

Spettrometria

Stagisti: Aluisi Barbara, Castagnaro M. Carmela, Macchi Silvia - Lic. Sc. Vailati (Genzano di Roma)

Tutori: Adolfo Esposito, Maurizio Chiti, Loredana Fioretti, Alfonso Gentile

La spettrometria γ costituisce uno dei più validi metodi di indagine nel campo della Fisica Nucleare, essa viene largamente impiegata sia nella ricerca di base sia, in campo applicativo, come strumento di misura della radioattività. La presente trattazione ha come oggetto questo secondo aspetto, vale a dire la spettrometria γ intesa come strumento di misura della radioattività. Da questo punto di vista, i vantaggi di questa tecnica sono molteplici: in primo luogo essa rende possibili analisi non distruttive ed è applicabile senza particolari difficoltà a campioni di natura anche molto diversa; inoltre, essa permette la determinazione simultanea di più radionuclidi consentendo di evitare lunghe e costose separazioni chimiche. In questa prospettiva la spettrometria γ viene largamente impiegata in numerosi campi della ricerca applicata: Fisica Sanitaria, Radioecologia, Analisi per attivazione, Medicina Nucleare, ricerche e applicazioni in campo biologico, agrario, farmacologico, medico, ecc che comportino l'impiego di traccianti radioattivi.

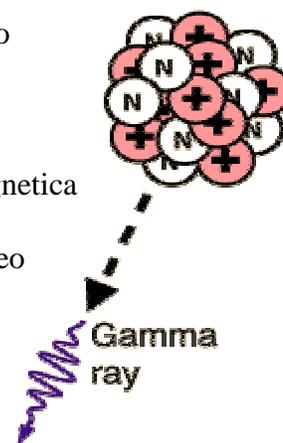
Interazioni delle radiazioni γ con la materia

➤ Radiazioni

La parte dello spettro elettromagnetico che a noi interessa è quella comprendente le radiazioni ad alta energia, tra le quali vi sono i raggi γ . Tali raggi sono emessi da nuclei atomici come risultato di una transizione dei due livelli energetici del nucleo stesso, in seguito ad un processo di riassetamento dei nuclei che hanno subito una trasformazione radioattiva. I principali processi di emissione γ sono:

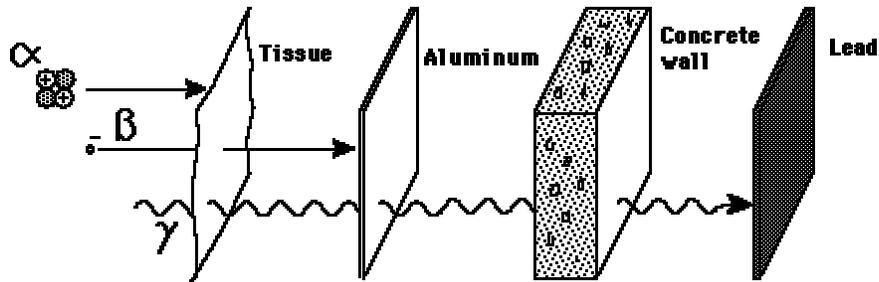
- Disintegrazioni radioattive α e β che lasciano il nucleo finale in uno stato eccitato;
- Reazioni nucleari di cattura (ad esempio n, α);
- Fissione nucleare;
- Annichilazione della materia, ossia conversione in radiazione elettromagnetica della massa a riposo di una coppia di antiparticelle che si scontrano;
- Interazione di una particella carica con il campo elettrostatico di un nucleo atomico.

I raggi γ emessi da un nuclide radioattivo hanno energie ed intensità ben definite e caratteristiche della particolare trasformazione radioattiva.



