

Studio dei radionuclidi prodotti al reattore L.E.N.A. per il progetto ISOLPHARM_EIRA

Leso Aurora
21 Settembre 2021



UNIVERSITÀ
DEGLI STUDI
DI PADOVA

Outline

- 1** Introduzione ed obiettivi
- 2** Caratterizzazione apparato sperimentale
- 3** Spettro del campione
- 4** Correzione di tempo morto
- 5** Stima di tempo di dimezzamento e attività
- 6** Conclusioni
- 7** Backup Slides

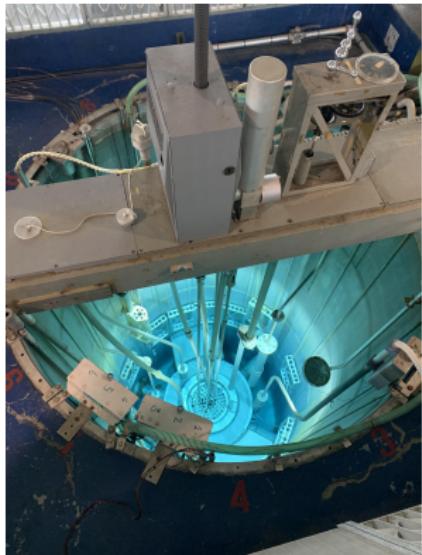
Introduzione

Il progetto ISOLPHARM

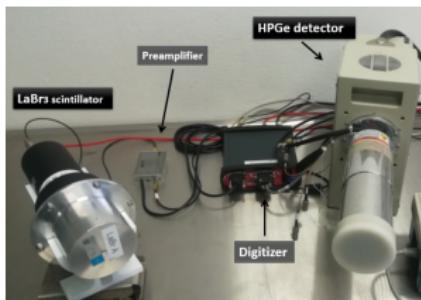
- Produzione di radioisotopi ad elevata purezza tramite SPES
- SPES: facility ISOL (in costruzione a Legnaro) dedicata allo studio di nuclei esotici e ad applicazioni con fasci radioattivi

L'esperimento ISOLPHARM_EIRA:

- caratterizzazione dei detector utilizzati: HPGe e *LaBr₃*
- stima della produzione di ^{111}Ag tramite irraggiamento di campioni di palladio naturale e arricchito in TRIGA MARK II
- Confronto con le simulazioni MCNPX e PHITS



Caratterizzazione detector: calibrazione in energia, risoluzione e determinazione efficienza



Detector a disposizione

- **HPGe**: *High Purity Germanium Detector*, Myrion Technologies
- **LaBr₃**: Scintillatore al bromuro di lantano, Saint-Gobain

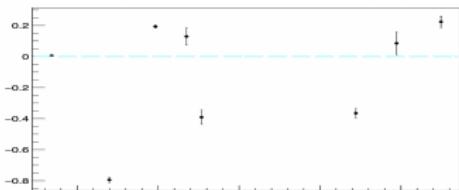
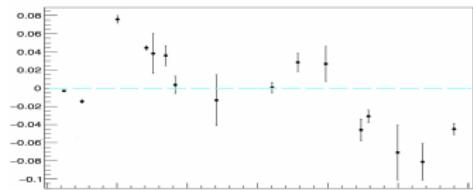
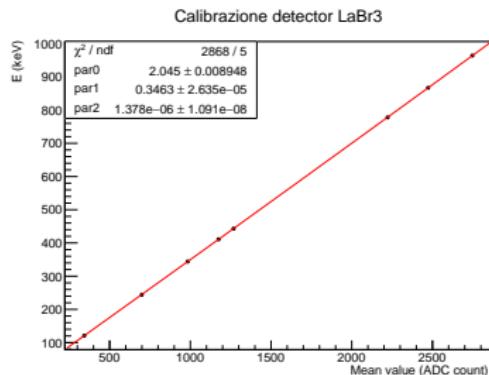
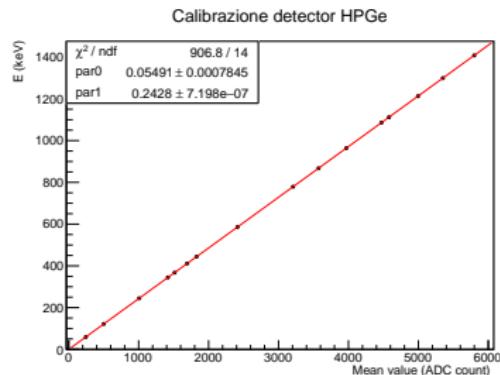
Procedura



