

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

Laureanda

Aurora Leso

Anno Accademico 2020/2021

Capitolo 1

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 dell'Istituto Nazionale di Fisica Nucleare e del Dipartimento di Fisica e Astronomia di Padova, l'obiettivo è quello di studiare la produzione di ^{111}Ag ed altri radioisotopi innovativi attraverso l'irraggiamento in reattore di un campione di Palladio naturale e di un campione di Palladio arricchito, per quanto concerne la prima fase del progetto, ed al ciclotrone SPES dei Laboratori Nazionali di Legnaro per le prossime fasi. La misura della produzione dei radioisotopi di interesse è realizzata principalmente tramite analisi di spettroscopia gamma.

L'analisi successivamente presentata si concentra sullo studio degli spettri di emissione di un campione di Palladio arricchito irraggiato a febbraio 2021 mediante il reattore nucleare TRIGA MARK II presso il L.E.N.A. di Pavia, previa opportune analisi inerenti calibrazione, risoluzione ed efficienza dei detector utilizzati, ossia HPGe e LaBr₃, effettuate all'INFN di Legnaro.

Dai suddetti spettri sono stati identificati ed analizzati i principali radionuclidi prodotti (^{109}Pd , ^{111m}Pd , ^{111}Ag) e per ognuno di essi si è trovata sia una stima per il tempo di dimezzamento che per l'attività.

Indice

1	Abstract	3
2	Introduzione	1
1	Il progetto ISOLPHARM	1
1.1	L'esperimento ISOLPHARM_EIRA	2
2	L'apparato sperimentale	2
3	Analisi Dati	3
3	Caratterizzazione dei detector	3
3.1	Calibrazione e risoluzione energetica	3
3.2	Curve di efficienza	5
4	Analisi del campione	7
4.1	Spettro del campione	7
4.2	Correzione di tempo morto	9
4.3	Stima del tempo di dimezzamento e dell'attività dei radionuclidi	10
4	Conclusioni	16

Capitolo 2

Introduzione

1 Il progetto ISOLPHARM

L'obiettivo del progetto **ISOLPHARM**, in cui si colloca l'esperimento **ISOLPHARM_EIRA**, è quello di produrre radioisotopi di elevatissima purezza 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*), dedicata allo studio dei nuclei esotici ¹ e ad applicazioni con fasci radioattivi.

Per quanto concerne il suo funzionamento [1], SPES sfrutta un ciclotrone con cui si accelera un fascio intenso di protoni di bassa energia dai quali si ottengono, tramite fissione, i radionuclidi di interesse, poi estratti e ionizzati. Gli ioni prodotti vengono poi accelerati andando a costituire il *Radioactive Ion Beam*, un fascio di nuclei instabili, da cui si ricava un fascio isobarico tramite separatore elettromagnetico di massa. Gli ioni prodotti sono poi raccolti sfruttando la collisione del fascio con un apposito bersaglio (*ion collector*), il quale, grazie ad un successivo 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:

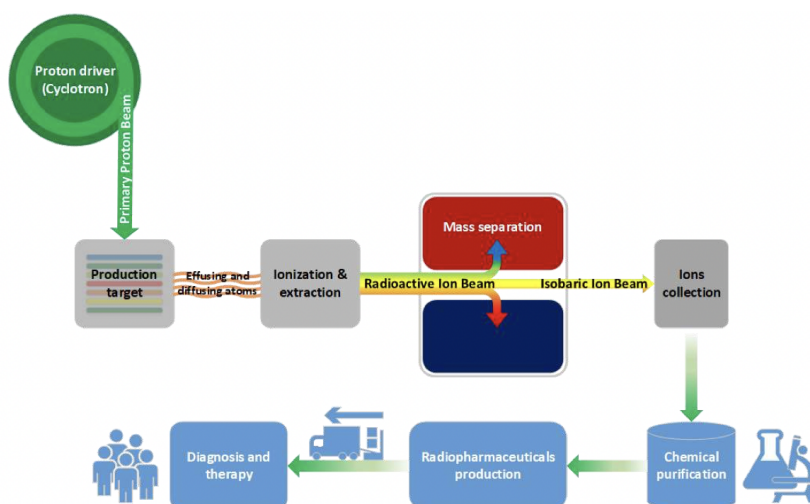


Figura 2.1: Schema del metodo ISOL

I vantaggi della tecnica descritta sono molteplici, e tra di essi troviamo, oltre alla possibilità di produrre radioisotopi selezionati altamente puri, il fatto che SPES consenta di ottenere fasci di ioni ricchi di neutroni e dunque fortemente instabili, difficili da ottenere con tecniche meno evolute, insieme alla

¹Nuclei caratterizzati da un forte sbilanciamento tra numero di protoni e numeri di neutroni

minor produzione di scorie da smaltire rispetto alla produzione in un reattore, grazie alla minor quantità di materiale fissile richiesta per la produzione del target.

1.1 L'esperimento ISOLPHARM_EIRA

In SPES, utilizzando un bersaglio primario di Carbuco di Uranio ed un fascio primario di energia ≈ 40 keV, si riesce ad ottenere il radioisotopo ^{111}Ag , un β^- emettitore neutron-rich con tempo di dimezzamento ≈ 7.45 giorni ed energia media 360 keV (cui corrisponde una penetrazione di 1.8 mm nei tessuti corporei). Questo decade emettendo due raggi γ di energia relativamente bassa e conveniente per la radioterapia interna. Considerando sia che ^{111}Ag è un promettente precursore radiofarmaceutico per le sue proprietà chimico-nucleari, sia i risultati ottenuti nello scorso biennio nello studio di fattibilità ISOLPHARM_Ag, l'esperimento ISOLPHARM_EIRA del triennio 2020-2022 si pone come obiettivo quello di consolidare i risultati ottenuti in precedenza e quello di lavorare ai primi test in vitro ed in vivo.

Per quanto concerne il gruppo di ricerca di fisica, ci si propone di caratterizzare il setup sperimentale confrontando i risultati ottenuti con le simulazioni computazionali e di caratterizzare la produzione di ^{111}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 avviene secondo il processo schematizzato come



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 γ caratteristico.

2 L'apparato sperimentale

Sia per la fase di calibrazione che 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;
- **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.

Il campione di Palladio è stato collocato a distanza 43.5 cm dal detector HPGE e a 35 cm dal detector LaBr_3 per tutta la presa dati, durata complessivamente 7 giorni. In questo elaborato si analizzano le caratteristiche di entrambi i rivelatori, mentre per la fase di stima di attività e tempo di dimezzamento si sfrutta la sola presa dati del rivelatore al Germanio.

Capitolo 3

Analisi Dati

3 Caratterizzazione dei detector

Per la caratterizzazione dei rivelatori sono stati acquisiti gli spettri emessi da due sorgenti, ^{241}Am e ^{152}Eu , cui viene sottratto uno spettro di fondo, preso al termine delle misure con le sorgenti. Per l'analisi vengono studiati i picchi utili a caratterizzare la risposta dei detector nel range di energia di interesse, indicativamente tra i 50 keV e i 1500 keV.