➤ Interazioni dei raggi γ con la materia

L'assorbimento delle radiazioni γ nella materia avviene in modo sostanzialmente diverso da quello delle particelle cariche come gli elettroni o le particelle α : infatti quest'ultimi cedono la loro energia al mezzo assorbitore in modo continuo ed hanno percorsi ben definiti nelle varie sostanze, i raggi γ invece agiscono in modo discontinuo e la loro intensità non viene mai ridotta a zero anche da spessori via via crescenti di materia. La legge esponenziale di attenuazione dei raggi γ rappresenta



La legge di attenuazione è la seguente: $I = I_0 e^{-\mu t}$ dove:

I_0 = intensità del fascio iniziale dei raggi ;

t = spessore dell'assorbitore (cm);

I = intensità del fascio trasmesso attraverso lo spessore t di assorbitore;

e = base dei logaritmi naturali;

μ = coefficiente di attenuazione (cm^{-1}).

L'assorbimento dei raggi nella materia avviene attraverso tre processi fondamentali:

- *Effetto Compton*: è una collisione elastica tra un fotone ed un elettrone libero. Poiché in una collisione elastica il fotone non può trasferire tutta la sua energia all'elettrone ne deriva che esso può essere solamente deflesso dalla sua direzione iniziale con cambiamento di lunghezza d'onda e quindi di energia. La differenza d'energia tra il fotone incidente e quello deflesso viene impartita all'elettrone;
- *Effetto fotoelettrico*: in questo processo un fotone di energia $E = h\nu$ interagisce con un sistema atomico cedendo in pratica tutta la sua energia a uno degli elettroni più strettamente legati. L'elettrone viene quindi espulso dall'atomo con un'energia cinetica E_k data dalla relazione di Einstein : $E_k = h\nu - E_b$ dove E_b è l'energia di legame dell'elettrone orbitale. Il fatto che l'elettrone sia legato è essenziale per soddisfare la legge di conservazione della quantità di moto. L'atomo infatti acquista la differenza tra la quantità di moto del fotone e quella dell'elettrone senza assorbire apprezzabilmente energia, a causa della sua relativamente grande massa;
- *Produzione di Coppie*: con questa espressione si intende il processo secondo cui un fotone interagisce con il campo elettrostatico che circonda una particella carica (normalmente un nucleo atomico, ma anche con minor frequenza un elettrone); in tal caso il fotone scompare dando origine ad una coppia di elettroni di segno opposto (un elettrone e un positrone). Affinchè il processo sia energeticamente possibile, il fotone deve possedere un'energia almeno doppia di quella equivalente alla massa di riposo dell'elettrone ($m_0c^2 = 0,511 \text{ MeV}$). L'energia del fotone in eccesso di $2 m_0c^2$, nel caso di produzione di coppie, viene distribuita sotto forma di energia cinetica tra le due particelle della coppia; solo una quantità trascurabile viene ceduta al nucleo per la conservazione della quantità di moto. Le particelle di coppia (elettrone e positrone) dissipano entrambi la loro energia cinetica in ionizzazione ed eccitazione degli atomi della materia: solo il loro destino finale è diverso, e cioè mentre l'elettrone, esaurita la sua energia cinetica, entra a far parte della popolazione degli elettroni liberi o legati negli atomi, il positrone si combina con un elettrone annichilandosi. Le due particelle infatti scompaiono e la loro massa è convertita (secondo la relazione di Einstein) in due fotoni aventi ciascuno un'energia di 0,511 MeV ed emessi in direzione opposta, per il principio della conservazione della quantità di moto.

