

# UNIVERSITÀ DEGLI STUDI DI PADOVA

Dipartimento di Fisica e Astronomia “Galileo Galilei”

Corso di Laurea in Fisica

Tesi di Laurea

Studio dei radionuclidi prodotti al reattore LENA per il  
progetto ISOLPHARM EIRA

Relatore

Prof. Marcello Lunardon

Correlatore

Dr. Luca Morselli

Laureando

Aurora Leso

Anno Accademico 2020/2021



# Abstract

Il progetto multidisciplinare **ISOLPHARM**, di cui fa parte l'esperimento in cui si colloca il lavoro di tesi, ossia **ISOLPHARM-EIRA**, verte principalmente sullo studio di nuovi metodi per la produzione di radionuclidi ad elevata purezza mediante la tecnica ISOL (Isotope-Separation On-Line).

Per quanto concerne il gruppo di Fisica dei Laboratori Nazionali di Legnaro dell'Istituto Nazionale di Fisica Nucleare, l'obiettivo è quello di caratterizzare il setup sperimentale sfruttato per l'analisi spettroscopica e, contemporaneamente, studiare la produzione di  $^{111}\text{Ag}$  sia attraverso l'irraggiamento di un campione di Palladio naturale che di un campione di Palladio arricchito.

Il lavoro di tesi successivamente presentato si concentra sull'analisi di spettri di emissione di un campione di Palladio arricchito irraggiato a febbraio 2021 con il reattore nucleare TRIGA MARK II presso il L.E.N.A. di Pavia, prelieve opportune analisi inerenti calibrazione, risoluzione ed efficienza dei detector utilizzati, ossia HPGe e LaBr<sub>3</sub>, effettuate all'INFN di Legnaro.

Dai suddetti spettri sono stati identificati ed analizzati i principali radionuclidi prodotti ( $^{109}\text{Pd}$ ,  $^{111\text{m}}\text{Pd}$ ,  $^{111}\text{Ag}$ ) e per ognuno di essi si è trovata una stima per il tempo di dimezzamento e per l'attività, al fine di consentire un successivo confronto con le curve simulate da opportuni software (FLUKA e MCNPX+CINDER) per la stessa grandezza.

# Indice

<b>Abstract</b>	<b>iii</b>
<b>Introduzione</b>	<b>v</b>
0.1 Il progetto ISOLPHARM . . . . .	v
0.1.1 L'esperimento ISOLPHARM_EIRA . . . . .	vi
0.2 L'apparato sperimentale . . . . .	vi
<b>Analisi Dati</b>	<b>vii</b>
0.3 Caratterizzazione dei detector . . . . .	vii
0.3.1 Calibrazione e risoluzione energetica . . . . .	vii
0.3.2 Curve di efficienza . . . . .	ix
0.4 Analisi del campione . . . . .	xi
0.4.1 Spettro del campione . . . . .	xi
0.4.2 Correzione di tempo morto . . . . .	xii
0.4.3 Stima del tempo di dimezzamento e dell'attività dei radionuclidi . . . . .	xiii
<b>Conclusioni</b>	<b>xix</b>

# Introduzione

## 0.1 Il progetto ISOLPHARM

L'obiettivo del progetto **ISOLPHARM**, in cui si colloca l'esperimento **ISOLPHARM\_EIRA**, è quello di produrre radioisotopi altamente puri tramite la facility SPES, in costruzione ai Laboratori Nazionali di Legnaro; tale progetto coinvolge varie branche di ricerca tra cui quelle in ambito chimico, fisico, biologico e farmaceutico. **SPES** (*Selective Production of Exotic Species*), poc'anzi menzionato, è una facility ISOL (*Isotope Separation On Line*), nonché uno degli strumenti maggiormente sfruttati per lo studio dei nuclei esotici <sup>1</sup>.

Per quanto concerne il suo approssimativo funzionamento [1], SPES sfrutta un ciclotrone con cui si accelera un fascio di protoni di bassa energia dai quali si ottengono, tramite fissione, i radionuclidi di interesse, poi estratti e ionizzati. Successivamente gli ioni prodotti vengono accelerati andando a costituire il *Radioactive Ion Beam*, un fascio altamente energetico di nuclei instabili, da cui si ricava un fascio isobarico tramite separatore elettromagnetico di massa. Gli ioni prodotti sono poi raccolti tramite collisione del fascio con un apposito bersaglio (*ion collector*), il quale, grazie ad un processo di separazione chimica, viene poi dissolto e purificato permettendo di selezionare solo l'isobaro di interesse. Lo schema seguente riassume i passaggi poc'anzi presentati:

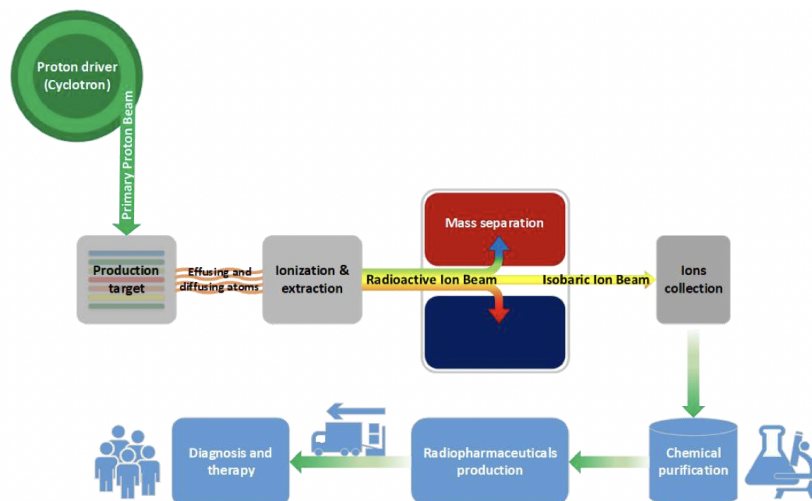


Figura 1: Schema del metodo ISOL

I vantaggi della tecnica brevemente descritta sono molteplici, e tra di essi troviamo sia il fatto che SPES consenta di ottenere fasci di ioni ricchi di neutroni e dunque fortemente instabili, difficili da ottenere con tecniche meno evolute, sia che, rispetto alla produzione in un reattore, la quantità di materiale fissile richiesta per il target sia minore, con conseguenti inferiori scorie da smaltire.

---

<sup>1</sup>Nuclei caratterizzati da un forte sbilanciamento tra numero di protoni e numeri di neutroni

### 0.1.1 L'esperimento ISOLPHARM\_EIRA

In SPES, utilizzando un bersaglio primario di Carburo di Uranio ed un fascio primario di energia  $\approx 40$  keV, si riesce ad ottenere  $^{111}\text{Ag}$ , un  $\beta^-$  emettitore neutron-rich con tempo di dimezzamento  $\approx 7.45$  giorni ed energia media 360 keV (cui corrisponde una penetrazione di 1.8 mm nei tessuti corporei). Questo decade emettendo due raggi  $\gamma$  di energia relativamente bassa e conveniente per la radioterapia interna. Considerando sia che  $^{111}\text{Ag}$  è un promettente precursore radiofarmaceutico per le sue proprietà chimico-nucleari, sia i risultati ottenuti nello scorso biennio nell'esperimento ISOLPHARM\_Ag, l'esperimento ISOLPHARM\_EIRA del triennio 2020-2022 si propone sia di consolidare i risultati ottenuti in precedenza, sia di lavorare ai primi test in vitro ed in vivo.

Per quanto concerne il gruppo di ricerca di fisica, ci si propone, oltre che di caratterizzare il setup sperimentale confrontando i risultati ottenuti con le simulazioni computazionali, anche di caratterizzare la produzione di  $^{111}\text{Ag}$  tramite irraggiamento di campioni di palladio naturale e palladio arricchito nel reattore nucleare TRIGA MARK II del L.E.N.A. di Pavia.