3.1 Calibrazione e risoluzione energetica

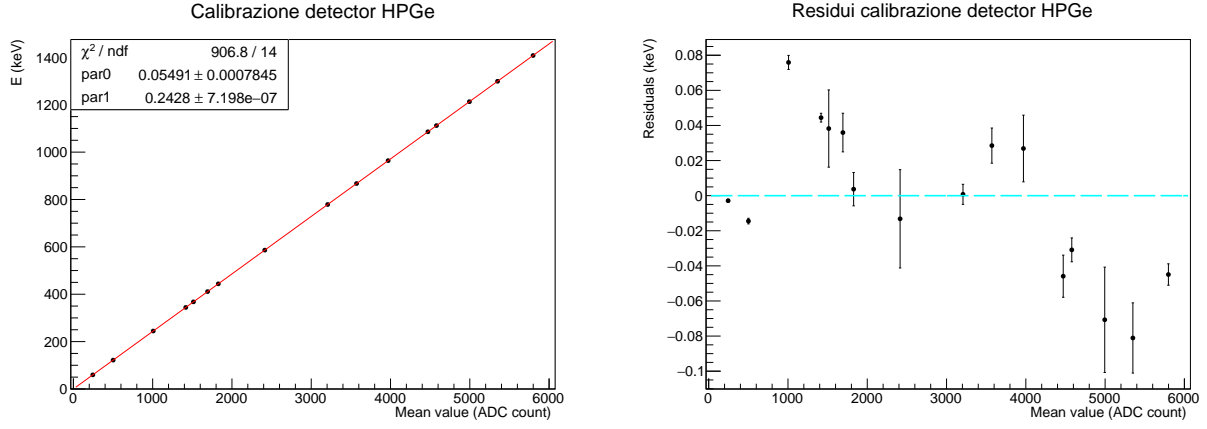
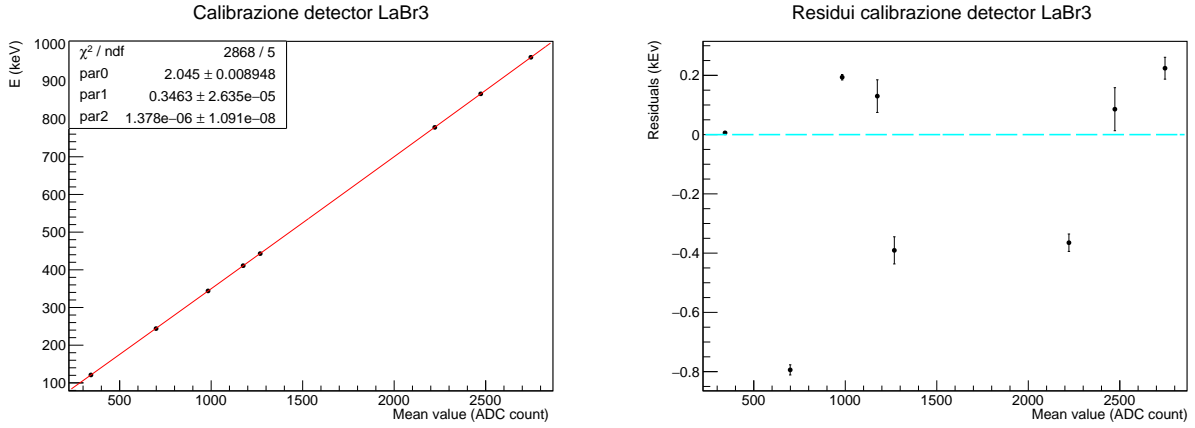
In questa sezione si analizzano i fotopicchi più distintamente visibili degli spettri delle due sorgenti in questione, trovando la corrispondenza tra il loro centroide (in ADC counts) ed il valore di energia atteso per il picco tabulato sul sito DDEP del L.N.H.B (in keV).

In particolare, i valori caratterizzanti un picco¹ si trovano tramite un fit gaussiano del suddetto unito ad un fit lineare o esponenziale del fondo sottostante. 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 mostrano 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 χ^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, mentre i contributi sistematici vengono trascurati. Tra questi si ricorda l'incertezza associata alla forma approssimata del background utilizzato al di sotto del fotopicco, oltre all'eventuale presenza di code o righe di piccola intensità nella regione di fit; tali effetti influiscono maggiormente negli spettri del detector LaBr_3 , i quali presentano una risoluzione inferiore, come si nota anche dal plot dei residui.

Come si può notare dai grafici sottostanti, data la risoluzione decisamente peggiore del detector 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.

¹Mediana, FWHM, area sottesa

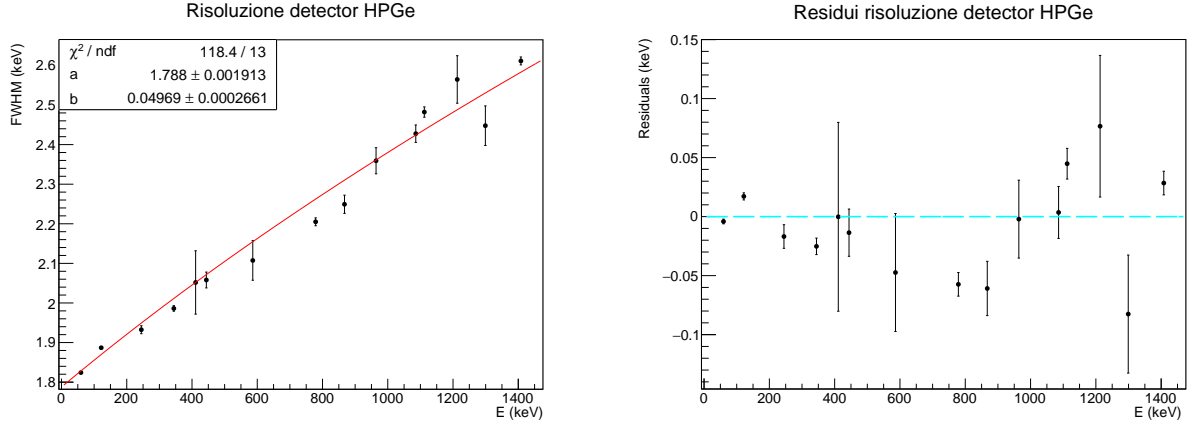
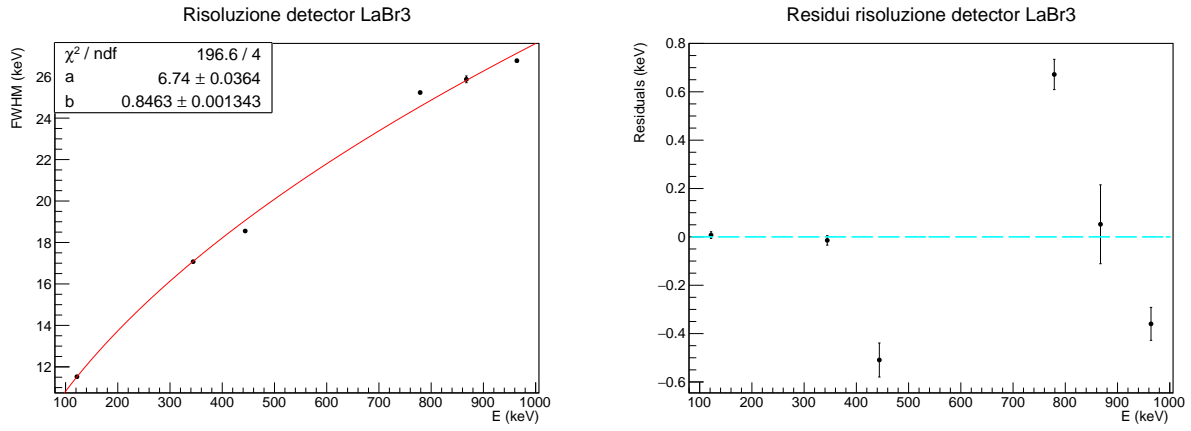
Figura 3.1: Plot di calibrazione in energia con annessi residui per *HPGe*Figura 3.2: Plot di calibrazione in energia con annessi residui per *LaBr₃*

Per quanto concerne la risoluzione dei rivelatori, essa si stima tramite interpolazione del grafico FWHM² in ordinata ed energia (keV) in ascissa, utilizzando una funzione del tipo

$$FWHM = \sqrt{a^2 + b^2 \cdot E} \quad (3.1)$$

con dove a rappresenta un termine di rumore. Non si evidenziano trend sistematici nell'analisi dei residui, che risultano comunque 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: in particolare, si trova per l'HPGe una risoluzione di 2.3 keV ad 1 MeV contro i 26 keV del LaBr₃. A conferma dei precedenti risultati, ancora una volta troviamo un'ampia sottostima delle incertezze associate ai valori del fit.

