallo, che ad un controllo a posteriori potevano non essere ben realizzate. Nonostante questa modifica, anche il secondo test è fallito.

Per motivi logistici e soprattutto di gestione del tempo, non è stato possibile completare la costruzione del prototipo per questa tesi. Una volta raggiunta la tenuta d'acqua, si procederà con l'assemblaggio dei fotomoltiplicatori e del loro contenitore a prova di luce. Sarà quindi verificata la tenuta di luce e si procederà con la misura vera e propria, immettendo acqua nel circuito del pompaggio.

Il primo test sarà effettuato con acqua distillata con una misura lunga (una settimana o più) per misurare il fondo (blank) e caratterizzarlo verificando la stabilità della risposta. Successivamente sarà effettuata una misura con acqua in cui è disciolto del cloruro di potassio in modo da effettuare le misure di radioattività. Infine i prototipi saranno portati ai Laboratori dell'Istituto Nazionale di Metrologia della Radiazione Ionizzante (INMRI) dell'ENEA alla Casaccia per i test finali con le soluzioni radioattive, dove sarà misurata l'efficienza di rivelazione e il grado di contaminazione residua dopo l'esposizione ai contaminanti. E' necessario infatti stimare sia il basso livello di contaminazione della superficie, sia l'efficacia dei processi di lavaggio ("strong" e "soft") anche per rivelatori di così grande superficie, in previsione di poterli utilizzare effettivamente nei progetti futuri.

Capitolo 5

Conclusioni

In questo lavoro di tesi sono stati testati preliminarmente in aria due prototipi di rivelatori siliconici.

Il rivelatore alfa è stato analizzato in modo da verificarne l'efficienza e l'uscita di luce, confrontandola con quella del rivelatore commerciale EJ-440. E' emerso che l'efficienza media si attesta almeno al 77%, come già stimato dai test effettuati sullo stesso tipo di siliconico ma di area inferiore. Nonostante sia leggermente inferiore a quella del rivelatore commerciale, la sua proprietà di bassa contaminazione (quest'ultima testata esclusivamente sui rivelatori di area più piccola) lo rende comunque più adatto ed efficiente per l'utilizzo in acqua e quindi per lo scopo del progetto. Dai dati emersi in figura 3.6, si nota una distribuzione abbastanza omogenea del valore di efficienza in funzione della posizione sul siliconico, confermando una buona riuscita della realizzazione del rivelatore. Per quanto riguarda l'uscita di luce, il valore dell'energia media ottenuto è in linea con quello riscontrato per il rivelatore commerciale

Il rivelatore alfa-beta è stato analizzato in modo da verificarne l'efficienza per quanto riguarda il solo segnale alfa, con una singola misura presa al centro di esso. Il valore si attesta attorno al 71%, leggermente inferiore a quanto trovato per il siliconico alfa, ma risulta comunque accettabile. E' stata inoltre verificata l'uscita di luce e il rate rivelato per diverse posizioni sul rivelatore, confermando il trend discendente atteso.

Per ultimo con il test di tenuta di luce della camera, è stato stabilito che il Solfuro di Zinco ha tempi di diseccitazione più lunghi di quelli attesi, provocando le fluttuazioni anomale dei conteggi riscontrate principalmente nelle misure con il rivelatore alfa-beta.

Bibliografia

- [1] Consiglio Europeo. Direttiva 2013/51/euratom. 3,2013.
- [2] De Felice P., Sartori P., Carconi P.,
Contamination tests of new silicone-based detectors for beta-alpha radiation in water.
- [3] Quaranta A., Carturan S., Marchi T. et al., *Doping of polysiloxane rubbers for the production of organic scintillators*, Optical Materials, Vol. 32, Issue 10, **1317-1320**, 2010
- [4] Kellet M.A., Chisté V. et al., *Radionuclides Table*, Technical report, LNE-CEA/LNHB, 1983/2014
- [5] Lunardon M., Cester D., Mistura G. et al., *Characterization of large area zns(ag) detector for gross alpha and beta activity measurements in tap water plants*, IEEE Transactions of nuclear science, Vol. 63, No. 3, 2016.