La produzione segue avviene come segue



In cui il nucleo target  $^A_ZX$  cattura un neutrone dando l'isotopo eccitato  $^{A+1}_ZX^*$  che si diseccita successivamente tramite emissione di un raggio  $\gamma$  caratteristico.

## 0.2 L'apparato sperimentale

Sia per la fase di calibrazione, sia per la presa dati di febbraio 2021 preso il L.E.N.A., il setup sperimentale si componeva di

- **HPGe** (*High Purity Germanium Detector*, ReGe, Myrion Technologies) raffreddato elettricamente (CRYO PULSE 5) con preamplificatore integrato<sup>2</sup>;
- **Scintillatore al Bromuro di Lantanio** ( $\text{LaBr}_3$ , B380 Saint-Gobain) con preamplificatore esterno CAEN A1424;
- **Digitalizer** CAEN DT-5780, sfruttato per alimentare i detector e per l'acquisizione;
- Software per l'acquisizione **COMPASS**;
- **Sorgenti** di Europio  $^{152}\text{Eu}$  e di Americio  $^{241}\text{Am}$  per la fase di calibrazione dei detector;
- **Campione** di Palladio arricchito per la fase di misura.

Il campione di Palladio è stato collocato a distanza 43.5 cm dal detector HPGE e a 35 cm dal detector  $\text{LaBr}_3$  per tutta la presa dati, durata complessivamente 7 giorni. In questo elaborato si analizzano le caratteristiche di entrambi i rivelatori, ma per la fase di stima di attività e tempo di dimezzamento si sfrutta la sola presa dati del rivelatore al Germanio.

---

<sup>2</sup>Il rivelatore in questione, a differenza dei più comuni rivelatori al Germanio, ha un volume attivo notevolmente maggiore, grazie all'elevata purezza del suo cristallo al Germanio che riduce notevolmente le impurità presenti ( $< 10^{10}/\text{cm}^3$ )

# Analisi Dati

## 0.3 Caratterizzazione dei detector

Per la caratterizzazione dei rivelatori sono stati acquisiti spettri emessi da due sorgenti,  $^{241}\text{Am}$  e  $^{152}\text{Eu}$ , oltre che del fondo, sottratto ai primi due, per poi proseguire ad analizzare i picchi utili a caratterizzare la risposta dei detector nel range di energia di interesse (indicativamente tra i 50 keV e i 1500 keV).

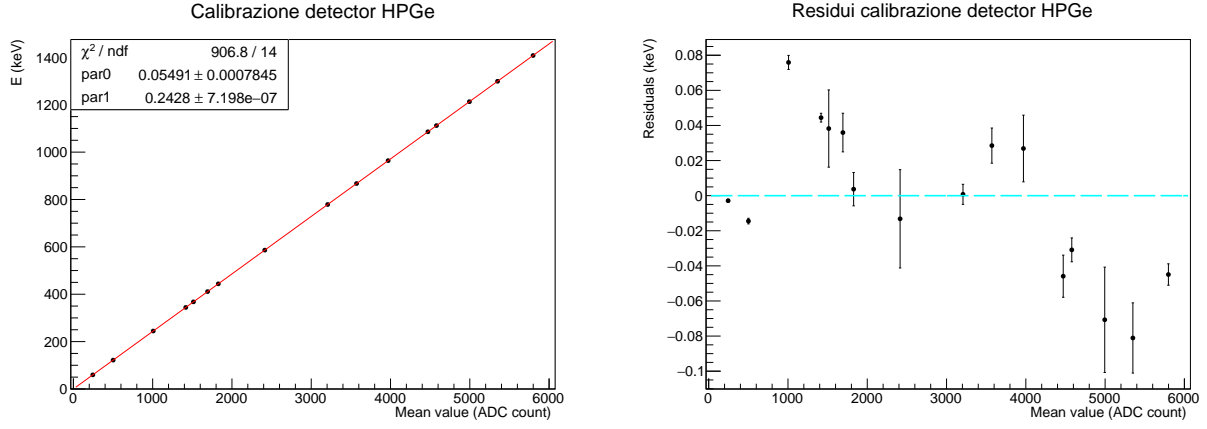
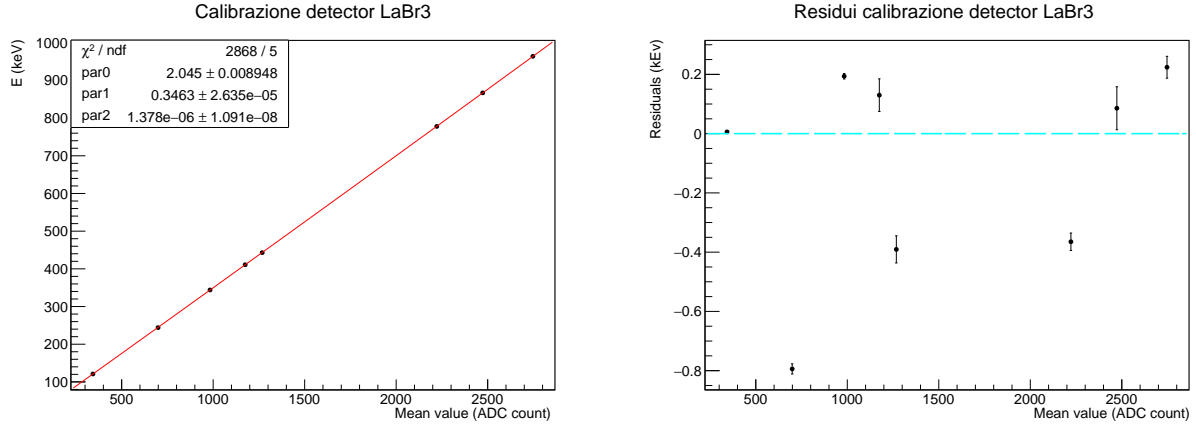
### 0.3.1 Calibrazione e risoluzione energetica

In questa fase si analizzano i fotopicchi più distintamente visibili degli spettri delle due sorgenti in questione, si trova la corrispondenza tra il loro centroide (in ADC counts) ed il valore di energia atteso per il picco tabulato sul sito DDEP del L.N.H.B (in keV).

In particolare, i valori caratterizzanti un picco si trovano tramite un fit gaussiano del suddetto, a cui si sottrae il fondo (il cui valore si trova tramite fit lineare o esponenziale) per ottenere il corretto valore dell'area sottesa, corrispondente al numero di conteggi misurati. Fittando poi tramite funzione lineare il grafico con in ordinata l'energia e in ascissa il centroide dei vari picchi gaussiani, si trova la **curva di calibrazione** che consente di convertire i canali, espressi in ADC counts, nel loro valore in eV.

Dalla calibrazione vediamo che la risposta del detector al germanio segue un andamento piuttosto lineare, i residui non presentano evidenti trend anche se hanno fluttuazioni non banali. Si è reso invece necessario fittare con una parabola l'andamento dei dati riguardanti il detector al bromuro di lantanio, visto che i residui di un primo fit lineare risultavano evidentemente parabolici: così facendo, i dati seguono meglio l'andamento della curva di fit, anche se dall'analisi dei residui si vede una forte oscillazione dei suddetti, senza particolari trend. Dal valore del test  $\chi^2$  si nota una sottostima delle incertezze non banale: di fatto, l'errore associato alle ordinate consta solo del contributo statistico dato dall'incertezza sul centroide della gaussiana ottenuta tramite un fit in ROOT, ed eventuali contributi sistematici vengono trascurati.

Come si può notare dai grafici sottostanti, data la risoluzione decisamente inferiore del detector  $\text{LaBr}_3$ , i picchi facilmente distinguibili sono in numero inferiore per il secondo detector, fatto che si traduce in un minor numero di punti a disposizione.