- Acquisizione spettri di due sorgenti: ^{241}Am e ^{152}Eu
- Fit gaussiano dei fotopicchi
- Fit lineare/parabolico per calibrazione o $FWHM = \sqrt{a^2 + b^2 \cdot E}$ per risoluzione

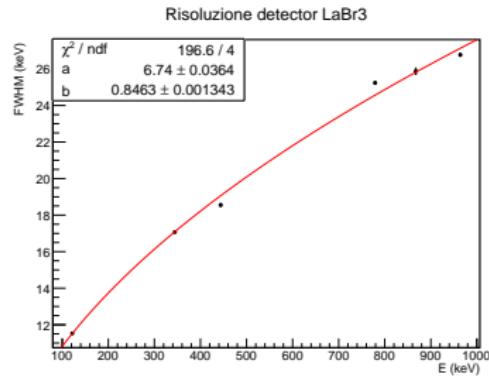
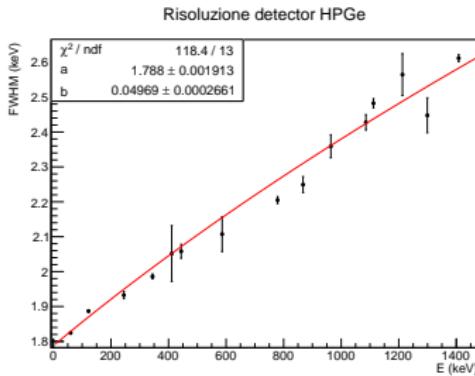
Calibrazione in energia

In entrambi i casi, i residui evidenziano la sottostima delle incertezze, che constano della sola componente statistica.



Risoluzione energetica

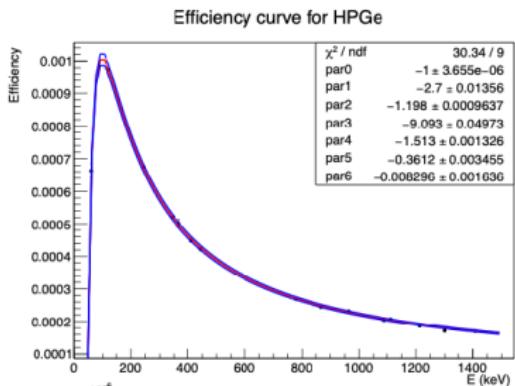
- **HPGe:** Risoluzione di 2.3 keV a 1 MeV
- ***LaBr₃*:** Risoluzione di 26 keV a 1 MeV



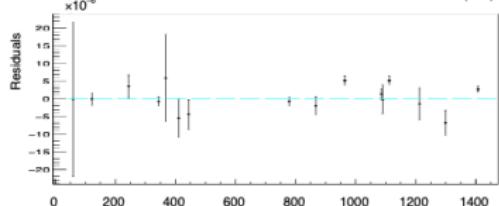
Efficienza

Funzione di fit per l'efficienza:

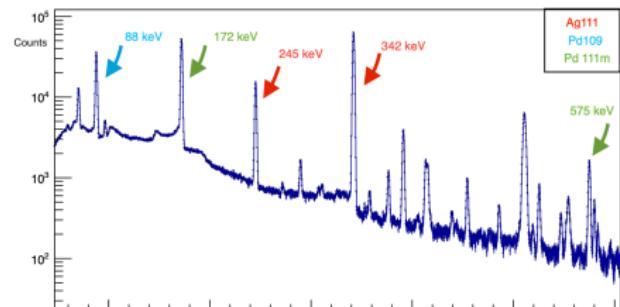
$$\epsilon = a_1 [\exp(-a_2 E^{a_3}) + \exp(a_4 E^{a_5})] \cdot (1 - \exp(a_6 E^{a_7}))$$