²Full Width at Half Maximum

Figura 3.3: Plot di risoluzione con annessi residui per *HPGe*Figura 3.4: Plot di risoluzione con annessi residui per *LaBr₃*

3.2 Curve di efficienza

Per completare la caratterizzazione dei detector, ci si occupa di analizzare l'efficienza assoluta che, per una radiazione γ di energia E_γ , viene stimata come

$$\epsilon_\gamma = \frac{F_\gamma}{A T B_\gamma} \quad (3.2)$$

ove F_γ è l'area del picco, T il tempo di acquisizione, A l'attività della sorgente utilizzata e B_γ il *branching ratio* della transizione. Questo parametro ϵ_γ consente essenzialmente di quantificare il rapporto tra il numero di γ rivelati dal detector nel fotopicco ed il numero di γ emessi dalla sorgente. L'integrale della funzione gaussiana fittante il picco, che 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, questo fittato linearmente o esponenzialmente. 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

$$A(t) = A_0 \exp\left(-\frac{t \ln(2)}{T_{\frac{1}{2}}}\right) [Bq] \quad (3.3)$$

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 ³:

$$\epsilon = a_1[\exp(-a_2 E^{a_3}) + \exp(a_4 E^{a_5})] \cdot (1 - \exp(a_6 E^{a_7})) \quad (3.4)$$

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_γ e al branching ratio B_γ (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 riguarda 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:

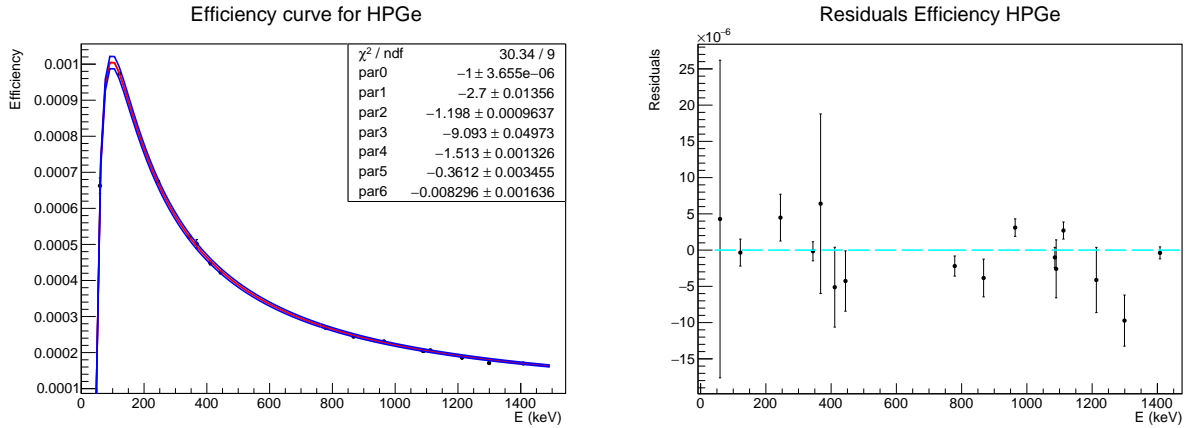
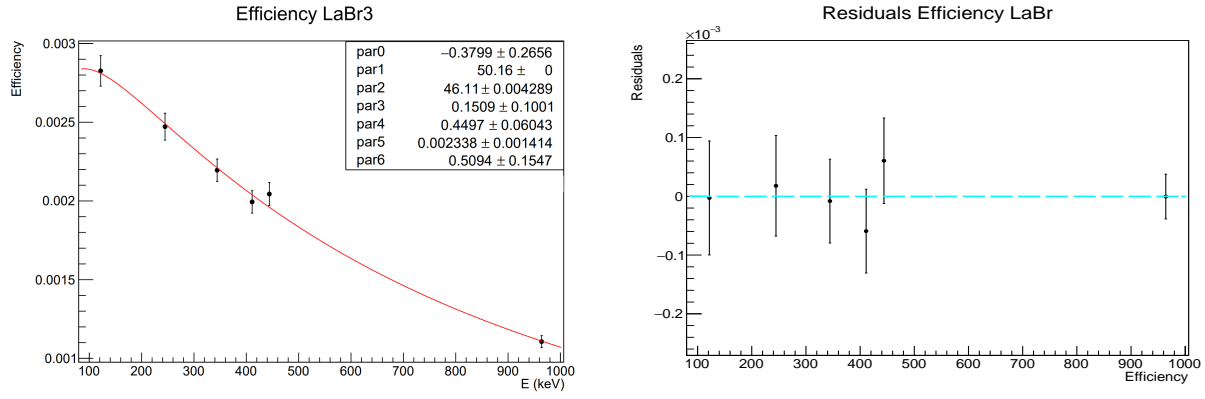


Figura 3.5: Plot di efficienza con annessi residui per $HPGe$

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 χ^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 ≈ 88 keV) risulta infatti molto incisivo il contributo dell'elettronica del setup sperimentale, così come non è trascurabile la dipendenza della curva dall'assorbimento dell'involucro dell' $HPGe$ (assieme ad altri fattori geometrici), considerazioni che evidenziano come la funzione di fit non sia in grado di descrivere l'efficienza del rivelatore per bassa energia con la stessa precisione di quanto si ha per alta energia. Inoltre, in questa zona energetica 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.

³Espressione 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]

Figura 3.6: 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.⁴ Si ottengono i seguenti risultati:

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

Tabella 3.1: Valori di efficienza attesi per il rivelatore HPGe in relazione all'energia del fotopicco analizzato.

4 Analisi del campione

Il campione di palladio arricchito utilizzato, di massa 62.7 mg, è stato irraggiato per una durata complessiva di un'ora (tra le 11:28 e le 12:28) il giorno 9 febbraio 2021. Gli spettri che seguono sono stati acquisiti a partire approssimativamente dalla quarta ora dal termine dell'irraggiamento.