Figura 2: Plot di calibrazione in energia con annessi residui per *HPGe*Figura 3: Plot di calibrazione in energia con annessi residui per *LaBr<sub>3</sub>*

Per quanto concerne la risoluzione dei rivelatori, essa si stima tramite interpolazione del grafico FWHM<sup>3</sup> in ordinata ed energia (keV) in ascissa, utilizzando una funzione del tipo

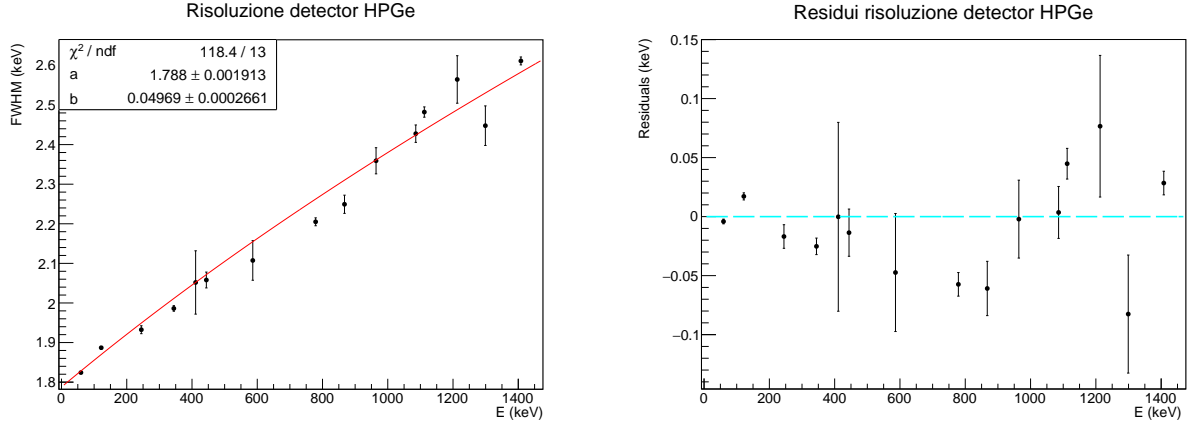
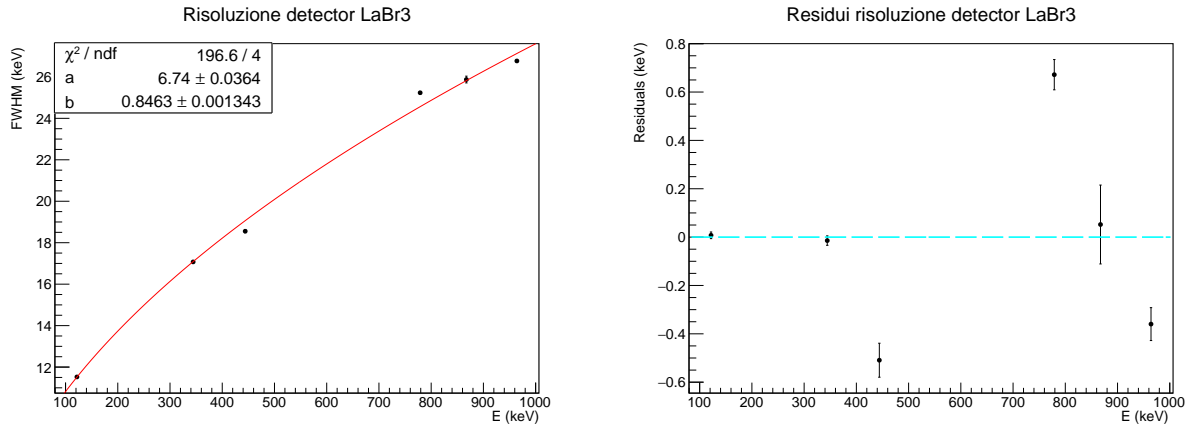
$$FWHM = \sqrt{a^2 \cdot E + b^2} \quad (2)$$

con dove  $b$  rappresenta il termine di rumore. Non si evidenziano trend fortemente sistematici nell'analisi dei residui, che risultano tuttavia piuttosto oscillanti. Come anticipato, i dati confermano che la risoluzione stimata per il rivelatore al germanio risulta migliore rispetto a quella ottenuta per il bromuro di lantanio. A conferma delle precedenti affermazioni, ancora una volta troviamo un'ampia sottostima delle incertezze associate ai valori del fit.

---

<sup>3</sup>Full Width at Half Maximum



Figura 4: Plot di risoluzione con annessi residui per *HPGe*Figura 5: Plot di risoluzione con annessi residui per *LaBr<sub>3</sub>*

### 0.3.2 Curve di efficienza

Per completare la caratterizzazione dei detector, ci si occupa di analizzare la loro l'efficienza assoluta che, per una radiazione  $\gamma$  di energia  $E_\gamma$ , viene stimata come

$$\epsilon_\gamma = \frac{F_\gamma}{A T B_\gamma} \quad (3)$$

ove  $F_\gamma$  è l'area del picco,  $T$  il tempo di acquisizione,  $A$  l'attività della sorgente utilizzata e  $B_\gamma$  il *branching ratio* della transizione. Questo parametro consente essenzialmente di quantificare il rapporto tra il numero di  $\gamma$  rivelati dal detector ed il numero di  $\gamma$  emessi dalla sorgente. L'integrale che sottende il picco, il quale ne restituisce l'area sottesa, si calcola come anticipato su un intervallo simmetrico rispetto al centroide del picco stesso, cui si sottrae il fondo nelle immediate vicinanze. Conoscendo l'attività della sorgente  $A_0$  all'istante  $t = 0$ , alla data in cui la suddetta è stata utilizzata ci si aspetta un'attività  $A(t)$  pari a

$$A(t) = A_0 \exp\left(-\frac{t \ln(2)}{T_{\frac{1}{2}}}\right) \quad (4)$$

In cui  $t$  quantifica l'intervallo temporale tra il momento in cui è stata misurata  $A_0$  ed il momento in cui si cerca il valore dell'attività  $A(t)$  e  $T_{\frac{1}{2}}$  è il tempo di dimezzamento atteso per il radionuclide in questione.

La funzione di fit attesa per l'efficienza ha la seguente espressione <sup>4</sup>:

$$\epsilon = a_1 [\exp(-a_2 E^{a_3}) + \exp(a_4 E^{a_5})] \cdot (1 - \exp(a_6 E^{a_7})) \quad (5)$$

<sup>4</sup>Espressione frutto di uno dei modelli ad oggi considerati più precisi per l'efficienza dei rivelatori al Germanio [Hurtado et Al., N.I.M. A 594 2008]

Si interpolano i dati delle efficienze sperimentali, calcolate come anticipato in Equazione (2.2) considerando la sola componente statistica sulle incertezze, per poi associare (curve in blu) l'incertezza sistematica ai risultati ottenuti dal fit. Di fatto, si nota che l'1.7% di incertezza sistematica associata all'attività rende trascurabile il contributo all'incertezza dato dalla componente statistica, questa ottenuta propagando, nella formula dell'efficienza, i contributi d'errore associati alle aree dei fotopicchi  $F_\gamma$  e al branching ratio  $B_\gamma$  (il contributo all'incertezza statistica data dall'intervallo temporale  $T$  si considera trascurabile).

Il fit di efficienza è stato effettuato per entrambi i rivelatori, ma per quanto concerne il  $LaBr_3$  il suddetto ha valore puramente indicativo visto i pochissimi picchi a disposizione, e non si è proceduto al computo delle incertezze con la metodologia poc'anzi descritta.