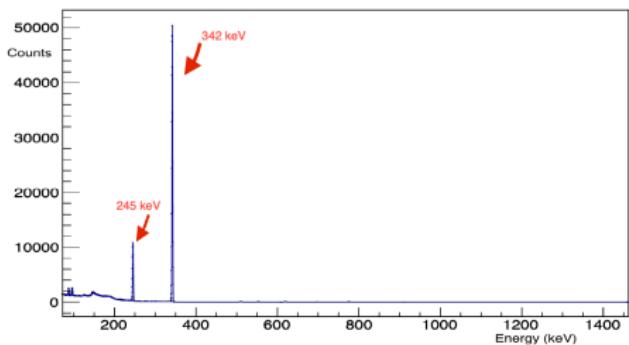
- $\epsilon = \frac{F_\gamma}{B_\gamma A T} \text{ vs } E \text{ (keV)}$
- Incertezza sistematica dell'attività ($\pm 1.7\%$) dominante rispetto alla componente statistica
- Ben rappresentativo ad alte energie
- Approssimativo a basse energie, per i pochi picchi a disposizione



Spettro del campione



Campione di palladio arricchito di 62.7 mg irraggiato per 1 h.



Decadimenti di interesse:

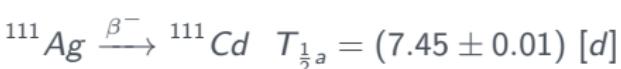
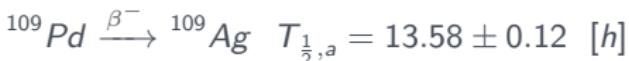
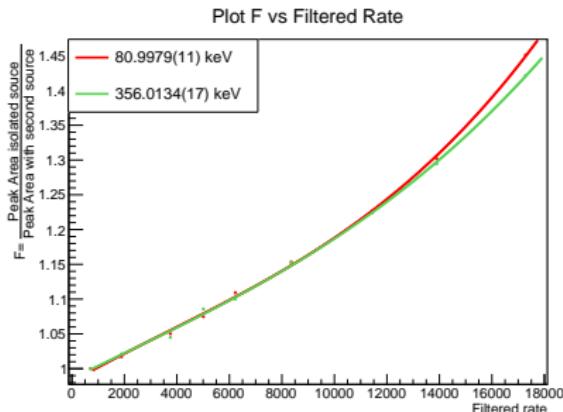


Figure: In alto, spettro del campione
dopo 10 h, in basso spettro del
campione dopo 4 d

Correzione di tempo morto

Si nota che la scheda di acquisizione CAEN utilizzata fornisce una correzione di tempo morto diversa da quanto atteso: si procede dunque ad una sua stima sperimentale.



- ^{133}Ba fisso e ^{60}Co mobile rispetto al rivelatore HPGe
- Verificata indipendenza della correzione dall'energia, anche se è presente una forte dipendenza da setting della scheda stessa. **La stima trovata è accettabile ma tutt'ora in fase di studio.**
- Incisiva solo su rate elevati

Stima di attività e tempo di dimezzamento

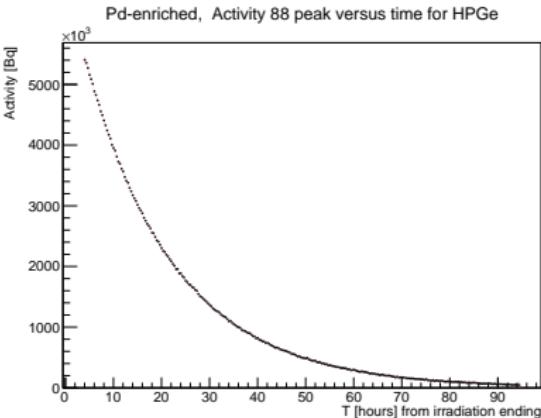
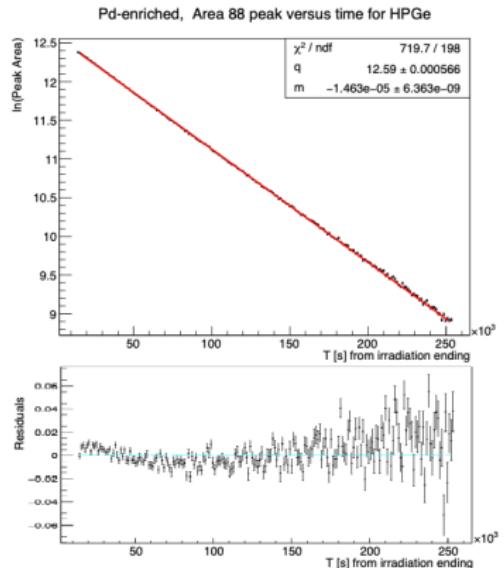
Stima del tempo di dimezzamento