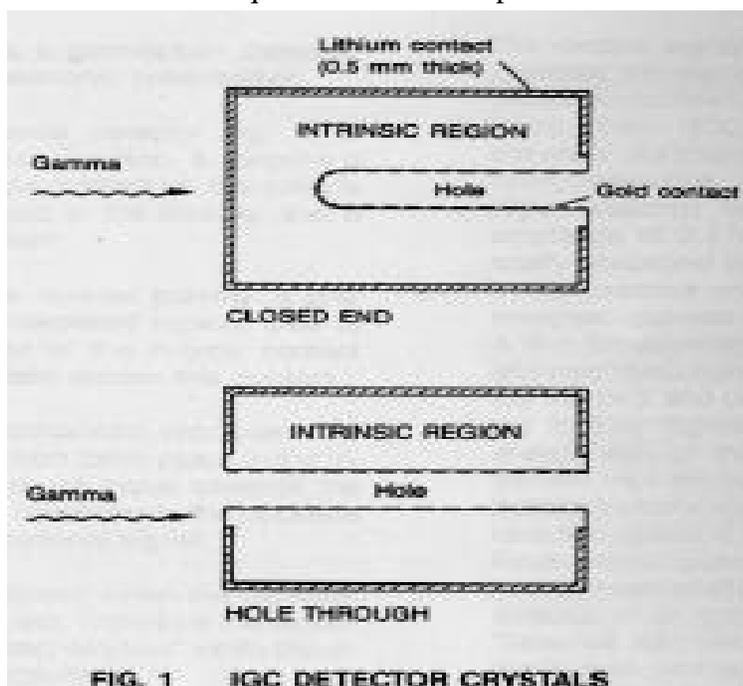
Spettrometria γ

➤ Lo spettrometro γ

Uno spettrometro è essenzialmente un sistema strumentale in grado di determinare, in forma differenziale, la distribuzione energetica dei fotoni γ . I dati ottenuti da uno spettrometro sono normalmente espressi in forma bidimensionale come frequenza d'impulsi in funzione dell'energia delle radiazioni (γ spettro). L'interpretazione e l'analisi di uno spettro forniscono le informazioni necessarie alla determinazione qualitativa e quantitativa dei radionuclidi emettitori che hanno dato origine allo spettro. Uno spettrometro può considerarsi composto di tre parti principali:

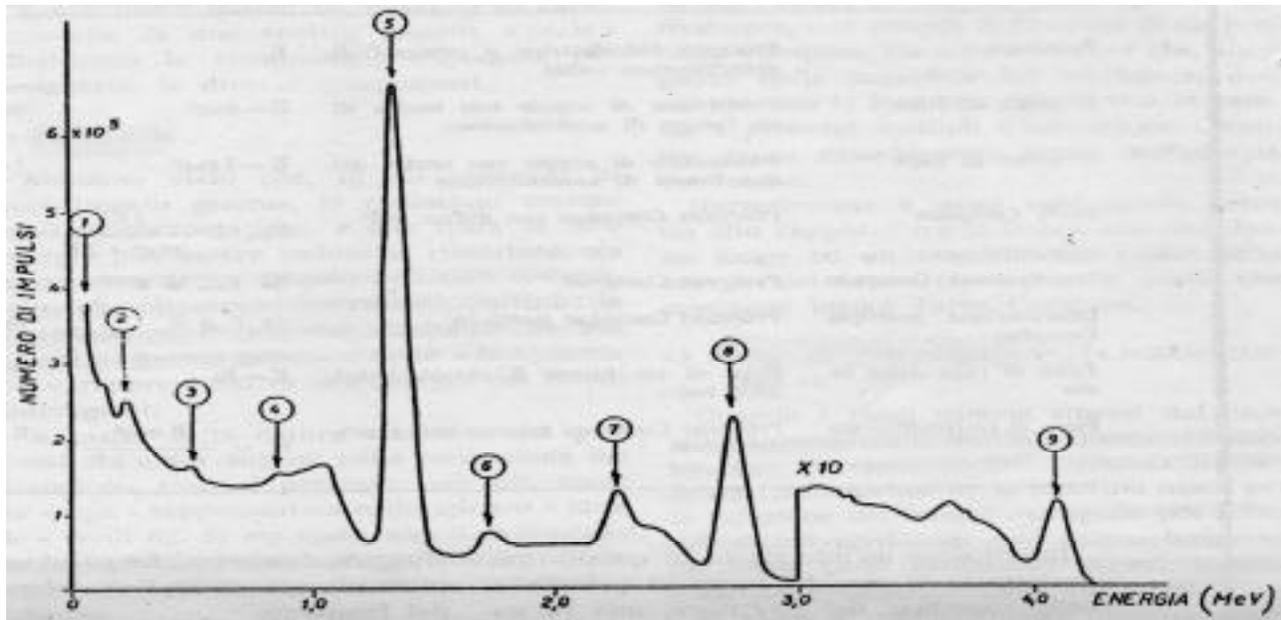
- *Sistema di rilevazione* comprendente il rivelatore e lo schermo. Un qualsiasi fotone incidente interagendo con il rivelatore, cede ad esso, parzialmente o totalmente, a seconda del tipo di interazione, la sua energia. La funzione del rivelatore è quella di trasformare questa energia in una carica elettrica ad essa proporzionale. Scopo dello schermo è invece quello di ridurre al minimo possibile il fondo strutturalmente dovuto alla radiazione ambientale. Lo schermo influenza anche la forma dello spettro dovuta alla retrodiffusione dei fotoni del rivelatore;
- *Sistema di analisi degli impulsi*. Uno spettrometro non si limita alla registrazione di un certo numero d'impulsi, ma li classifica secondo la loro ampiezza in certi livelli di energia. Per questo gli impulsi elettrici in uscita dal rivelatore devono essere opportunamente amplificati ed inviati ad un analizzatore di ampiezza. Il numero degli impulsi compresi in ciascun intervallo di energia viene quindi memorizzato in un'apposita unità di memoria;
- *Sistema di registrazione e trattamento dei dati*. I dati immagazzinati nell'unità di memoria vengono infine estratti mediante apposite unità di registrazione, di stampa o di visualizzazione. L'unità di memoria può anche essere opportunamente collegata ad un calcolatore per l'analisi ed il trattamento dei dati.