Seguono i risultati ottenuti:

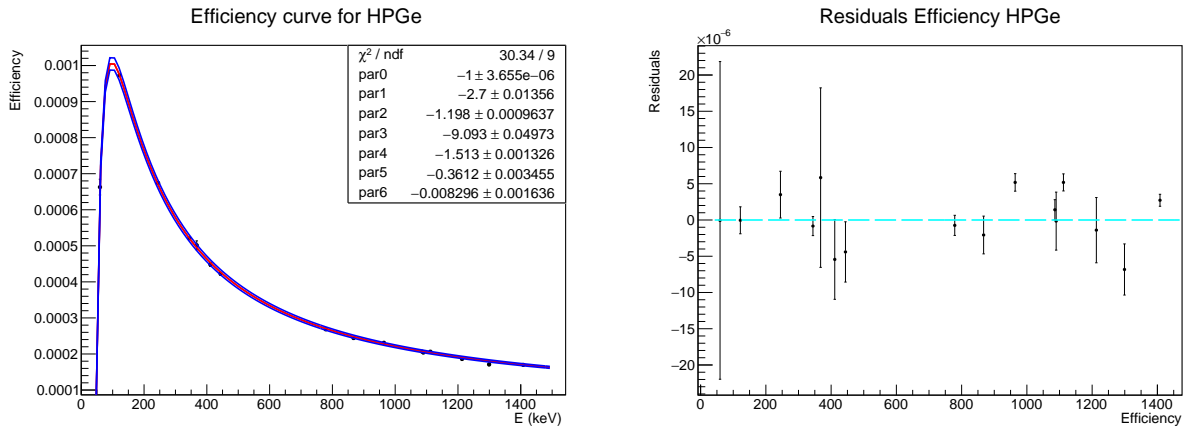


Figura 6: Plot di efficienza con annessi residui per  $HPGe$

Dall'analisi dei residui non si palesa alcun trend significativo sull'andamento dei dati rispetto al fit, ma risulta piuttosto evidente come i punti ad alta energia rispettino molto bene l'andamento atteso. A conferma di quanto già trovato in precedenza, il  $\chi^2$  suggerisce una sottostima delle incertezze, fatto dovuto nuovamente alla probabile sottostima sugli errori ricavati tramite i fit gaussiani dei picchi.

Si precisa inoltre che, nonostante il fit sembri descrivere molto bene i dati, per basse energie si hanno pochi punti a disposizione ed il risultato ottenuto è di natura prettamente fenomenologica. In questa regione energetica, in cui cade uno dei fotopicchi di interesse per l'analisi successiva (di energia  $\approx 88$  keV) risulta infatti molto incisivo il contributo dell'elettronica del setup sperimentale ed ivi non si hanno punti nelle immediate vicinanze del picco di interesse che possano dare più certezze sulle stime di efficienza attesa per il rivelatore a quell'energia.

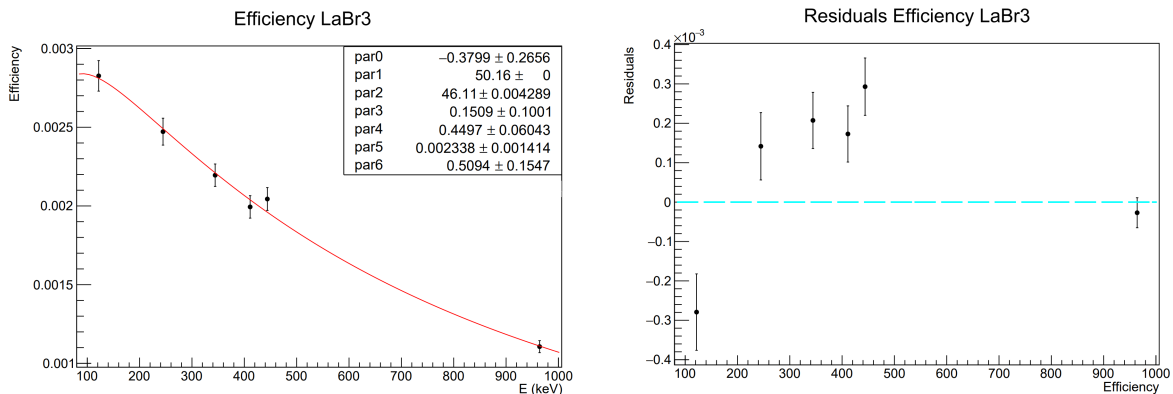


Figura 7: Plot di efficienza con annessi residui per  $LaBr_3$

Tramite le curve in questione si possono trovare i valori di efficienza attesi per i detector alle varie energie analizzate, necessari alla stima delle attività dei radionuclidi prodotti, cui vi si associa come incertezza la sola componente statistica.<sup>5</sup> Si ottengono i seguenti risultati:

Radionuclide	$E(\sigma_E)[\text{keV}]$	$[\epsilon \pm \sigma_{\epsilon_{stat}}] (10^{-4})$
$^{109}\text{Pd}$	88.0336(103)	$10.04 \pm 0.18$
$^{111m}\text{Pd}$	172.18(8)	boh
	575.0(1)	$3.46 \pm 0.04$
$^{111}\text{Ag}$	245.40(2)	$6.68 \pm 0.09$
	342.13(2)	$5.23 \pm 0.07$

Tabella 1: Valori di efficienza attesi per il rivelatore HPGe in relazione all'energia del fotopicco analizzato.

## 0.4 Analisi del campione

### 0.4.1 Spettro del campione

Lo spettro del campione si presenta, dopo una decina di ore dall'inizio della presa dati, come segue:

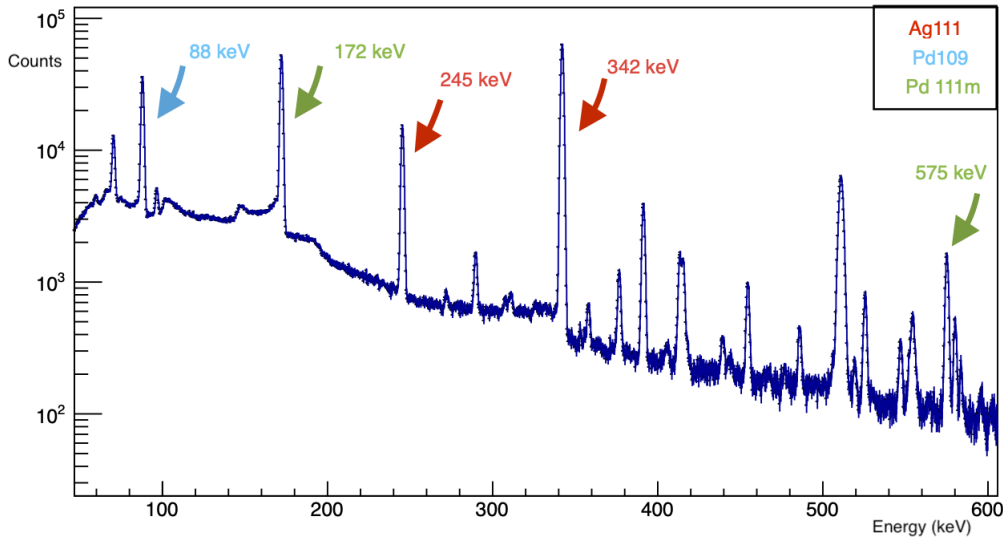


Figura 8: Spettro dopo 10 ore di presa dati, con evidenziazione dei picchi di interesse al fine dell'analisi

Mentre fino alla terza giornata di presa dati restano piuttosto visibili sia i picchi riguardanti le transizioni del  $^{109}\text{Pd}$  ( $T_{1/2} \approx 13.58h$ ) e del  $^{111m}\text{Pd}$  ( $T_{1/2} \approx 5.5h$ ), dalla quarta giornata di presa dati i picchi più evidenti risultano quelli caratteristici dell'  $^{111}\text{Ag}$  ( $T_{1/2} \approx 7.5d$ ), come atteso vista la notevole differenza di tempo di dimezzamento tra i radionuclidi in esame. Segue uno spettro del campione riguardante la fine della quarta giornata di presa dati:

<sup>5</sup>Ottenuta con il software ROOT ponendo un Confidence Level per l'interpolazione del 68.3%

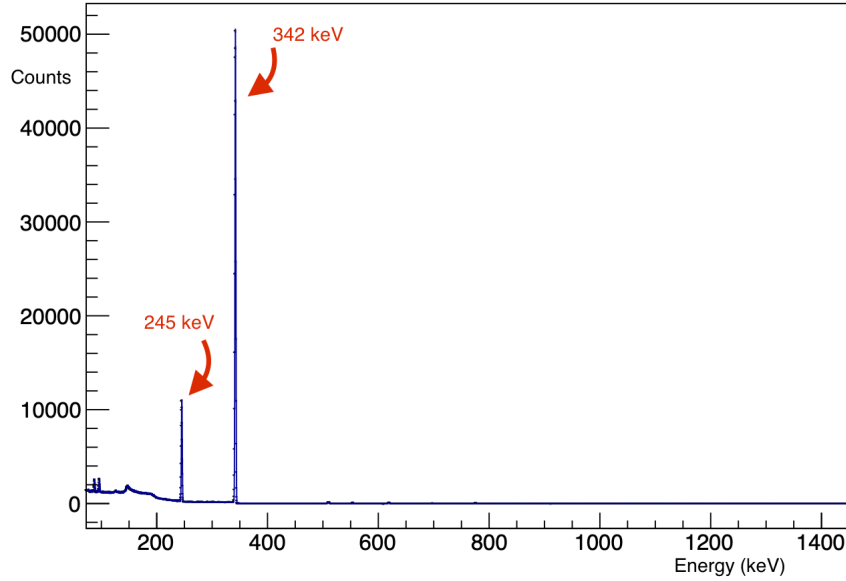


Figura 9: Spettro al termine della quarta giornata

Come anticipato, gli unici picchi che restano ben visibili sono proprio quelli dell'argento 111. I dati utilizzati per l'analisi che segue, in particolare quelli riguardanti energie e branching ratio dei fotopicchi, sono stati presi nuovamente dal sito DDEP <sup>6</sup> e vengono raccolti nella seguente tabella:

Radionuclide	$E(\sigma_E)$ [keV]	$Br(\sigma_{Br})$ (%)
$^{109}Pd$	88.03360(103)	3.66(6)
$^{111m}Pd$	575.0(1)	3.3(4)
$^{111}Ag$	245.40(2)	1.24(9)
	342.13(2)	6.7(3)

Tabella 2: Valori energie e branching ratio dei vari picchi analizzati, in base al radionuclide considerato.

In particolare, i decadimenti seguiti dai radionuclidi in analisi sono schematizzabili come segue:

$$^{109}Pd \rightarrow ^{109}Ag + \beta^-$$

$$^{111m}Pd \rightarrow ^{111}Ag + \beta^-$$

$$^{111}Ag \rightarrow ^{111}Cd + \beta^-$$

#### 0.4.2 Correzione di tempo morto

Con l'espressione **dead time** (*tempo morto*) si intende l'intervallo di tempo durante il quale l'elettronica di acquisizione non è in grado di processare un nuovo segnale in arrivo, dal momento in cui la suddetta sta ancora elaborando il precedente. Come conseguenza, alcuni conteggi non vengono analizzati e risultano persi. Al fine di proseguire nell'analisi, si rende dunque necessario dare una stima di tale correzione che, per rate di acquisizione elevati, ci si attende essere piuttosto incisiva.

<sup>6</sup>del laboratorio francese L.N.H.B., *Laboratoire National Henri Becquerel*

Sperimentalmente si è proceduto ponendo una sorgente ( $^{133}\text{Ba}$ ) ad una distanza fissa dal rivelatore, misurando dapprima il numero di conteggi inerenti diversi fotopicchi in setup di sorgente isolata. Successivamente si è proceduto alzando il rate di acquisizione tramite l'inserimento di un'altra sorgente ( $^{60}\text{Co}$ ), a distanza variabile dal detector, per poi misurare nuovamente le aree dei fotopicchi di interesse. Dopo di ciò, viene calcolato il rapporto tra l'area di ciascun fotopicco misurato in assenza della seconda sorgente, e le aree misurate con la seconda sorgente a varie distanze. Nel particolare, le aree sottostanti i fotopicchi di interesse sono state ottenute tramite fit gaussiano del picco con sottrazione di un fondo lineare delle immediate vicinanze.

Infine si interpola con una polinomiale di terzo ordine l'andamento dei suddetti risultati in funzione del **rate filtrato**, ossia il rate di acquisizione da cui si rimuovono gli eventi di **pile up**<sup>7</sup> e di **saturazione**. I parametri trovati vengono dunque utilizzati per definire la funzione che dovrebbe descrivere la correzione di tempo morto per il detector.

Segue il grafico ottenuto:

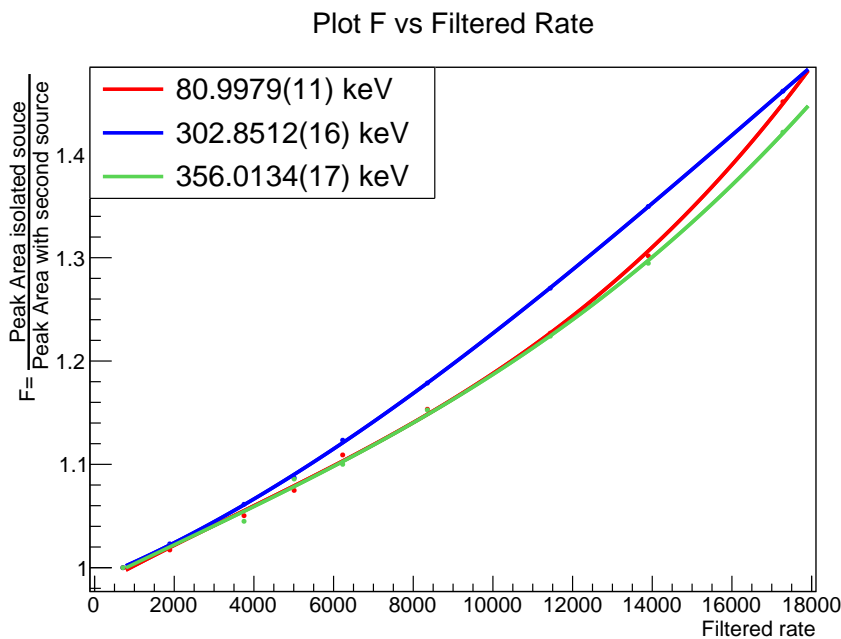


Figura 10: Grafico dell'andamento dei conteggi in funzione del rate filtrato a varie energie

Ciò che ci si attende, nel caso in cui la correzione di tempo morto sia trascurabile, è che non venga influenzata l'area di fotopicchi al variare del rate: appurato che così non è, come evidenzia il grafico sopra, ci si aspetta comunque sia che la correzione non abbia dipendenza dall'energia, sia che risulti stabile. Tuttavia, ciò che si trova è che mentre la non dipendenza dall'energia risulta confermata, la stabilità della correzione sembrerebbe venire meno, in quanto si evidenzia una forte dipendenza di essa da tutti i parametri dell'acquisizione dati.

Dato che, come anticipato, la correzione di tempo morto risulta incisiva solo per rate abbastanza elevati, che nell'analisi in questione si presenta solo nelle prime ore di acquisizione, i risultati ottenuti si possono per ora considerare soddisfacenti.