- Calibrazione in energia, correzione di tempo morto e suddivisione dello spettro in sotto campioni
- Fit gaussiano del fotopicco di interesse e sottrazione del fondo fittato linearmente
- $\ln(F_\gamma) = q + m \cdot T$

Proiezione dell'attività al termine dell'irraggiamento

- Stima dell'attività $A = \frac{F_\gamma}{T \cdot Br \cdot \epsilon}$
- Fit esponenziale della curva A vs T

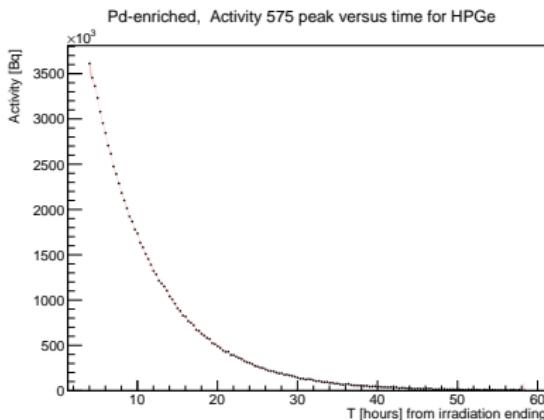
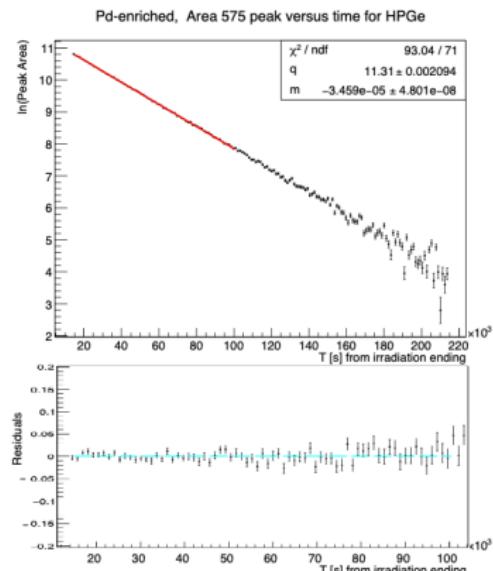
E (keV)	Br(σ_{Br})[%]	J_i^π	J_f^π	$\epsilon(\sigma_e) \cdot 10^{-4}$
88.033(1)	3.67(13)	$7/2^+$	$1/2^-$	10.04 (18)



- $T_{\frac{1}{2},s} = 13.16 \pm 0.01_{\text{stat}} \text{ [h]}$
- $T_{\frac{1}{2},a} = 13.58 \pm 0.12 \text{ [h]}$
- $\lambda = 3.5$
- $A_0 = (0.1806 \pm 0.0001) \text{ [mCi]}$

^{111m}Pd

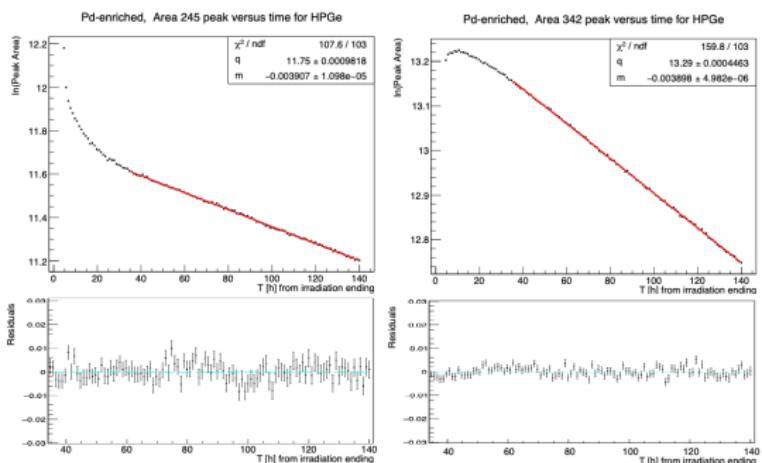
E (keV)	$Br(\sigma_{Br})$ [%]	J_f^π	J_f^π	$\epsilon(\sigma_e) \cdot 10^{-4}$
575.0(1)	3.3(4)	$11/2^+$	$9/2^+$	3.46(4)