Nel corso dei cinque mesi di lavoro presso i laboratori di Frascati abbiamo utilizzato un Intrinsic Germanium Coaxial detector, un rivelatore costituito essenzialmente da un diodo. Un raggio γ interagendo con il germanio produce coppie libere di elettroni e lacune. Se l'interazione ha luogo nella regione intrinseca, gli elettroni liberi si muovono verso il contatto positivo esterno e le lacune nella direzione opposta, questo produce un segnale elettrico. Tale segnale è proporzionale all'energia del raggio γ . Per ogni fotone γ totalmente assorbito nella regione intrinseca, un pre-amplificatore produce un segnale di output con un'amplificazione di 0,1 Volt per MeV.



➤ Lo spettro γ

L'informazione fornita da uno spettrometro è normalmente espressa in termini di frequenza di impulsi in funzione dell'energia dei fotoni. L'interazione di un fascio monocromatico di raggi con un rivelatore, dovrebbe in teoria dar luogo ad una distribuzione di elettroni caratterizzata da uno o più gruppi monoenergetici e da una distribuzione continua ("spettro ideale"). In realtà, però, gli spettri ottenuti sperimentalmente differiscono marcatamente da quelli ideali a causa di diversi fattori. Esaminiamo quindi in dettaglio le caratteristiche di uno spettro "reale":



Spettro γ di una sorgente di Na^{24} eseguito con un cristallo NaI(Tl). 1)raggi X dello schermo;2)retrodiffusione;3)annichilazione di positroni;4)fuga singola di coppie;5)assorbimento totale dei fotoni;6)fuga doppia;7)fuga singola di coppie;8)assorbimento totale di fotoni;9)picco somma.