### 0.4.3 Stima del tempo di dimezzamento e dell'attività dei radionuclidi

Per la stima del tempo di dimezzamento si procede dapprima calibrando in energia gli spettri, sottraendovi il background, ed applicandovi la correzione di tempo morto stimata come spiegato nel capitolo

<sup>7</sup>Caso in cui si presentano due eventi nella stessa finestra di digitalizzazione

2.2.2. Gli spettri così ottenuti vengono poi suddivisi in campioni più brevi (ciascuno di una certa durata di acquisizione, 20 minuti o un'ora a seconda del radionuclide analizzato) ed in essi vengono individuati e fittati i fotopicchi di interesse, così da ottenere, tramite l'area sottesa ad ogni fotopicco, il numero di conteggi  $F_\gamma$  ad esso associati.

I fit gaussiani vengono realizzati come spiegato nell'analisi precedente, andando poi ad integrare la funzione fittante su un intervallato simmetrico attorno al centroide e normalizzando il valore ottenuto per la larghezza di un bin. Ad esso vi si associa l'incertezza data da  $\sigma_{F_\gamma} = \sqrt{(integral)(binwidth)^{-1}}$ .

Sapendo che l'andamento dei conteggi in funzione del tempo segue una decrescita esponenziale, si procede tramite un fit linearizzato del tipo

$$\ln(F_\gamma) = q + m \cdot T[s] \quad (6)$$

da cui si trova il tempo di dimezzamento come

$$T_{\frac{1}{2}} = -\frac{\ln(2)}{m} [s] \quad (7)$$

Per quanto concerne invece le attività dei vari radionuclidi, esse vengono stimate come

$$A(t) = \frac{F_\gamma}{T \cdot Br \cdot \epsilon} [Bq] \quad (8)$$

ove  $F_\gamma$  è l'area del fotopicco,  $T$  il tempo di acquisizione e  $B_\gamma$  il Branching Ratio relativo al picco in analisi. I dati utilizzati per i Branching Ratio si trovano in Tabella 2.2. All'incertezza statistica associata ad  $A(t)$  contribuisce solo l'incertezza sui conteggi  $F_\gamma$ , in quanto l'incertezza tabulata sul branching ratio e quella associata all'efficienza, calcolata come esposto nel paragrafo 2.1.2, costituiscono la componente sistematica, dato che assumono lo stesso risultato su tutti i valori di attività della riga analizzata.

### $^{109}\text{Pd}$

Per l'analisi del **Palladio 109** si suddividono gli spettri di acquisizione in sotto campioni di durata temporale 10 minuti. In quanto il tempo di dimezzamento atteso si aggira su  $T_{\frac{1}{2}} \approx 13.6 \text{ h}$ , si considera un intervallo di tempo che comincia all'iniziare della presa dati e termina alla fine della quarta giornata.

Il picco analizzato per questo radionuclide è quello di  $E = 88.03360(130) \text{ keV}$ .

Si ottiene

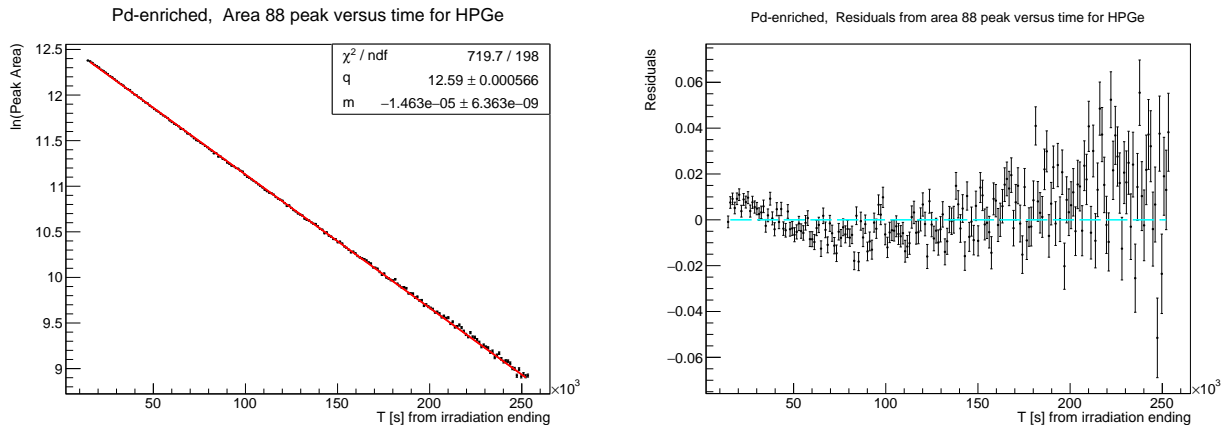


Figura 11: Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di  $^{109}\text{Pd}$

da cui si estrae il tempo di dimezzamento

$$T_{\frac{1}{2}, 109Pd, sper} = 13.16 \pm 0.01_{stat} [ore] \quad (9)$$

Dall'analisi dei residui si nota un andamento piuttosto oscillatorio dei dati, ed il  $\chi^2$  suggerisce una notevole sottostima delle incertezze associate alle aree fittate. Confrontando il risultato con l'attesa, ossia

$$T_{\frac{1}{2}, 109Pd, att} = 13.58 \pm 0.12 [ore] \quad (10)$$

si trova una compatibilità scadente ( $\lambda \approx 3.5$ ), probabilmente dovuta anche alla sottostima dell'incertezza, di cui si è considerata solo la componente statistica. Per quanto concerne l'attività in funzione del tempo, si trova

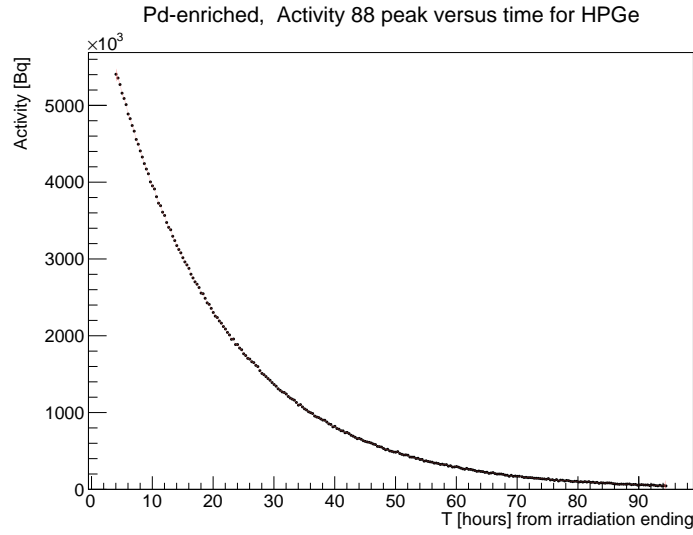


Figura 12: Andamento attività della riga 88 keV di  $^{109}Pd$  in funzione del tempo

Risulta evidente come l'attività decresca secondo le attese: la curva risulta ben delineata ed i punti non presentano oscillazioni visibili.

### $^{111m}Pd$

Analogamente a quanto fatto nel paragrafo precedente, anche nel caso del **Palladio 111** si considera solo una parte degli spettri acquisiti: in particolare, essendo  $T_{\frac{1}{2}} \approx 5.5h$  per questo radionuclide vengono considerate solo le prime tre giornate di acquisizione.

Il picco analizzato è quello di energia 575.0 keV.

