

ALMA MATER STUDIORUM · UNIVERSITÀ DI BOLOGNA

FACOLTÀ DI SCIENZE MATEMATICHE, FISICHE E NATURALI

Corso di Laurea Specialistica in Fisica

**La rivelazione dei neutroni
in esperimenti di fisica nucleare:
problematiche e studio di scintillatori organici**

Relatore:

Prof. Mauro Bruno

Candidato:

Tommaso Marchi

Correlatori:

Dott.sa Fabiana Gramegna

Dott.sa Sara Carturan

Sessione III

Anno Accademico 2007/2008

A Daniela

Indice

Introduzione	v
1 La rivelazione dei neutroni	1
1.1 La scoperta del neutrone	2
1.2 Sorgenti di neutroni	4
1.3 Interazione dei neutroni con la materia	9
1.3.1 Urti Elastici	9
1.3.2 Urti Anelastici	12
1.3.3 Reazioni di trasmutazione	12
1.3.4 Cattura radiativa	14
1.3.5 Spallazione	14
1.3.6 Fissione	15
1.3.7 Sezioni d'urto	15
1.3.8 Moderazione	18
1.4 Rivelatori di neutroni	19
1.4.1 Rivelatori per neutroni lenti	19
1.4.2 Rivelatori per neutroni veloci	21
1.5 La fisica dei neutroni	28
1.5.1 Il progetto SPES	33
2 Scintillatori Organici	39
2.1 Struttura energetica dei materiali organici	41
2.2 Meccanismi di scintillazione	43
2.2.1 Processi primari	44
2.2.2 Processi secondari	46
2.3 Soluzioni a due e tre componenti	52
2.4 Valutazione Sperimentale dell'efficienza di scintillazione	56
2.5 Risposta degli scintillatori in funzione del tipo di radiazione	57
2.6 Quenching	59
2.7 Risposta temporale	60

2.8	Forma del segnale	61
2.9	Rivelazione della luce prodotta	62
2.10	Scintillatori Plastici	65
3	Produzione e caratterizzazione di scintillatori siliconici	67
3.1	Composizione chimica dei campioni	69
3.2	Preparazione dei campioni	72
3.3	I campioni realizzati	73
3.3.1	Spessori dei campioni	78
3.4	Fotoluminescenza: spettri di emissione	80
3.5	Misure di Resa di Luce	83
3.5.1	Apparato di misura	83
3.5.2	Le Sorgenti	85
3.5.3	Misure con sorgente α	86
3.5.4	Misure con sorgenti γ	103
4	Misure IBIL	107
4.1	Apparato Sperimentale	107
4.2	Analisi dati e risultati	111
4.2.1	Spettri di emissione	111
4.2.2	Degrado da esposizione	114
5	Misure con sorgenti di neutroni	117
5.1	Misure di raggi X dai campioni della serie Gd	117
5.1.1	L'apparato di misura	118
5.1.2	Calibrazione del rivelatore	120
5.1.3	Emissione di raggi X da cattura neutronica	122
5.2	Misure di neutroni con fotomoltiplicatore	125
5.2.1	Primi test con campioni contenenti Boro	125
	Conclusioni	131
	A Grandezze rilevanti in dosimetria	135
	B Caratteristiche del fotomoltiplicatore Hamamatsu H6524	139
	Bibliografia	145

Introduzione

Il lavoro descritto in questa tesi è stato svolto nell'ambito della collaborazione NUCL-EX/FAZIA tra i gruppi delle Università e le sezioni dell'INFN di Bologna, Legnaro, Firenze e Napoli. Le misure effettuate si inseriscono in una campagna sperimentale in cui competenze nel campo della rivelazione di radiazioni ionizzanti sono state fuse con competenze nel campo dello studio dei materiali scintillanti, sia dal punto di vista della preparazione chimica che dell'analisi della luminescenza indotta da diverse sonde. Tali problematiche rientrano, in particolare, nel programma dell'esperimento ORIONE di commissione V dell'INFN per l'ottimizzazione di rivelatori basati su scintillatori organici solidi, da utilizzare nella rivelazione di neutroni. Esse sono di interesse per la fisica nucleare con fasci stabili e con fasci esotici (progetto SPES), laddove si prevedano accoppiamenti di rivelatori di neutroni con apparati di nuova generazione (*e.g.* FAZIA). Altri campi di applicazione si trovano nella fisica dei materiali e nello sviluppo di monitor di radiazione da utilizzare in ambienti ad alto flusso di neutroni.