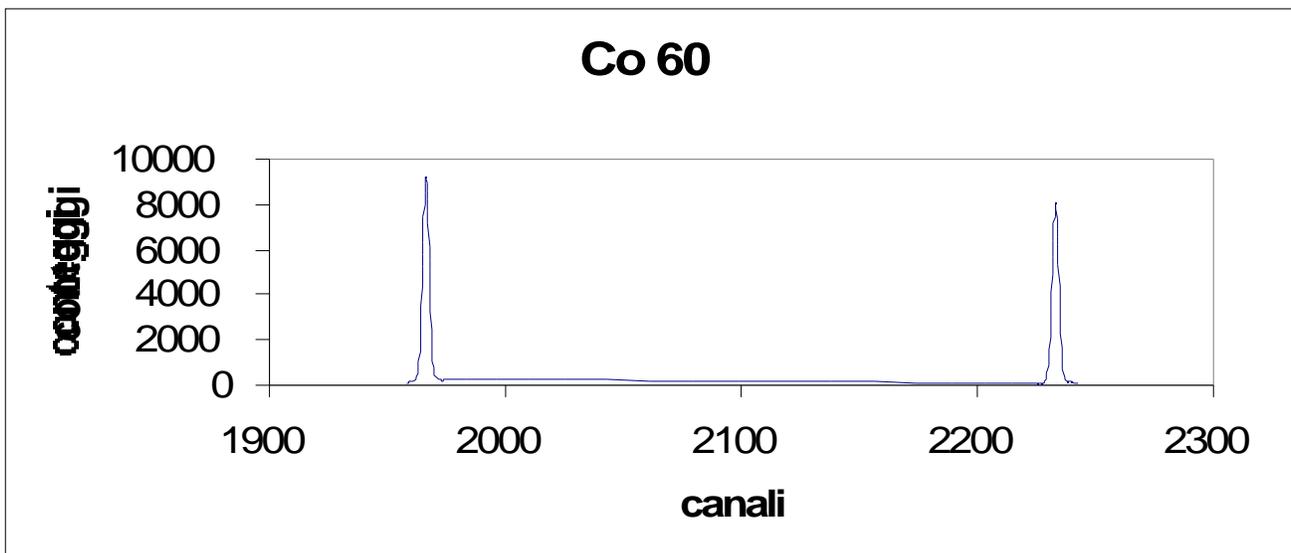
- **Fotopico.** In un processo di decadimento α , le radiazioni emesse sono monocromatiche e tutta la loro energia può essere ceduta al rivelatore, sia per mezzo di un singolo processo fotoelettrico che attraverso interazioni multiple; la distribuzione di impulsi risultante da più eventi di questo genere è detta "fotopico" ed è rappresentativa dell'energia dei fotoni interagenti. A causa della natura statistica dei processi che intervengono nella formazione del fotopico esso si presenta come una distribuzione gaussiana d'impulsi centrata attorno al valore corrispondente all'energia del fotone (centroide);
- **Distribuzione Compton.** E' rappresentata dalla parte di spettro corrispondente ad un trasferimento parziale di energia dei fotoni al rivelatore causato da processi d'interazione Compton. La distribuzione Compton è caratterizzata da un massimo (Compton edge) che corrisponde a processi d'interazione Compton nel rivelatore con retrodiffusione a 180° del fotone e massimo trasferimento della sua energia all'elettrone;
- **Picco di retrodiffusione.** Quando i raggi γ emessi dal campione interagiscono mediante processi Compton con il materiale che circonda il rivelatore (principalmente lo schermo utilizzato per la riduzione del fondo) e vengono poi retrodiffusi nel rivelatore, essi danno luogo ad un picco (

- *Picchi di fuga.* Sono così chiamati i picchi di uno spettro che si notano ad energie inferiori al fotopicco e che sono dovuti ad interazioni con produzione di coppie e uscita dal rivelatore della conseguente radiazione di annichilazione;
- *Picchi somma.* Con questo termine vengono designati i picchi dovuti alle interazioni di più fotoni nel rivelatore che avvengono in intervalli di tempo così brevi da essere rilevati come un solo evento.