4.1 Spettro del campione

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

⁴Ottenuta con il software ROOT ponendo un Confidence Level per l'interpolazione del 68.3%

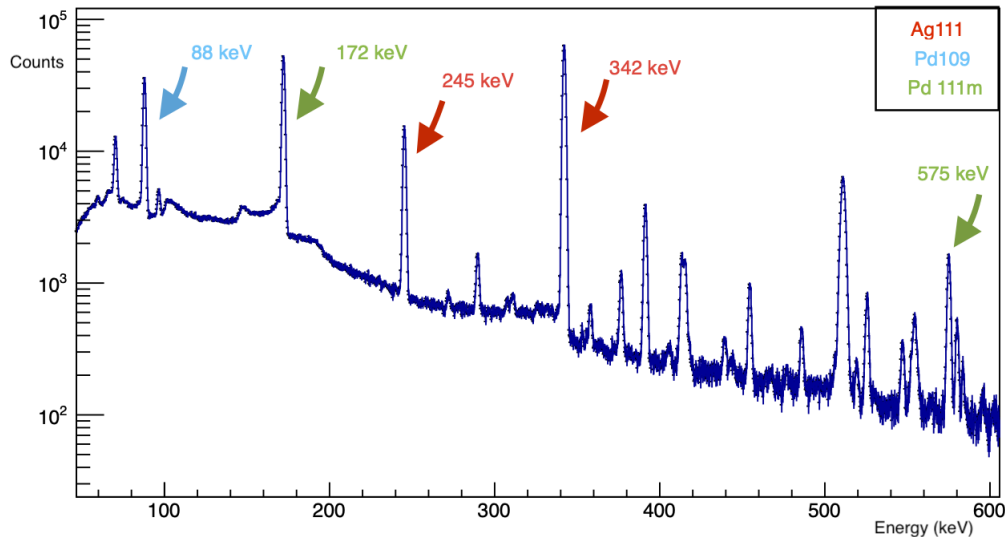


Figura 3.7: Spettro dopo 10 ore di presa dati, con evidenziazione dei picchi di interesse al fine dell'analisi

Mentre fino alla terza giornata di presa dati restano piuttosto visibili sia i picchi riguardanti le transizioni del ^{109}Pd ($T_{1/2} \approx 13.58\text{ h}$) e del $^{111\text{m}}\text{Pd}$ ($T_{1/2} \approx 5.5\text{ h}$), dalla quarta giornata di acquisizione i picchi più evidenti risultano quelli caratteristici dell' ^{111}Ag ($T_{1/2} \approx 7.5\text{ d}$), 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:

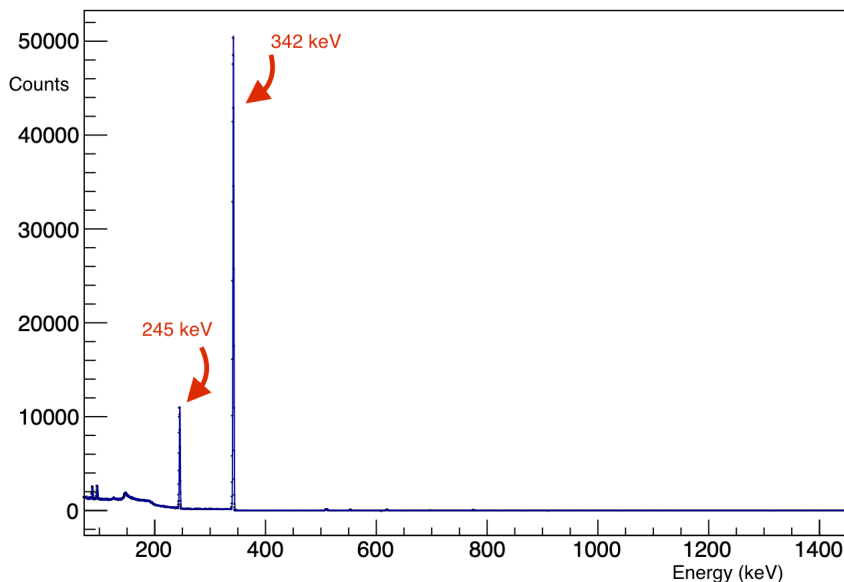


Figura 3.8: Spettro al termine della quarta giornata

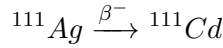
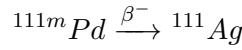
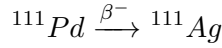
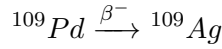
Come anticipato, gli unici picchi che restano ben visibili sono proprio quelli del ^{111}Ag . I dati utilizzati per l'analisi che segue, in particolare quelli riguardanti energie e branching ratio dei fotopicchi, sono stati presi dal sito NIST⁵ e vengono raccolti nella seguente tabella:

⁵National Institute of Standards and Technology, che a sua volta si riferisce a [2]

Radionuclide	$E(\sigma_E)$ [keV]	$Br(\sigma_{Br})$ (%)
^{109}Pd	88.033(1)	3.66(6)
^{111m}Pd	575.0(1)	3.3(4)
	172.18(8)	46(5)
^{111}Ag	245.40(2)	1.24(9)
	342.13(2)	6.7(3)

Tabella 3.2: 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:



Si evidenzia inoltre che il ^{111}Pd ha la componente principale con tempo di decadimento di pochi minuti, mentre nell'analisi successiva viene valutata solo la componente metastabile, con tempo di decadimento di poco più di 5 ore.

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.

Sperimentalmente si è proceduto ponendo una sorgente (^{133}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}Co), a distanza variabile dal detector, per poi misurare nuovamente le aree dei fotopicchi di interesse. Per l'intera acquisizione è stato utilizzato il software CoMPASS della CAEN.

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**⁶ 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:

⁶Caso in cui si presentano due eventi nella stessa finestra di digitalizzazione

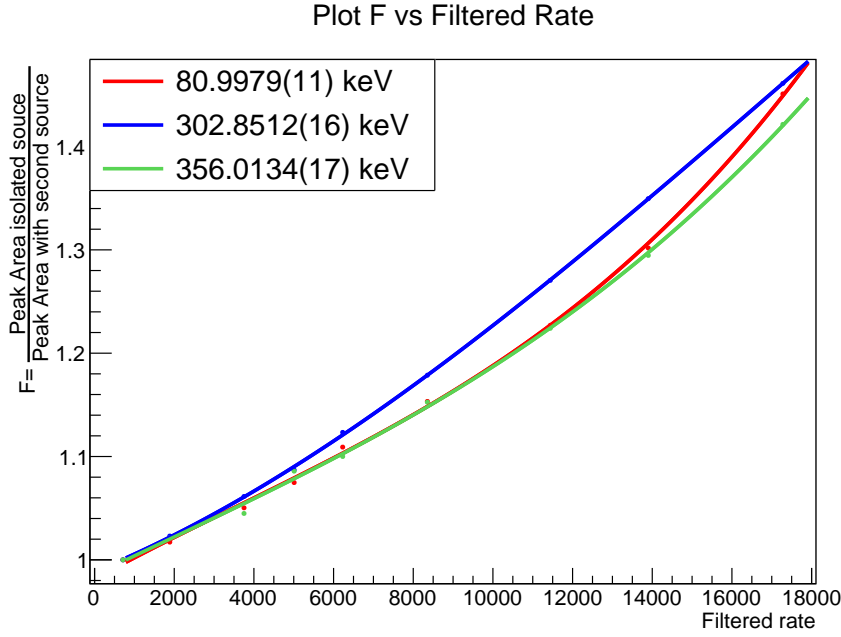


Figura 3.9: Grafico dell'andamento dei conteggi in funzione del rate filtrato a varie energie

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.

Inoltre, è evidente la discrepanza della curva blu rispetto alle altre: ciò è probabilmente dovuto al minor numero di conteggi associati al fotopicco di energia 303 keV, fatto che rende la stima dell'area sottesa più imprecisa.

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.