La rivelazione di questo tipo di radiazione presenta delle difficoltà sperimentali che sono illustrate nel primo capitolo di questo lavoro di tesi. In tale contesto, dopo aver introdotto alcuni concetti essenziali sull'interazione neutroni-materia, vengono menzionate le tecniche più diffuse per la rivelazione di neutroni lenti e veloci. Vengono quindi illustrate brevemente alcune recenti tematiche di fisica nucleare per le quali le informazioni apportate dai neutroni risultano importanti ed uniche. Nel seguito si fa cenno ai recenti sviluppi di complessi di acceleratori per la produzione di fasci di ioni esotici e ricchi di neutroni, nonché di facility per la produzione di fasci di neutroni. Si sottolinea, quindi, la necessità di affrontare nuove problematiche, sia nell'ambito della fisica nucleare che dell'astrofisica e della fisica applicata, per le quali l'informazione apportata dai neutroni risulta essere importante.

Da queste motivazioni è nato il progetto di ricerca illustrato in questo lavoro, per lo sviluppo di rivelatori solidi per neutroni basati su scintillatori organici siliconici. Questi dovrebbero permettere di avere una ottima efficienza di

rivelazione assieme a grandi maneggiabilità e possibilità di lavorazione.

Le proprietà degli scintillatori organici verranno pertanto ricordate nel capitolo due, mentre il capitolo tre sarà dedicato alla descrizione della vasta classe di misure con sorgenti radioattive effettuate su diversi campioni. Tali misure hanno lo scopo di selezionare le migliori "ricette" di produzione, in vista dell'utilizzo dei materiali analizzati come scintillatori per rivelatori.

Nel capitolo quattro saranno introdotte misure di *Ion Beam Induced Luminescence* (IBIL) adatte a caratterizzare gli spettri di emissione dei campioni sotto radiazione ionica e a studiare il danneggiamento da radiazione a dosi elevate di esposizione.

Il capitolo cinque dedicato alla rivelazione di neutroni termici, utilizzando una sorgente di Americio-Berillio opportunamente moderata, su campioni contenenti Gadolinio.

Per concludere verranno illustrati alcuni risultati preliminari sui primi campioni disponibili contenenti Boro. Le prospettive di questo lavoro di sviluppo e la discussione sui risultati fino ad ora ottenuti sono riassunte nelle conclusioni.

Capitolo 1

La rivelazione dei neutroni

Il neutrone è una particella massiva che gioca un ruolo fondamentale nello studio delle interazioni nucleari. Si tratta della controparte neutra del protone nel doppietto nucleonico. Non essendo carica, non risente dell'interazione Coulombiana e può penetrare nel nucleo anche con un' energia minore di un elettronvolt. Questo gli permette, già a questa energia, di dare luogo a reazioni nucleari.

Allo stesso tempo la rivelazione di questo tipo di particella presenta non poche difficoltà sperimentali: l'indifferenza al potenziale Coulombiano, appunto, rende trascurabili le sue interazioni con gli elettroni atomici dei materiali (principio su cui si basa il funzionamento di molti rivelatori); di conseguenza si dovranno individuare dei meccanismi propri per rivelare questo tipo di radiazione.

Nel lavoro presentato focalizzeremo la nostra attenzione sullo studio di materiali scintillanti che, per le loro proprietà fisiche e chimiche, siano in grado di interagire con neutroni di alta energia e di catturare neutroni di bassa energia. La scarsità di processi in cui un neutrone cede tutta la sua energia in una singola interazione abbassa la probabilità di assorbimento, rendendo il neutrone una particella particolarmente elusiva.

Per gli stessi motivi la selezione energetica di un fascio di neutroni, l'accelerazione e la focalizzazione richiedono lo sviluppo di tecniche completamente diverse da quelle implementate per i fasci carichi: non potendo contare sugli effetti acceleranti di un campo elettrico e sulle proprietà devianti dei campi magnetici, ci si trova davanti a sfide tecnologiche di elevata complessità. Oggi sono in fase di sviluppo e realizzazione progetti molto interessanti per quanto riguarda la produzione di fasci di neutroni, così come di ioni pesanti ricchi di neutroni (fasci radioattivi) per lo studio di reazioni nucleari lontano dalla valle di stabilità. Come esempi si vedano [1],[2].