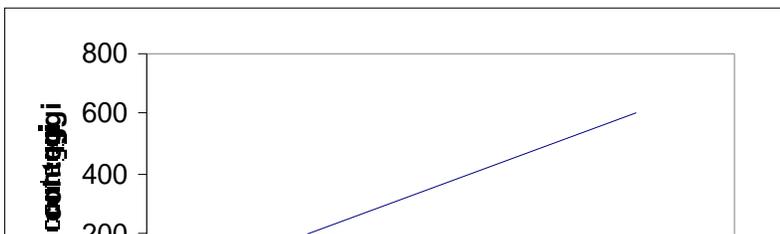
Nel tempo della durata dello stage abbiamo lavorato sugli spettri di campioni di Co^{60} , Cs^{137} , Ba^{133} , Na^{22} , Am^{141} , sullo spettro di uno Scraper (attenuatore si luce di sincrotrone situato in uno degli anelli principali del collider DA NE) attivatosi a causa dell'esposizione a radiazioni, sullo spettro di un campione di scaglie metalliche esposte a radiazioni e di una fonte di Eu^{152} .

➤ taratura dello strumento

Una delle principali utilizzazioni di uno spettrometro consiste nell'identificazione dei radionuclidi presenti in un campione. Quest'analisi di tipo qualitativo si basa sulla determinazione dell'energia dei picchi di assorbimento totale presenti nello spettro. Tale scopo richiede la preventiva taratura in energia dello strumento, operazione che può essere eseguita utilizzando radionuclidi che emettono fotoni di energia note con precisione. Dalla posizione dei centroidi di questi picchi nello spettro si ricava una relazione lineare energia-canali dello spettrometro che viene poi utilizzata per l'attribuzione dell'energia a fotopicchi di radionuclidi non noti. Nel nostro caso abbiamo utilizzato una sorgente di Co^{60} che presenta due picchi alle rispettive energie di 1173,2 keV e 1332,5 keV. I



due centroidi del Co^{60} si sono registrati il primo al canale 1966 ed il secondo al canale 2233.
 Differenza Energia : $1332,5 \text{ keV} - 1173,2 \text{ keV} = 159,3 \text{ keV}$



Differenza Canali : $2233 \text{ Can} - 1966 \text{ Can} = 267 \text{ Can}$
 Energia per Canale : $159,3 \text{ keV} / 267 \text{ Can} = 0,6 \text{ keV/Can}$
 A questo punto, impostando un grafico canali-conteggi si dovrebbe ottenere una retta passante per lo

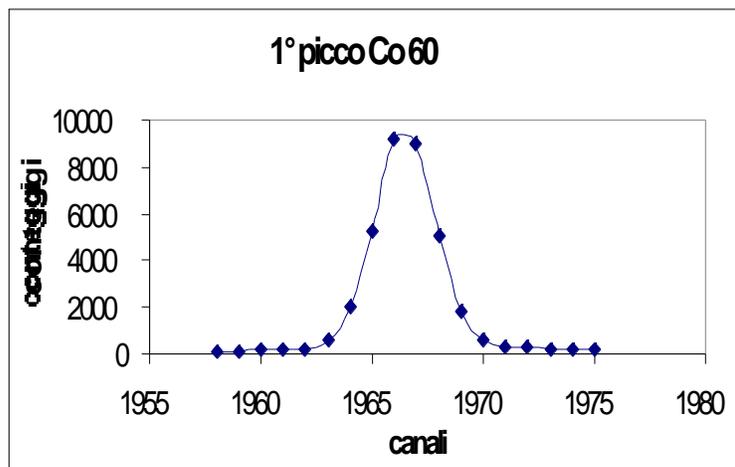
origine degli assi ed avente 0,6 come coefficiente angolare.