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 esposto nel capitolo 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_γ ad esso associati.

I fit gaussiani vengono realizzati secondo quanto 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 $\sigma_{F_\gamma} = \sqrt{(integral)(binwidth)^{-1}}$. Si può notare che nella suddetta stima viene ignorato il contributo d'errore dato dall'integrazione del fondo, assunzione legittima poichè il background risulta sufficientemente trascurabile per il detector HPGe. Sapendo che l'andamento dei conteggi in funzione del tempo segue una decrescita esponenziale, si procede tramite un fit linearizzato del tipo

$$\ln(F_\gamma) = q + m \cdot T [s] \quad (3.5)$$

da cui si trova il tempo di dimezzamento come

$$T_{\frac{1}{2}} = -\frac{\ln(2)}{m} [s] \quad (3.6)$$

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

$$A(t) = \frac{F_\gamma}{T \cdot Br \cdot \epsilon} [Bq] \quad (3.7)$$

ove F_γ è l'area del fotopicco, T il tempo di acquisizione e B_γ 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'errore sui conteggi F_γ , 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.

Infine, si può procedere alla stima dell'attività per ciascun radionuclide al termine dell'irraggiamento tramite un fit esponenziale delle curve ottenute.

^{109}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 $T_{\frac{1}{2}} \approx 13.6 h$, 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 $E = 88.033(1) \text{ keV}$.

Si ottiene

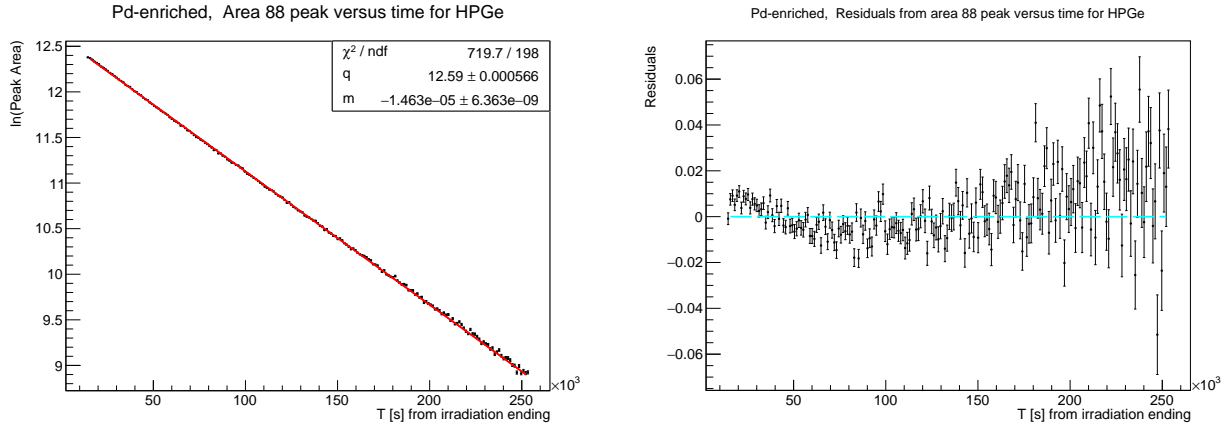


Figura 3.10: Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di ^{109}Pd , picco 88 keV

da cui si estrae il tempo di dimezzamento

$$T_{\frac{1}{2},^{109}\text{Pd},\text{sper}} = 13.16 \pm 0.01_{\text{stat}} [\text{ore}] \quad (3.8)$$

Dall'analisi dei residui si nota un andamento piuttosto oscillante dei dati, oltre ad un trend leggermente scostato dall'attesa, ed il χ^2 suggerisce una notevole sottostima delle incertezze associate alle aree fittate. Confrontando il risultato con l'attesa, ossia

$$T_{\frac{1}{2},^{109}\text{Pd},\text{att}} = 13.58 \pm 0.12 [\text{ore}] \quad (3.9)$$

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

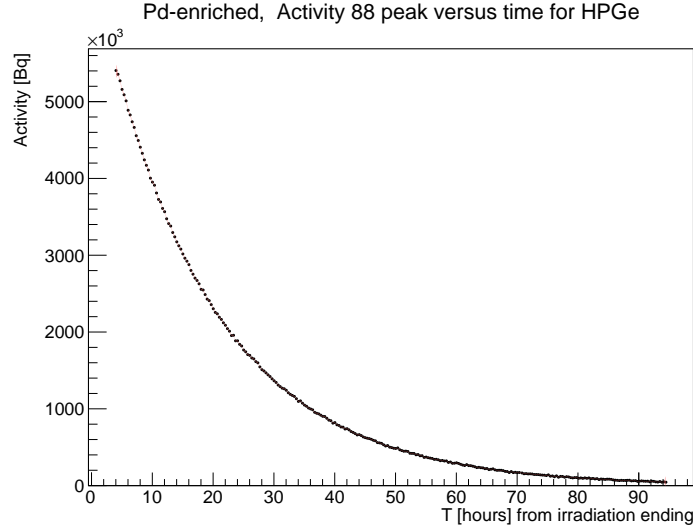


Figura 3.11: Andamento attività della riga 88 keV di ^{109}Pd in funzione del tempo

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

$$A_0 = (668.2 \pm 0.4) \cdot 10^4 [\text{Bq}] = (0.1806 \pm 0.0001) [\text{mCi}] \quad (3.10)$$

$^{111\text{m}}\text{Pd}$

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

I picchi analizzati sono quelli di energia 575.0 keV e 172 keV. Si evidenzia che nel caso del 172 keV è presente una coda a basse energie che ha reso difficile l'utilizzo di un programma automatico per il fit delle aree: sono stati dunque eseguiti manualmente i fit gaussiani dei picchi della prima giornata di presa dati.

Si ottiene

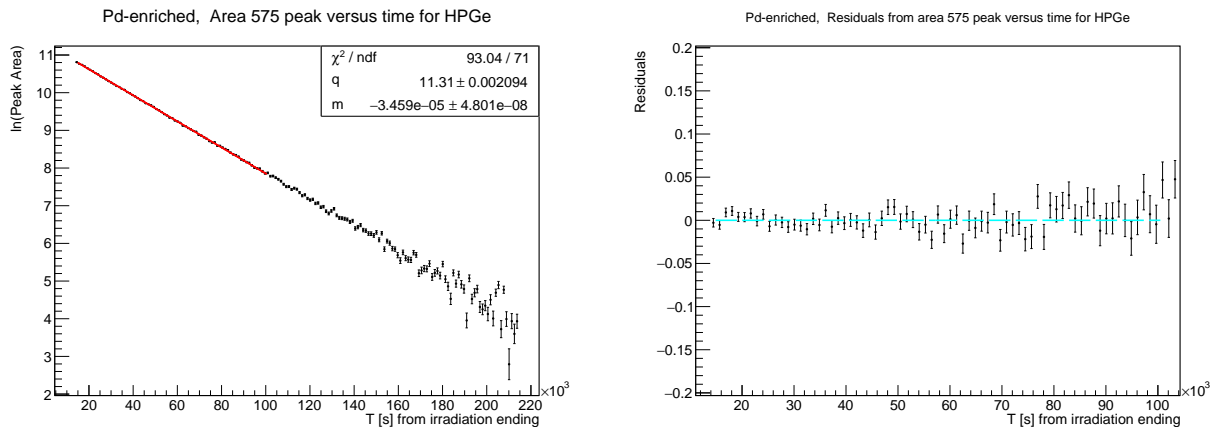


Figura 3.12: Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di $^{111\text{m}}\text{Pd}$, picco 575 keV