1.1 La scoperta del neutrone

Le prime osservazioni sperimentali riconducibili al neutrone risalgono al 1930. Bombardando atomi di Berillio con particelle α , Bothe e Becker, si accorsero di aver prodotto radiazioni non ionizzanti (neutre) molto penetranti che assunsero essere fotoni di alta energia. Più avanti Curie e Joliot scoprirono che queste radiazioni, incidendo sulla paraffina, causavano l'emissione di protoni con energia di circa $5,3 \text{ MeV}$. Per ottenere questo valore con calcoli di scattering Compton sarebbero stati necessari fotoni di un'energia dieci volte superiore a quella delle particelle α che li avevano generati e questo pareva inaccettabile a meno di non rinunciare al principio di conservazione dell'energia.

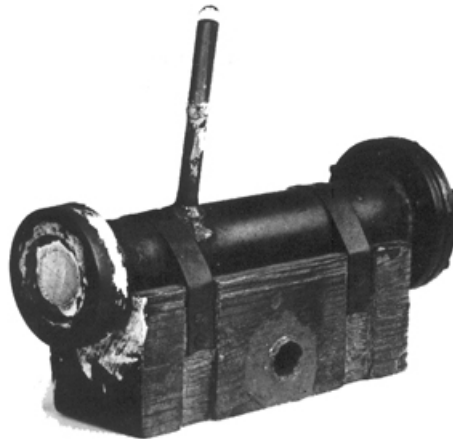


Figura 1.1: La camera a neutroni usata da Chadwick per osservare i prodotti delle loro interazioni con i materiali.

La soluzione arrivò nel 1932 quando Chadwick iniziò a studiare in modo sistematico gli effetti di questa radiazione su differenti tipi di materiali. Egli osservò che anche nuclei diversi da quelli dell'atomo di Idrogeno rimbalzavano all'indietro quando venivano colpiti da tali raggi, ma a velocità molto minori di quelle misurate per l'Idrogeno. Il decrescere della velocità di rinculo del nucleo colpito all'aumentare del suo peso era spiegabile ipotizzando che la radiazione ignota fosse costituita da particelle massive. Come nelle collisioni tra particelle α ed i nuclei, infatti, si devono considerare la conservazione della quantità di moto e dell'energia totale. Anche con calcoli classici si può

osservare che la velocità di rinculo del nucleo bersaglio (di massa m_b) è più alta tanto più la sua massa è simile a quella del nucleo proiettile (m_p):

$$V_f = 2 V_i \frac{m_p}{m_p + m_b}$$

A causa delle difficoltà sperimentali del tempo non fu possibile stabilire immediatamente quale fosse la massa del neutrone con precisione elevata: questa sembrava essere di poco inferiore alla somma di quella del protone con quella dell'elettrone. Come già aveva ipotizzato Rutherford nel 1920, anche Chadwick considerò il neutrone come un aggregato di queste due particelle. In questo modo la carica totale nulla era in accordo con l'osservazione sperimentale così come la massa.

Il 27 febbraio 1932 apparve su Nature la pubblicazione in cui James Chadwick affermava di aver scoperto il **neutrone**. In seguito Heisenberg avanzò l'ipotesi che il neutrone si potesse legare al protone per formare il nucleo atomico tramite lo scambio di elettroni. Queste idee rimasero in voga per alcuni anni, fino a quando misure di massa più precise e lo studio accurato sui livelli energetici di alcune molecole portarono lentamente a considerare il neutrone come una particella elementare. Sicuramente l'esperimento di Tuve, Heydenberg e Hafstad [3] del 1936 fu determinante in questa direzione. Studiando la diffusione dei protoni da parte di altri protoni essi mostrarono che la forza nucleare tra protoni ha la stessa intensità di quella tra protone e neutrone, che quindi non poteva essere considerato "meno elementare". Si gettarono così le basi per lo studio moderno del nucleo come costituito da due diverse tipologie di nucleoni (protone e neutrone, appunto) che interagiscono sentendo una forza reciproca indipendente dalla carica [4]. Oggi sappiamo che il neutrone ha una massa di $939,573 \text{ MeV}/c^2$, con una differenza da quella del protone pari a $m_n - m_p = 1,2933317 \pm 0,0000005 \text{ MeV}/c^2$. Nel Modello Standard è classificato come un *barione* costituito dalla combinazione di quark *udd* con spin totale $1/2$. La forza che lo lega al protone è la *Forza Nucleare Forte*. La vita media di un neutrone non legato è di circa 15 minuti, dopodiché subisce decadimento beta in un protone, un elettrone ed un antineutrino dell'elettrone [5].