Si ottiene

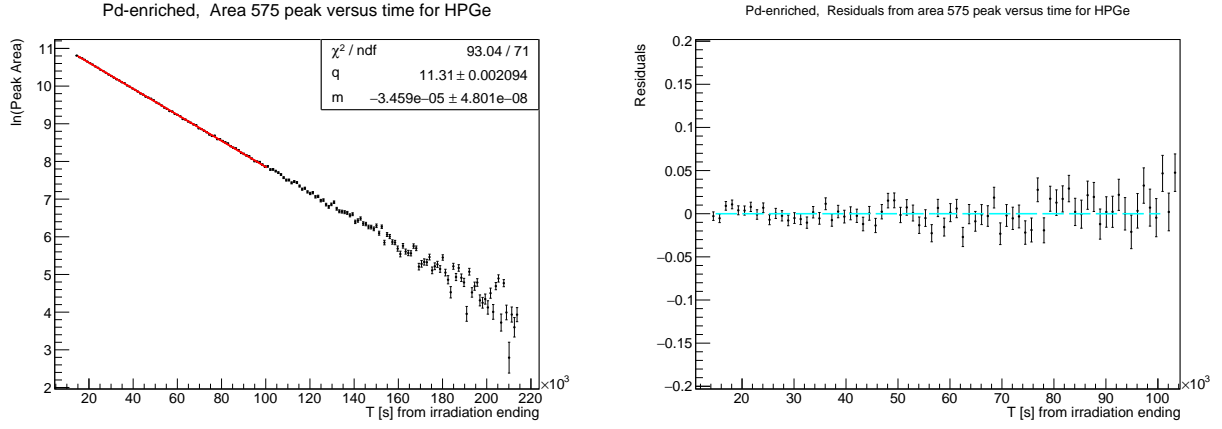


Figura 13: Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di  $^{111m}\text{Pd}$ , picco 575 keV

da cui si estrae il tempo di dimezzamento

$$T_{\frac{1}{2},^{111m}\text{Pd},575} = 5.567 \pm 0.008_{\text{stat}} \text{ [ore]} \quad (11)$$

Dall'analisi dei residui si nota nuovamente un andamento oscillatorio, meno marcato rispetto al precedente, oltre ad un progressivo aumento dell'incertezza associata ai conteggi con l'avanzare del tempo. Il  $\chi^2$  suggerisce ancora una sottostima delle incertezze associate alle aree fittate, anche se meno evidente. Come si vede dal grafico a sinistra nella figura 2.12, già attorno alle 90 ore le oscillazioni attorno all'andamento lineare iniziano ad essere non banali: si è scelto dunque di accorciare ulteriormente il tempo su cui fittare. Confrontando il risultato ottenuto con quello atteso, ossia

$$T_{\frac{1}{2},^{111m}\text{Pd},\text{att}} = 5.5 \pm 0.1 \text{ [ore]} \quad (12)$$

si trova un'ottima compatibilità ( $\lambda \approx 0.7$ ) tra i due valori. Per quanto concerne l'attività in funzione del tempo, si trova

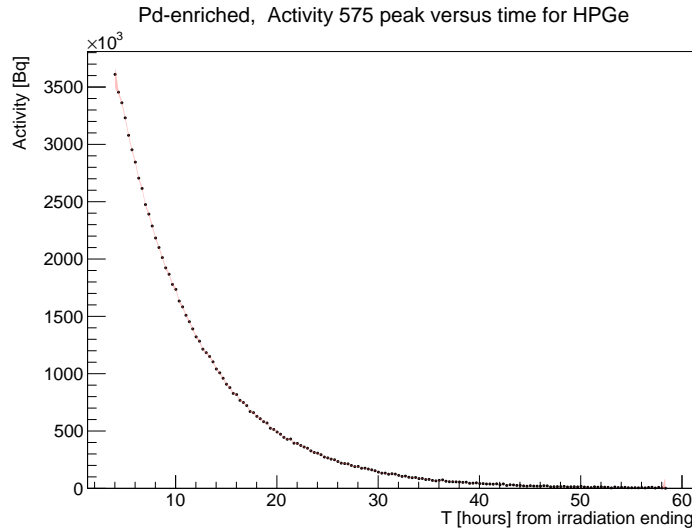


Figura 14: Andamento attività della riga 575 keV di  $^{111m}\text{Pd}$  in funzione del tempo

Anche in questo caso i punti seguono visibilmente l'andamento atteso, senza discostarsi da esso.

### $^{111}\text{Ag}$

A differenza dei radionuclidi esaminati fino ad ora, il tempo di dimezzamento atteso per l'**Argento 111** si aggira sui  $T_{\frac{1}{2}} \approx 7.5 \text{ giorni}$ , permettendo di prendere in analisi l'intero spettro.



I picchi analizzati sono quelli di energia 342.13 keV e 245.4 keV.

Si ottiene

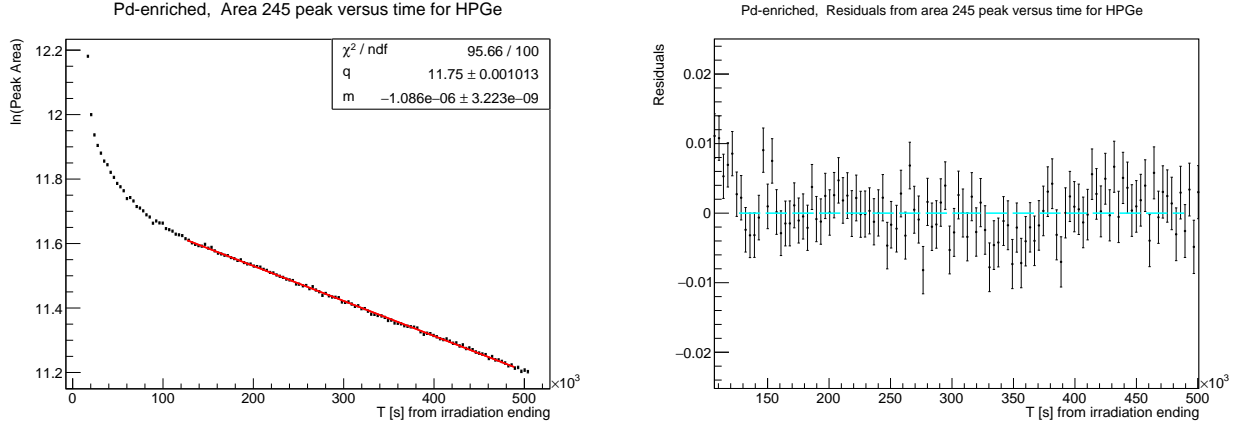


Figura 15: Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di  $^{111}\text{Ag}$ , picco 342 keV

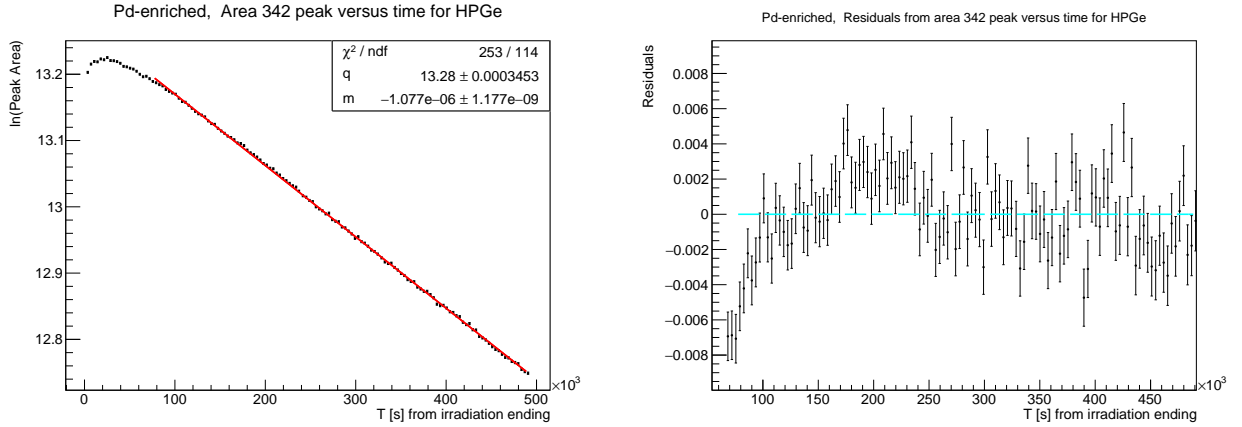


Figura 16: Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di  $^{111}\text{Ag}$ , picco 245 keV

da cui si ottiene

$$T_{\frac{1}{2},^{111}\text{Ag},245} = 7.39 \pm 0.02_{\text{stat}} \text{ [giorni]} \quad T_{\frac{1}{2},^{111}\text{Ag},342} = 7.451 \pm 0.008_{\text{stat}} \text{ [giorni]} \quad (13)$$