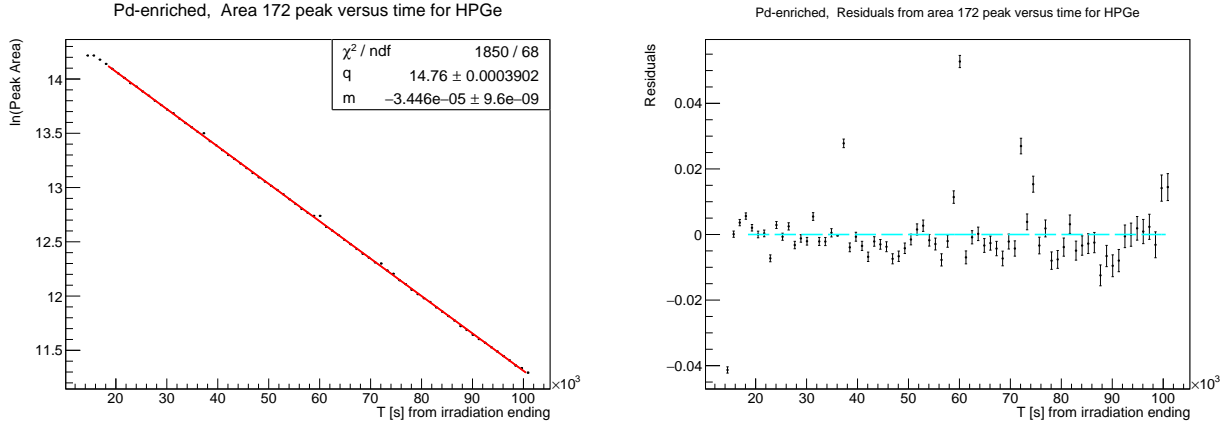


Figura 3.13: Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di ^{111m}Pd , picco 172 keV

da cui si estrae il tempo di dimezzamento

$$T_{\frac{1}{2}, ^{111m}\text{Pd}, 575} = 5.567 \pm 0.008_{\text{stat}} [\text{ore}] \quad T_{\frac{1}{2}, ^{111m}\text{Pd}, 172} = 5.587 \pm 0.003_{\text{stat}} [\text{ore}] \quad (3.11)$$

Dall'analisi dei residui non si nota alcun trend rilevante, ma per il 172 keV si possono notare alcuni punti che si scostano notevolmente dall'andamento: questo potrebbe essere un limite puramente computazionale, dato dalla diversa metodologia seguita (probabilmente meno precisa rispetto a quella più automatica). Il χ^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

$$T_{\frac{1}{2}, ^{111m}\text{Pd}, \text{att}} = 5.5 \pm 0.1 [\text{ore}] \quad (3.12)$$

si trova un'ottima compatibilità ($\lambda \approx 0.7$ per il 575 keV e $\lambda \approx 0.9$ per il 172 keV) tra l'attesa teorica e le stime sperimentali in entrambi i casi. Per quanto concerne l'attività in funzione del tempo, si trova

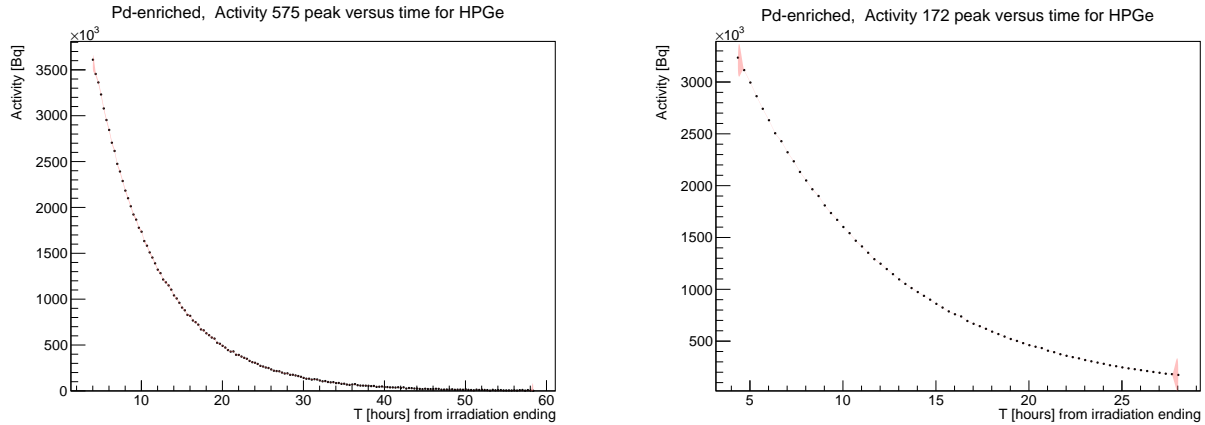


Figura 3.14: Andamento attività delle righe 575 keV e 172 keV di ^{111m}Pd in funzione del tempo

Anche in questo caso i punti seguono visibilmente l'andamento atteso, senza discostarsi da esso. L'attività al termine dell'irraggiamento, stimata a partire dal picco a 575 keV risulta

$$A_0 = (59.6 \pm 0.1) \cdot 10^5 [\text{Bq}] = (0.1610 \pm 0.0003) [\text{mCi}] \quad (3.13)$$

di fatto, la stima dell'attività a partire dall'altro picco risulta fortemente incompatibile con la precedente, probabilmente a causa della minor durata considerata.

^{111}Ag

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

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

Si ottiene

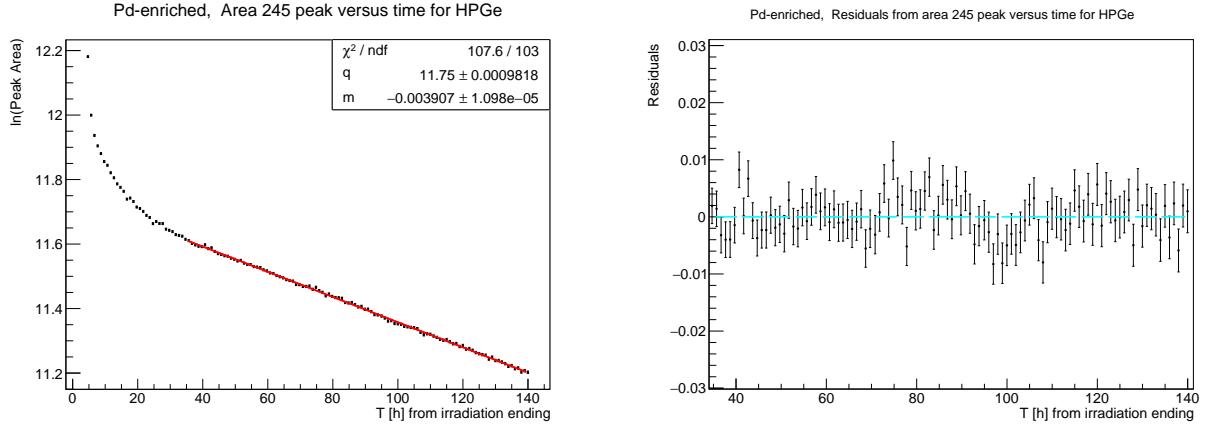


Figura 3.15: Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di ^{111}Ag , picco 245 keV