Trattandosi di un tempo non trascurabile e visto l'importante ruolo che esso riveste sia per la Fisica Nucleare che applicativa, ha senso interessarsi alla sua rivelazione sia in esperimenti di fisica nucleare che in ambienti con intensa attività radioattiva come i reattori nucleari.

1.2 Sorgenti di neutroni

In base alla loro energia, i neutroni, si distinguono in:

- Termici $E \simeq 0,025 \text{ eV}$
- Epitermici $E \simeq 1 \text{ eV}$
- Lenti $E \sim 1 \div 100 \text{ keV}$
- Veloci $E > 100 \text{ keV}$

Non esistono emettitori naturali di neutroni, tuttavia è possibile utilizzare varie tecniche per produrne artificialmente. Si possono anche produrre fasci di neutroni partendo da una discreta varietà di reazioni nucleari. Non si possono accelerare, ma è possibile partire da neutroni di alta energia e rallentarli (moderarli) facendoli interagire con opportuni materiali. Mostriamo velocemente le tecniche più comuni.

Sorgenti α -Be La stessa reazione responsabile della scoperta del neutrone viene utilizzata come sorgente di neutroni da laboratorio. L'isotopo stabile del Berillio, il ${}^9\text{Be}$, ha un neutrone relativamente poco legato (energia di legame pari a $1,7 \text{ MeV}$). Se una particella α proveniente da un nucleo radioattivo (tipicamente con energie di $5 - 6 \text{ MeV}$) colpisce il nucleo di Berillio, può dare luogo alla reazione:



Il Q valore della reazione vale $5,7 \text{ MeV}$.

Mescolando una sorgente α a lunga vita media (ad es. ${}^{226}\text{Ra}$, ${}^{241}\text{Am}$, ${}^{210}\text{Po}$) con del ${}^9\text{Be}$, otterremo una produzione continua di neutroni con energie variabili a seconda della sorgente radioattiva utilizzata. Nel caso del ${}^{226}\text{Ra}$, per esempio, lo spettro α ha energie tra 5 e 8 MeV , di conseguenza si potranno ottenere neutroni con energia massima di 13 MeV .

Lo spettro finale non sarà monoenergetico per vari motivi:

1. lo spettro della sorgente radioattiva non è monoenergetico in partenza, inoltre ci possono essere fenomeni di assorbimento-rallentamento nel materiale che costituisce la sorgente stessa;
2. la direzione di emissione dei neutroni rispetto alle alfa incidenti può variare;
3. è possibile che il Carbonio venga lasciato in uno stato eccitato.

L'energia più probabile rimane attorno ai 5 MeV ed il tasso di produzione è di circa 10^7 neutroni per ogni Curie¹ di α emesse dal ^{226}Ra . Questo tipo di sorgente presenta un fondo di raggi γ molto intenso.

Per le misure fatte nell'ambito di questo lavoro è stata utilizzata la sorgente di $\text{Am} - \text{Be}$ disponibile presso i Laboratori Nazionali di Legnaro dell'INFN. Si tratta di una sorgente prodotta dalla AEA Technology inc. [6] con attività dichiarata di 3,7 GBq (ad Ottobre 2003), il cui spettro è mostrato in figura 1.2 (per i dettagli sullo spettro di sorgenti di questo tipo si vedano [7] e [8]).