Se però si esegue il rapporto $1332,5 \text{ keV} / 0,6 \text{ keV/Can}$ (energia del picco / energia per canale) si otterrà il valore **2220,8 Can** che non corrisponde nello spettro alla posizione del centroide del fotopicco. Per calcolare lo sfasamento occorre semplicemente eseguire la differenza $2233 \text{ Can} - 2220,8 \text{ Can} = 12,2 \text{ Can}$. Ciò significa che la retta non passa per l'origine degli assi , ma interseca l'asse delle ascisse nel punto corrispondente a 12,2 Can.

➤ *Analisi dei fotopicchi*

L'analisi dei fotopicchi consiste nell'individuazione del radionuclide e nella valutazione dell'area del picco di assorbimento totale. Per la determinazione del radionuclide occorre calcolare l'energia del centroide tenendo conto dei keV per Canale e dello sfasamento. Una volta ottenuto tale valore basterà ricercarlo su apposite tabelle. Per calcolare l'area del fotopicco esistono vari metodi, il più diffusamente impiegato per la sua semplicità e quello dell'*Area Totale*. Esso si basa sulla valutazione del fondo mediante interpolazione lineare tra i primi e gli ultimi canali del picco. Si prenda come esempio il Co^{60} . Vengono considerati canali effettivi del picco solo quelli

CANALI	CONTEGGI
1958	116
1959	116
1960	153
1961	167
1962	227
1963	561
1964	2021
1965	5240
1966	9186
1967	8982
1968	5068
1969	1771
1970	613
1971	324
1972	268
1973	245
1974	206
1975	226



Evidenziati in tabella , mentre i primi e gli ultimi cinque valori vengono interpretati come fondo. Si procede nel seguente modo:

$$\text{Media Fondo: } \{[(116 + 116 + 153 + 167 + 227)/5] + [(324 + 268 + 245 + 206 + 226)/5]\} / 2 = 204,8$$

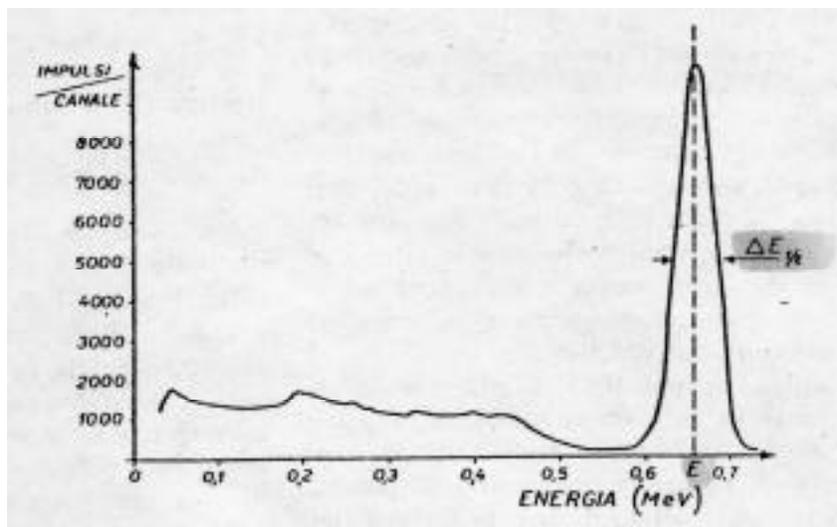
$$\text{Area Totale: } 561 + 2021 + 5240 + 9186 + 8982 + 5068 + 1771 + 613 = 33442$$

$$\text{Area Fondo Corrispondente al Picco : } \text{Media Fondo} \times \text{Canali del Picco} = 205 \times 8 = 1640$$

$$\text{Area Netta : } \text{Area Totale} - \text{Media Fondo Corrispondente al Picco} = 33442 - 1640 = \mathbf{31802}$$

➤ Risoluzione dello strumento

I fotopicchi si presentano come una distribuzione gaussiana di impulsi caratterizzata da un valore massimo o centroide del picco, corrispondente all'energia dei fotoni assorbiti, e da una larghezza dovuta alla dispersione della frequenza degli impulsi attorno al massimo. Una misura di questa dispersione è data dalla "risoluzione", definita come il rapporto fra l'ampiezza a metà altezza del fotopicco e l'energia dei fotoni .