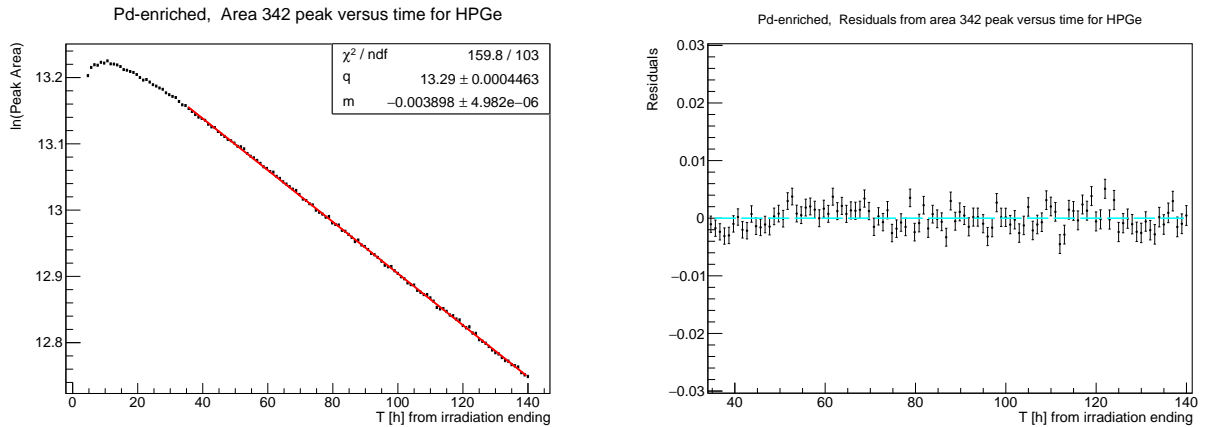


Figura 3.16: Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di ^{111}Ag , picco 342 keV

da cui si ricava

$$T_{\frac{1}{2}, ^{111}\text{Ag}, 245} = 7.39 \pm 0.02_{\text{stat}} [\text{giorni}] \quad T_{\frac{1}{2}, ^{111}\text{Ag}, 342} = 7.451 \pm 0.008_{\text{stat}} [\text{giorni}] \quad (3.14)$$

Dall'analisi dei residui si nota anche in questo caso l'andamento oscillante dei dati, mentre i χ^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

$$T_{\frac{1}{2}, ^{111}\text{Ag}, \text{att}} = 7.45 \pm 0.01 [\text{giorni}] \quad (3.15)$$

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:

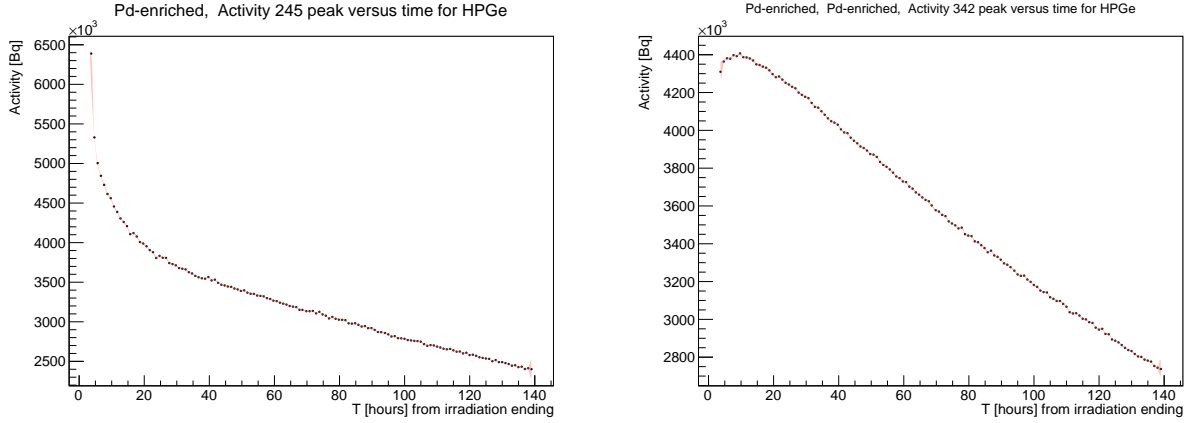


Figura 3.17: Andamento attività delle righe 245 keV e 342 keV di ^{111}Ag in funzione del tempo

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.

In questo caso, l'andamento esponenziale è rispettato bene circa dopo due giorni dall'inizio della presa dati: dunque procedere con un fit esponenziale solo della zona a tempi maggiori potrebbe risultare inefficiente. Si nota però che, a distanza di 48 h circa dall'inizio della presa dati, la compatibilità tra le attività stimate dai due picchi è ottima ($\lambda \approx 0.8$) e perciò si può prendere come stima la media pesata dei due valori⁷

$$A_{48h} = (379.1 \pm 0.5) \cdot 10^4 [Bq] = (102.5 \pm 0.1) [\mu Ci]$$

Sapendo dunque che l'attività ha l'andamento

$$A(t) = A_0 \exp\left[-\frac{\ln(2)}{T_{1/2}} \cdot t\right] \quad (3.16)$$

si può invertire la formula per calcolare A_0 , da cui si ottiene

$$A_0 = (457.8 \pm 0.6) \cdot 10^4 [Bq] = (123.7 \pm 0.2) [\mu Ci] \quad (3.17)$$

Si evidenzia che anche eseguendo un fit esponenziale dopo 48 h circa, si trova un risultato ottimamente compatibile con quello trovato con il metodo poc'anzi spiegato. Infine, normalizzando per la massa del campione, si ottiene:

$$A_0 = (7.301 \pm 0.009) \cdot 10^4 [Bq/mg] = (1.973 \pm 0.003) [\mu Ci/mg] \quad (3.18)$$

⁷ $\frac{\sum_{i=1}^N \frac{x_i}{\sigma_i^2}}{\sum_{i=1}^N \frac{1}{\sigma_i^2}} \pm \sqrt{\frac{1}{\sum_{i=1}^N \frac{1}{\sigma_i^2}}}$

Capitolo 4

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 γ 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}Pd e il ^{111m}Pd l'andamento delle attività non presenta scostamenti dall'attesa, nell'analisi dei due picchi dell' ^{111}Ag si trovano, per bassi tempi, dei comportamenti inattesi, in un caso (342 keV) probabilmente imputabili ad un'ancora imprecisa stima del dead time del rivelatore, nell'altro (245 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.

Si evidenzia poi 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.