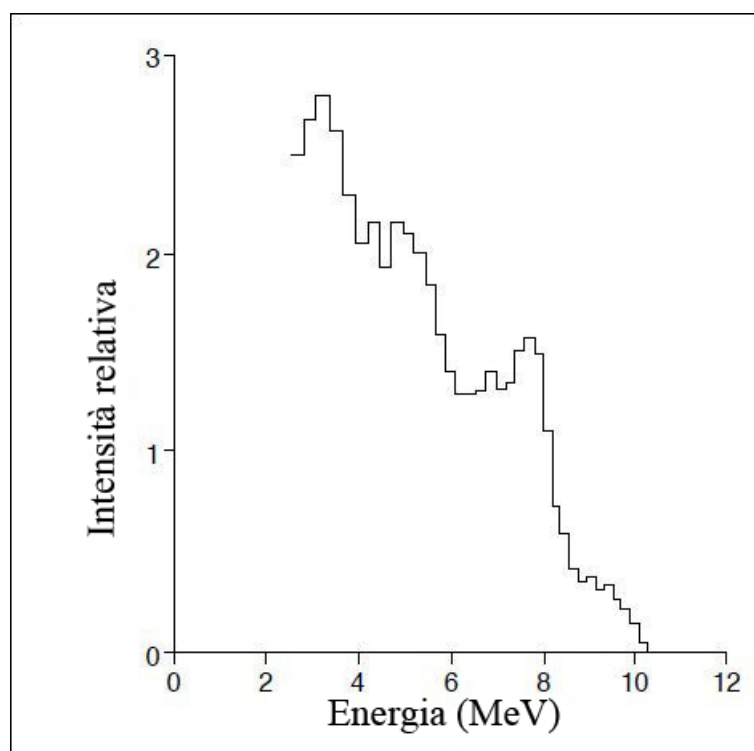


Figura 1.2: Spettro della sorgente Am-Be utilizzata in questo lavoro.

Lo schema 1.3 mostra la geometria della sorgente: il materiale emettitore è incapsulato in un contenitore di pochi millimetri di spessore a perfetta tenuta stagna (con saldature TIG² di alta precisione), in grado di resistere ad elevate temperature.

¹Per i dettagli sulle unità di misura utilizzate in dosimetria si veda l'appendice A.

²La Saldatura TIG (Tungsten Inert Gas) è un procedimento di saldatura ad arco con elettrodo infusibile (di tungsteno) sotto protezione di gas inerte. È uno dei metodi più diffusi, fornisce giunti di elevata qualità, ma richiede operatori altamente specializzati.

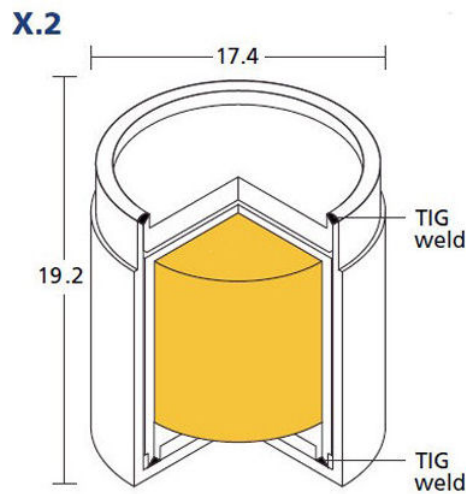


Figura 1.3: Struttura della sorgente X.2 della AEA Tech.

Altre reazioni nucleari Ovviamente in moltissime reazioni nucleari vengono prodotti dei neutroni, a seconda dell'energia incidente e del tipo di reazione si otterranno neutroni con velocità diverse. Alcune delle reazioni usate per produrre fasci di neutroni sono:

- ${}^3\text{H} + d \rightarrow {}^4\text{He} + n \quad Q = +17,6 \text{ MeV}$
- ${}^9\text{Be} + {}^4\text{He} \rightarrow {}^{12}\text{C} + n \quad Q = +5,7 \text{ MeV}$
- ${}^7\text{Li} + p \rightarrow {}^7\text{Be} + n \quad Q = -1,6 \text{ MeV}$
- ${}^2\text{H} + d \rightarrow {}^3\text{He} + n \quad Q = +3,3 \text{ MeV}$

Una classe particolare di reazioni è quella delle reazioni di *spallazione* il cui meccanismo è mostrato in figura 1.4. Un fascio di protoni di alta energia (ad esempio 1 GeV) incide su nuclei più o meno pesanti (ad esempio W, Pb, U) causando l'emissione di una grande quantità di nucleoni. Il processo di spallazione viene solitamente diviso in due fasi: prima si hanno le collisioni dei protoni incidenti con i nucleoni meno legati del bersaglio che portano ad un'emissione in cascata di nucleoni da cui, in un secondo momento, avviene un'ulteriore emissione dovuta a processi di tipo evaporativo simili a quelli che avvengono in nuclei pesanti a più basse energie. Spesso si utilizzano fasci pulsati di protoni così da produrre una sorgente pulsata di neutroni veloci. I problemi di questo modo di operare riguardano il forte danneggiamento

del bersaglio e la difficile dissipazione del calore prodotto, specialmente all'aumentare della corrente dei protoni (ad esempio in [1] o all'SNS di Oak Ridge).