Dall'analisi dei residui si nota anche in questo caso l'andamento oscillante dei dati, mentre i  $\chi^2$  ottenuti sono notevolmente diversi: nel caso del 342 keV, come in precedenza, la sottostima delle incertezze e l'oscillazione dei risultati attorno alla funzione di fit risulta notevole, mentre nel caso del 245 keV il test da un risultato inferiore all'attesa, da cui si possono trarre considerazioni opposte rispetto alle precedenti. In questo caso il tempo di dimezzamento atteso è

$$T_{\frac{1}{2},^{111}\text{Ag},\text{att}} = 7.45 \pm 0.01 \text{ [giorni]} \quad (14)$$

da cui si evince un'eccellente compatibilità con la stima ottenuta mediante il picco a 342 keV ( $\lambda \approx 0.08$ ) ed una compatibilità discreta con la stima che si ricava dal picco a 245 keV ( $\lambda \approx 2.7$ ). Le due stime ottenute sperimentalmente analizzando le due diverse transizioni sono solo discretamente compatibili tra loro ( $\lambda \approx 2.8$ ).

L'attività sperimentale in funzione del tempo ha il seguente andamento:

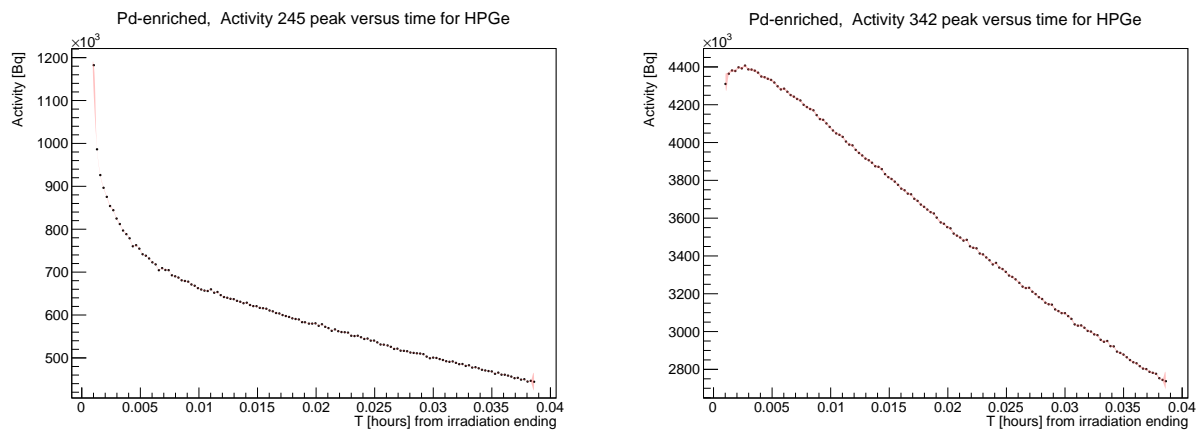


Figura 17: Andamento attività delle righe 342 keV e 245 keV di  $^{111}\text{Ag}$  in funzione del tempo

In questo caso si nota, per tempi brevi dall'inizio dell'acquisizione:

- Picco 245 keV: crescita molto più repentina dell'attività rispetto a quanto atteso. Questo è un fatto probabilmente dovuto alla presenza di qualche evento non caratteristico della transizione esaminata, che causa una sovrastima dei conteggi effettivamente facenti parte del fotopicco.
- Picco 342 keV: Una lieve decrescita dell'attività rispetto all'attesa. In questo caso, l'avvenimento è probabilmente da imputare alla correzione di tempo morto che, come anticipato in sezione 2.2.2, per bassi tempi è molto più incisiva, e risulta ancora sottocompensata.

# Conclusioni

Nella fase di analisi dello spettro del campione di Palladio arricchito, presentata nella sezione 2.2, sono stati identificati ed analizzati i picchi relativi alle transizioni  $\gamma$  di interesse, ricavando il tempo di dimezzamento e l'attività sperimentale per i radionuclidi corrispondenti. Evidenziata la sottostima delle incertezze associate alle grandezze ricavate, data la mancanza della componente sistematica, per i tempi di dimezzamento si trova in generale una compatibilità almeno discreta con i valori attesi. Mentre per il  $^{109}\text{Pd}$  e il  $^{111m}\text{Pd}$  l'andamento delle attività non presenta scostamenti dall'attesa, nell'analisi dei due picchi dell'  $^{111}\text{Ag}$  si trovano, per bassi tempi, dei comportamenti inattesi, in un caso (245 keV) probabilmente imputabili ad un'ancora imprecisa stima del dead time del rivelatore, nell'altro (342 keV) riconducibili alla presenza di eventi di non interesse sotto il picco studiato.

Per quanto concerne invece la stima della correzione di tempo morto, la questione resta ancora da concludersi: la sua dipendenza non attesa da tutti i parametri dell'acquisizione rende la trattazione purtroppo incompleta e probabilmente imprecisa a bassi tempi, mentre per tempi più elevati non dovrebbe dare alcun contributo non trascurabile.

Infine, si evidenzia come la stima della curva di efficienza per il detector HPGe non fornisca risultati certi su basse energie, dato il limitato numero di picchi a disposizione in quella zona: in particolare, l'efficienza del rivelatore utilizzata nella stima del picco ad 88 keV potrebbe non essere precisa.

# Elenco delle figure

1	Schema del metodo ISOL . . . . .	v
2	Plot di calibrazione in energia con annessi residui per $HPGe$ . . . . .	viii
3	Plot di calibrazione in energia con annessi residui per $LaBr_3$ . . . . .	viii
4	Plot di risoluzione con annessi residui per $HPGe$ . . . . .	ix
5	Plot di risoluzione con annessi residui per $LaBr_3$ . . . . .	ix
6	Plot di efficienza con annessi residui per $HPGe$ . . . . .	x
7	Plot di efficienza con annessi residui per $HPGe$ . . . . .	x
8	Spettro dopo 10 ore di presa dati, con evidenziazione dei picchi di interesse al fine dell'analisi . . . . .	xi
9	Spettro al termine della quarta giornata . . . . .	xii
10	Grafico dell'andamento dei conteggi in funzione del rate filtrato a varie energie . . . .	xiii
11	Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di $^{109}Pd$ . . . . .	xiv
12	Andamento attività della riga 88 keV di $^{109}Pd$ in funzione del tempo . . . . .	xv
13	Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di $^{111m}Pd$ , picco 575 keV . .	xvi
14	Andamento attività della riga 575 keV di $^{111m}Pd$ in funzione del tempo . . . . .	xvi
15	Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di $^{111}Ag$ , picco 342 keV . . .	xvii
16	Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di $^{111}Ag$ , picco 245 keV . . .	xvii
17	Andamento attività delle righe 342 keV e 245 keV di $^{111}Ag$ in funzione del tempo . . .	xviii

# Bibliografia

- [1] INFN. *ISOLPHARM\_EIRA*. URL: [https://isolpharm.pd.infn.it/web/wp-content/uploads/2019/07/ISOLPHARM\\_EIRA\\_proposal-PDF.pdf](https://isolpharm.pd.infn.it/web/wp-content/uploads/2019/07/ISOLPHARM_EIRA_proposal-PDF.pdf).