- $T_{\frac{1}{2},s} = 5.567 \pm 0.008_{stat} [h]$
- $T_{\frac{1}{2},a} = 5.5 \pm 0.1 [h]$
- $\lambda = 0.7$
- $A_0 = (0.1610 \pm 0.0003) [mCi]$

111 Ag

E (keV)	$\text{Br}(\sigma_{Br})[\%]$	J_i^π	J_f^π	$\epsilon(\sigma_\epsilon) 10^{-4}$
245.40(2)	1.24(9)	$5/2^+$	$1/2^+$	6.68 (9)
342.13(2)	6.7(3)	$3/2^+$	$1/2^+$	5.23 (7)



- $T_{\frac{1}{2},245} = (7.39 \pm 0.02_{st})[d](\lambda \approx 2.7)$
 - $T_{\frac{1}{2},342} = (7.451 \pm 0.008_{st})[d](\lambda \approx 0.08)$
 - $T_{\frac{1}{2}a} = (7.45 \pm 0.01)[d]$
 - $A_0 = (123.7 \pm 0.2)[\mu Ci]$
 - **245 keV**: rapida crescita a tempi brevi per probabile presenza di eventi non di interesse sotto il picco
 - **342 keV**: lieve decrescita ancora in analisi (possibile sotto compensazione della correzione di tempo morto, o effettiva dipendenza dal processo fisico)

^{111}Ag : risultati e commenti

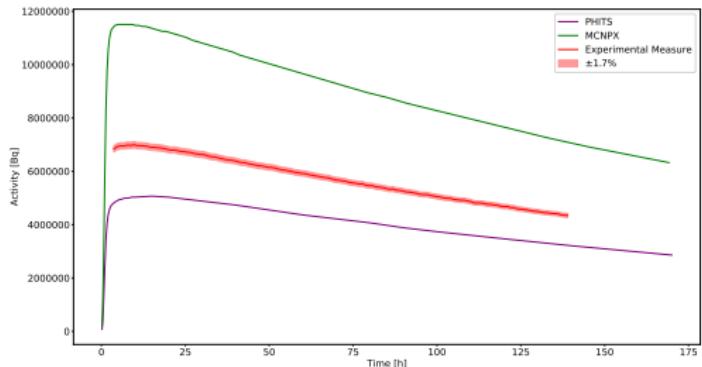


Figure: Confronto dati con simulazioni MCNPX e PHITS per irraggiamento 1h e campione di 100 mg

- La simulazione **MCNPX** sovrasta la produzione di un fattore ≈ 1.64
- La simulazione **PHITS** sottosta la produzione.

Previsione di produzione

Sfruttando la simulazione MCNPX (effettuata dal gruppo di Brescia) di un campione di 100 mg irraggiato per 18 ore si stima una produzione di ^{111}Ag pari a $\approx 1.81 \text{ [mCi]}$ dopo 3 giorni dall'irraggiamento.

Conclusioni

Si è stimata dunque la produzione di ^{111}Ag tramite irraggiamento di un campione di palladio arricchito di 62.7 mg, trovando il risultato $A_0 = (0.1610 \pm 0.0003) [\text{mCi}]$.

Sfruttando la previsione di produzione (simulazione **MCNPX**), si trova $A_0 \approx 1.81[\text{mCi}]$, un valore sufficiente per permettere l'avvio dei test in vivo.

Grazie per l'attenzione!



Backup Slides

Backup Slides

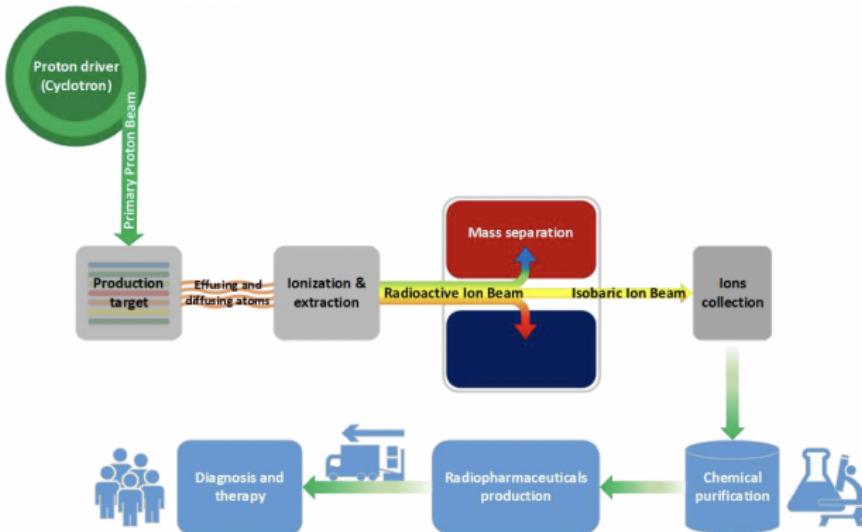


Figure: schema del funzionamento di SPES

Vantaggi:

- Produzione di isotopi altamente puri
- Resa più facile la produzione di fasci di nuclei neutron-rich
- Minor produzione di scorie grazie all'inferiore materiale fissile richiesto per la produzione del target

Per quanto concerne **ISOLPHARM_EIRA**, si utilizza un bersaglio primario di carburo di uranio ed un fascio primario di ≈ 40 keV che consente di ottenere ^{111}Ag

Apparato Sperimentale

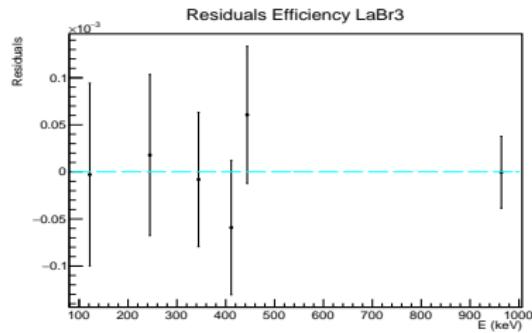
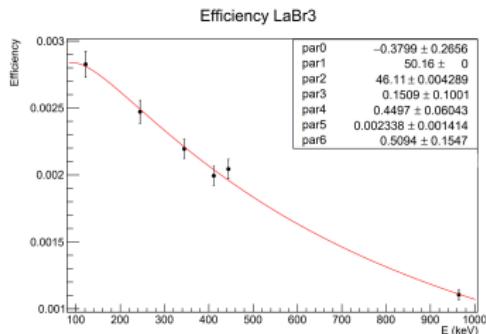
- **HPGe** (*High Purity Germanium Detector*, ReGe, Myrion Technologies) raffreddato elettricamente (CRYO PULSE 5) con preamplificatore integrato;
- **Scintillatore al Bromuro di Lantanio** ($LaBr_3$, B380 Saint-Gobain) con preamplificatore esterno CAEN A1424;
- **Digitalizer** CAEN DT-5780, sfruttato per alimentare i detector e per l'acquisizione;
- Software per l'acquisizione **COMPASS**;
- **Sorgenti** di Europio ^{152}Eu e di Americio ^{241}Am per la fase di calibrazione dei detector;
- **Campione** di Palladio arricchito per la fase di misura, massa 62.7 mg, irraggiato per 1 h al L.E.N.A. di Pavia.

Efficienze stimate per i picchi con HPGe

Radionuclide	$E(\sigma_E)$ [keV]	$[\epsilon \pm \sigma_{\epsilon_{stat}}]$ (10^{-4})
^{109}Pd	88.033(1)	10.04 ± 0.18
	172.18(8)	8.4 ± 0.1
^{111m}Pd	575.0(1)	3.46 ± 0.04
	245.40(2)	6.68 ± 0.09
^{111}Ag	342.13(2)	5.23 ± 0.07

Efficienza LaBr_3

- Pochi picchi a disposizione
- In quanto non utile ai fini dell'analisi di tesi, presentato a scopo puramente indicativo



Compatibilità risultati sperimentali ed attesa

Radionuclide	$E(\sigma_E)$ [keV]	$T_{\frac{1}{2},sper}$	$T_{\frac{1}{2},att}$	λ
^{109}Pd	88.033(1)	$13.16 \pm 0.01_{stat}$ [ore]	13.58 ± 0.12 [ore]	3.5
^{111m}Pd	575.0(1)	$5.567 \pm 0.008_{stat}$ [ore]	5.5 ± 0.1 [ore]	0.7
^{111}Ag	245.40(2)	$7.39 \pm 0.02_{stat}$ [d]	7.45 ± 0.01 [d]	2.7
	342.13(2)	$7.451 \pm 0.008_{stat}$ [d]	7.45 ± 0.01 [d]	0.08

Table: Tempi di dimezzamento attesi e sperimentali per i vari radionuclidi considerati.



Fine

Fine