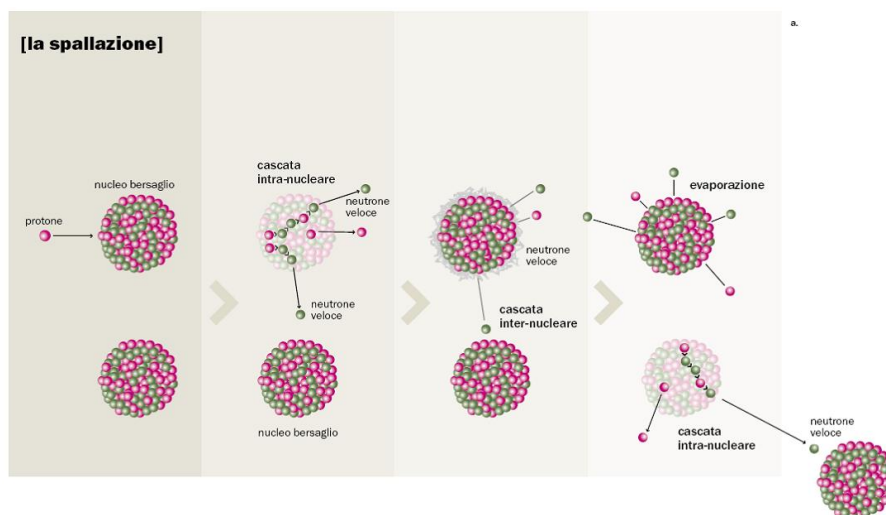


Figura 1.4: Processo di spallazione ed evoluzione del nucleo composto. I neutroni di interesse sono quelli prodotti dalle cascate intra-nucleari prima della formazione del nucleo composto [9].

Sorgenti fotoneutroniche. Analogamente alla reazione (α, n) discussa in precedenza, si può utilizzare il meccanismo (γ, n) . Il vantaggio della fotoproduzione consiste nella possibilità di ottenere fonti con intervalli energetici più definiti. La radiazione γ monoenergetica emessa da ^{24}Na ($2,76 \text{ MeV}$), ad esempio, è in grado di superare la barriera di potenziale del ^9Be :



Il tasso di produzione è accettabile ($2 \times 10^6 \text{ n/Ci}$ di ^{24}Na) e l'energia media dei neutroni vale circa $0,8 \text{ MeV}$ ma il tempo di dimezzamento è breve (15 ore).

Si possono realizzare anche altre sorgenti utilizzando altri emettitori γ come ^{124}Sb con tempo di dimezzamento di 60 giorni ma l'energia dei neutroni emessi è di poche decine di keV.

Fissione spontanea La fissione spontanea può avvenire in molti elementi transuranici, con emissione di neutroni assieme ai frammenti di fissione. Isotopi come ^{252}Cf sono emettitori di neutroni con tempo di dimezzamento di 2,65 anni. I neutroni sono prodotti direttamente dal processo di fissione con un tasso medio di 4 per fissione. Nel Californio la fissione avviene per il 3% dei decadimenti, che significa circa $2,3 \times 10^{12}$ neutroni/s per grammo di Californio ovvero $4,3 \times 10^9$ n/s per Ci, per il resto vengono emesse particelle alfa. Il risultato la distribuzione maxwelliana mostrata in figura 1.5 con energia media $T = 1,3$ MeV, ben descritta dalla formula:

$$\frac{dN}{dE} = \sqrt{E} e^{-\frac{E}{T}} \quad (1.3)$$

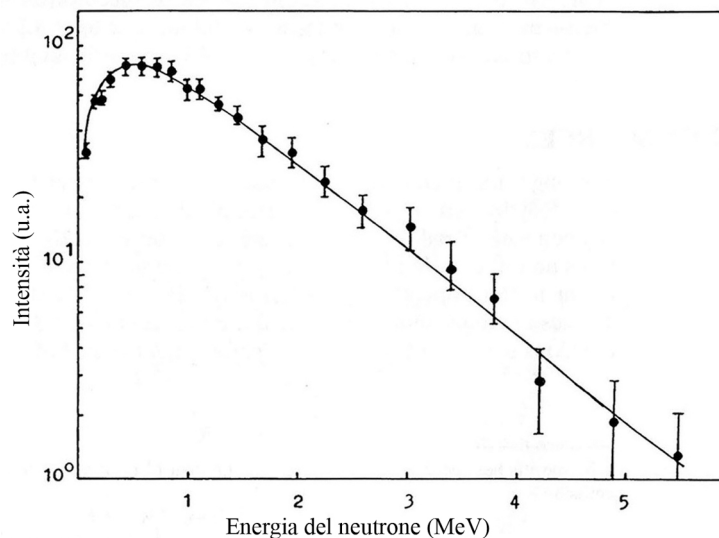


Figura 1.5: Spettro energetico della sorgente per fissione del ^{252}Cf .

Fissione indotta e Reattori Nucleari Il flusso di neutroni nelle vicinanze del nocciolo di un reattore a fissione può essere molto elevato (tipicamente 10^{14} n/cm²s con spettro energetico fino a 5 – 7 MeV ma piccato tra 1 e 2 MeV). Questi neutroni sono tipicamente rallentati ad energie termiche dentro al reattore stesso ma una parte può essere estratta per attività di laboratorio, fungendo in questo modo da sorgente di neutroni veloci.

1.3 Interazione dei neutroni con la materia

Nei materiali i neutroni possono percorrere svariati centimetri senza subire alcuna interazione, per cui è possibile che siano necessari rivelatori di dimensioni molto maggiori di quelle tipiche nel caso di particelle cariche. Anche la schermatura da questo tipo di radiazione presenta delle difficoltà specifiche. L'interazione è sempre di tipo nucleare tra il neutrone incidente ed i nuclei del materiale assorbitore (forza forte). Come conseguenza si possono avere l'assorbimento o una semplice deviazione dalla traiettoria di incidenza con parziale perdita di energia. In questa maniera, con tempi caratteristici lenti, anche un fascio di neutroni viene assorbito e ridotto di intensità.

L'assorbimento parziale dell'energia di un fascio di neutroni, con conseguente calo della loro velocità media, viene detto *moderazione*.

Al contrario della radiazione elettromagnetica, la maggior parte dei processi di assorbimento neutronici comporta l'emissione di particelle cariche massive ed è su questo tipo di conversione che si basano molti rivelatori. Le particelle prodotte possono arrivare da reazioni indotte dal neutrone, oppure possono essere nuclei del materiale assorbitore che ricolano in seguito all'interazione. Per i neutroni di alta energia il processo di interazione principale è l'urto elastico con i nuclei del materiale. Come vedremo in seguito, in funzione dell'energia sono possibili anche altri tipi di reazione come (n,p) , (n,α) o altri. Per neutroni lenti o termici la causa primaria di assorbimento è la cattura radiativa - reazione (n,γ) . Le sezioni d'urto di questi processi sono spesso dominate da una o più risonanze, dove la probabilità di assorbimento diventa molto grande. Fuori dalla risonanza la sezione d'urto cala al crescere della velocità in modo proporzionale a v^{-1} , di conseguenza più il neutrone è moderato a causa di processi di urti elastici e anelastici, maggiore diventa la probabilità di assorbimento.

Ad esempio, neutroni con energia iniziale di circa 1 MeV dovranno subire molti processi d'interazione fino a che la loro energia non sarà ridotta all'ordine di 1 eV , quando entrano in gioco i processi di cattura.

Analizziamo più in dettaglio i possibili meccanismi, in seguito ci occuperemo di come si possano sfruttare per realizzare dei rivelatori.

1.3.1 Urti Elastici

Consideriamo la reazione $A(n,n)A$ ad energie non relativistiche ($E \ll 939 \text{ MeV}$), ovvero:



Si tratta di una collisione elastica tra un neutrone di energia E e velocità v con un atomo bersaglio di massa $A = N + Z$ inizialmente a riposo. L'applicazione delle leggi di conservazione dell'energia e della quantità di moto permette di calcolare il rapporto tra l'energia finale del neutrone E' e la sua energia iniziale E [10]:

$$\frac{E'}{E} = \frac{A^2 + 1 + 2A\cos\theta}{(A + 1)^2} \quad (1.5)$$

dove θ è l'angolo di diffusione nel sistema del centro di massa, mentre E ed E' sono misurati nel sistema del laboratorio. Per $\theta = 0$, $E'/E = 1$, come è ovvio in assenza di collisione. La massima perdita di energia si ha per una collisione frontale ($\theta = 180^\circ$):