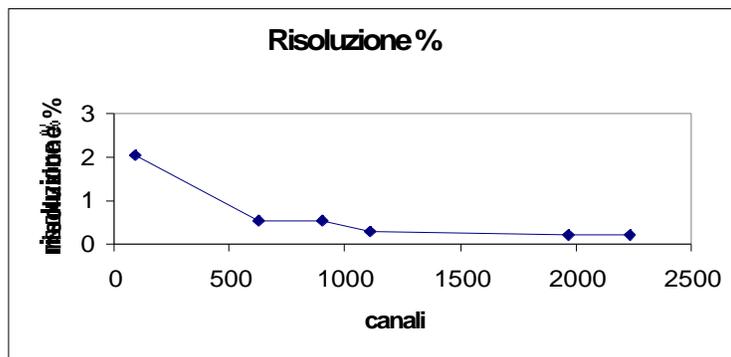
Normalmente la risoluzione è espressa come percentuale ed è ottenuta quindi dalla relazione:

$$\text{Risoluzione}(\%) = (E_{1/2} \times 100) / E$$

Se poi si converte l'energia in canali si ottiene la relazione da noi utilizzata:

$$\text{Risoluzione}(\%) = (\text{Can}_{1/2} \times 100) / \text{Can}$$

Applicando tale relazione ai picchi del Co^{60} , Cs^{137} , Ba^{133} , Na^{22} , Am^{141} analizzati abbiamo quindi ricavato la risoluzione dello strumento corrispondente alle varie energie delle emissioni di fotoni ottenendo il seguente grafico:



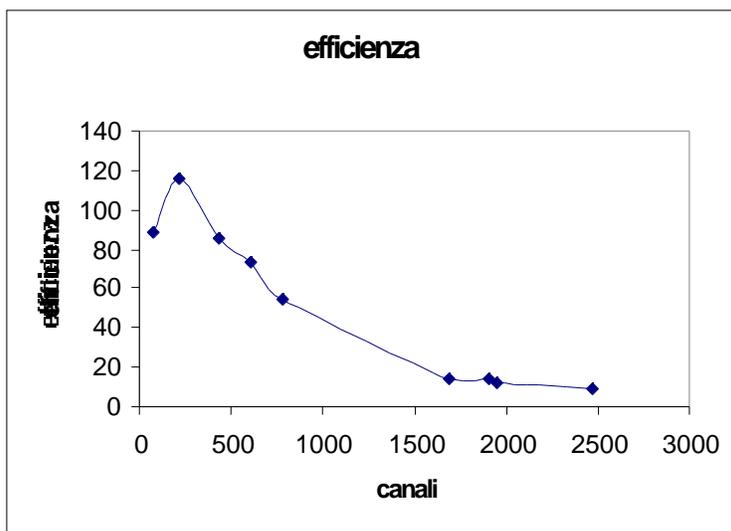
E' evidente l'importanza di una buona risoluzione per l'accuratezza dell'analisi spettrale: da essa infatti dipende la possibilità di distinguere fotoni di differente energia.

➤ Efficienza di conteggio

Per efficienza di conteggio si intende il rapporto tra il numero di impulsi registrati dal contatore in un certo intervallo di tempo ed il numero di fotoni emessi dal radionuclide nello stesso intervallo temporale. Per calcolare tale parametro abbiamo utilizzato la seguente relazione:

$$= (\text{conteggi/s}) / (\text{Attività} \times \text{Abbondanza} \%)$$

applicata ad una sorgente di Eu^{152} ottenendo la seguente curva di efficienza:



E' importante notare come una volta stabilita la curva di efficienza dello strumento sia facile risalire all'attività di un radionuclide utilizzando la formula inversa:

$$\text{Attività} = (\text{Conteggi/s}) / (\text{ x Abbondanza} \%)$$