Infine, segue un grafico di confronto tra le simulazioni dell'attività per ^{111}Ag normalizzate a 100 mg (contro i 62.7 mg a disposizione per l'analisi presentata in tesi) e l'attività stimata dall'analisi precedente, normalizzata alla stessa massa:

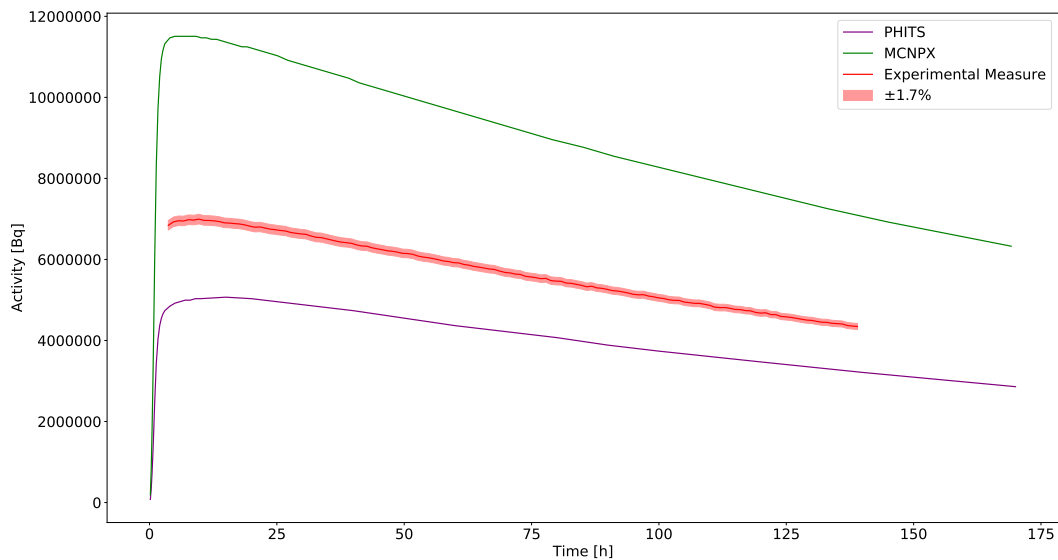


Figura 4.1: Plot di confronto tra attività effettiva del radioisotopo ^{111}Ag e simulazioni della stessa grandezza tramite PHITS e MCNPX, con normalizzazione a 100 mg

Si evidenzia come la simulazione MCNPX sottostimi la produzione, mentre la simulazione con PHITS la sovrastimi; è evidente comunque come l'andamento dei dati sia ben in accordo tra i tre dataset.

I valori trovati sono associati ad un irraggiamento di 1 ora: si procede dunque cercando il fattore di proporzionalità tra la simulazione MCNPX ed i dati per il campione di massa 62.7 mg, trovando il valore

$$k \approx 1.64 \quad (4.1)$$

Si può ora fornire una predizione dell'attività che si avrà per il campione di 100mg soggetto ad irraggiamento di 18 ore utilizzando le simulazioni MCNPX in tali condizioni e riscalando il risultato per il fattore k poc'anzi menzionato. Segue il grafico della simulazione:

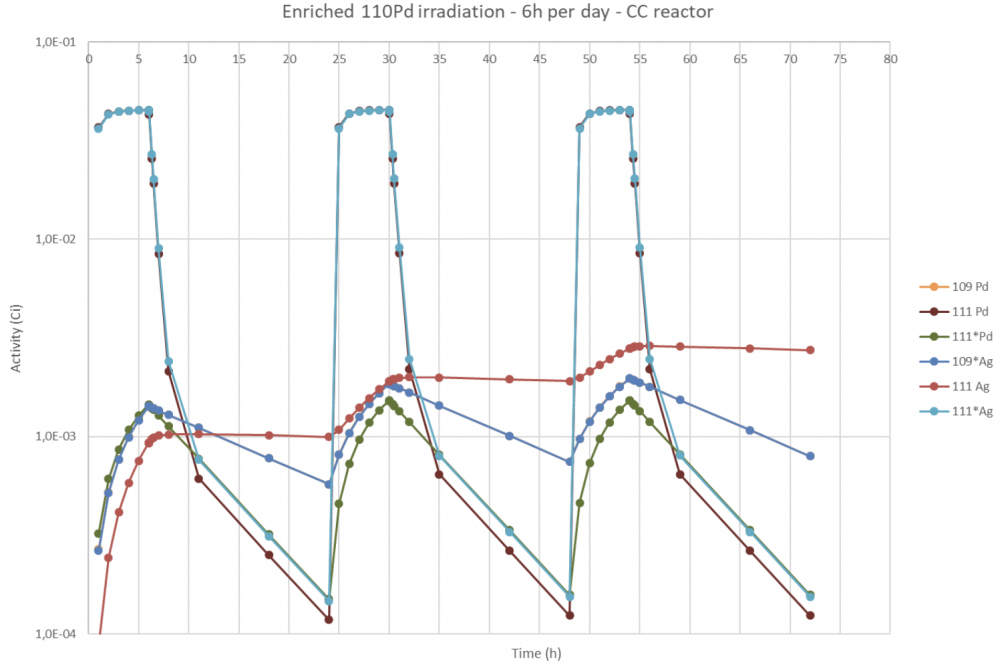


Figura 4.2: Simulazione MCNPX 18H di irraggiamento, campione 100 mg

Si ottiene dunque una stima per la previsione di produzione dopo 3 giorni pari a

$$A_{predicted} \approx 6.7 \cdot 10^7 [Bq] = 1.81 [mCi] \quad (4.2)$$

Elenco delle figure

2.1	Schema del metodo ISOL	1
3.1	Plot di calibrazione in energia con annessi residui per $HPGe$	4
3.2	Plot di calibrazione in energia con annessi residui per $LaBr_3$	4
3.3	Plot di risoluzione con annessi residui per $HPGe$	5
3.4	Plot di risoluzione con annessi residui per $LaBr_3$	5
3.5	Plot di efficienza con annessi residui per $HPGe$	6
3.6	Plot di efficienza con annessi residui per $LaBr_3$	7
3.7	Spettro dopo 10 ore di presa dati, con evidenziazione dei picchi di interesse al fine dell'analisi	8
3.8	Spettro al termine della quarta giornata	8
3.9	Grafico dell'andamento dei conteggi in funzione del rate filtrato a varie energie	10
3.10	Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di ^{109}Pd , picco 88 keV	11
3.11	Andamento attività della riga 88 keV di ^{109}Pd in funzione del tempo	12
3.12	Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di ^{111m}Pd , picco 575 keV . .	12
3.13	Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di ^{111m}Pd , picco 172 keV . .	13
3.14	Andamento attività delle righe 575 keV e 172 keV di ^{111m}Pd in funzione del tempo . .	13
3.15	Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di ^{111}Ag , picco 245 keV . . .	14
3.16	Fit linearizzato per la stima del tempo di dimezzamento di ^{111}Ag , picco 342 keV . . .	14
3.17	Andamento attività delle righe 245 keV e 342 keV di ^{111}Ag in funzione del tempo . . .	15
4.1	Plot di confronto tra attività effettiva del radioisotopo ^{111}Ag e simulazioni della stessa grandezza tramite PHITS e MCNPX, con normalizzazione a 100 mg	16
4.2	Simulazione MCNPX 18H di irraggiamento, campione 100 mg	17

Bibliografia

- [1] INFN. *ISOLPHARM_EIRA*. URL: https://isolpharm.pd.infn.it/web/wp-content/uploads/2019/07/ISOLPHARM_EIRA_proposal-PDF.pdf.
- [2] K.S Krane. “The decays of $^{109,111}\text{Pd}$ and ^{111}Ag following neutron capture by Pd”. In: *Elsevier* (2015).

Ringraziamenti

Vorrei dedicare qualche parola a chi ha contribuito alla realizzazione di questo traguardo.

Ringrazio in primis i miei genitori, dato che senza di loro non avrei mai potuto intraprendere questo percorso, ma anche perchè, assieme a Romina, mia zia, mi hanno sempre consigliata e supportata moralmente.

Un ringraziamento va poi a Niccolò, per esser sempre stato al mio fianco, ed ai miei amici, con cui ho condiviso gli alti e bassi di questi tre anni.

Infine, ringrazio me stessa per non aver mollato, nonostante le difficoltà e le coincidenze sfortunate vissute in questi tre anni.