$$\left(\frac{E'}{E}\right) = \left(\frac{A - 1}{A + 1}\right)^2 \quad (1.6)$$

Si noti che per $A = 1$ il trasferimento di energia è totale. Per neutroni con energie inferiori ai 10 MeV l'urto è principalmente descrivibile con un'onda di tipo s , quindi indipendente da θ nel sistema del centro di massa. I valori di E/E' sono distribuiti in maniera uniforme tra 1 ed il valore minimo fornito dall'equazione 1.6, come mostrato in figura 1.6a. Per calcolare l'interazione effettiva tra i neutroni ed il materiale è necessario tenere presente che la distribuzione energetica di un fascio incidente si allarga in seguito ai primi urti. Si può procedere approssimando questi effetti per intervalli discreti ΔE . Calcolando gli effetti delle interazioni successive per ognuno di questi, si ottiene la successione di distribuzioni mostrate in figura 1.6b che possono essere sommate per ottenere le distribuzioni in 1.6c. Per essere più precisi definiamo il parametro ξ come valore medio del $\log(E/E')$ dopo una singola collisione:

$$\xi = \left[\log \frac{E}{E'} \right]_{medio} = \frac{\int \log \left[\frac{(A+1)^2}{A^2+1+2A\cos\theta} \right] d\Omega}{\int d\Omega} \quad (1.7)$$

dove $d\Omega$ è l'elemento di angolo solido nel sistema del centro di massa. Assumendo che le collisioni siano isotrope, l'integrazione dà:

$$\xi = 1 + \frac{(A - 1)^2}{2A} \log \frac{A - 1}{A + 1} \quad (1.8)$$

Il valore medio del logaritmo di E' è diminuito di ξ dopo ogni collisione, quindi dopo n collisioni il valor medio del $\log E'_n$ è $\log E'_n$:

$$\log E'_n = \log E - n\xi \quad (1.9)$$

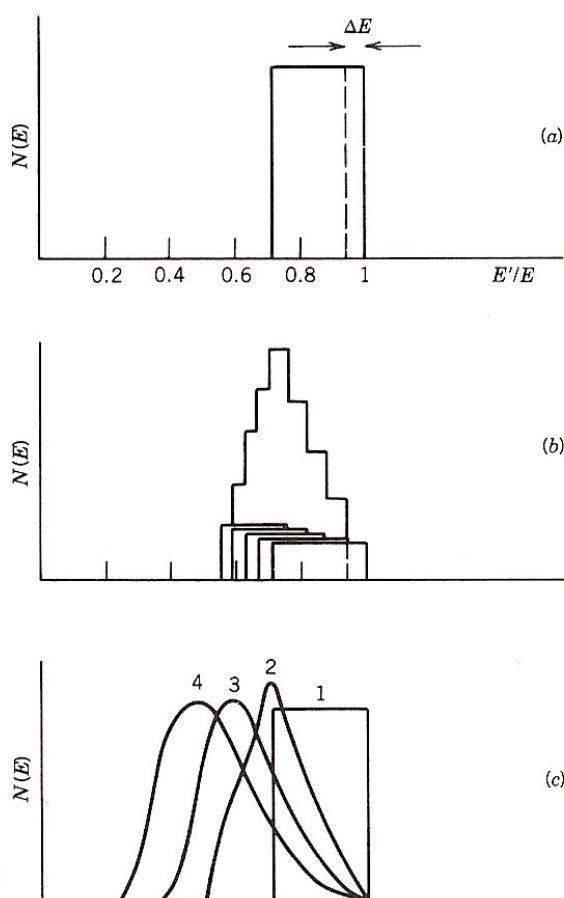


Figura 1.6: (a) Dopo un singolo urto la distribuzione monoenergetica E assume valori tra $0,72 E$ ed E stesso. (b) Dividendo la distribuzione ottenuta in sotto-intervalli ΔE si possono calcolare le singole evoluzioni dopo un secondo urto. (c) Calcolo esatto della distribuzione energetica totale dopo 1, 2, 3 e 4 urti.

Ciò implica, in media, una perdita di energia di un fattore $e^{-\xi}$ dopo ogni urto, cioè $e^{-n\xi}$ dopo n urti. Ad esempio un neutrone emesso da una sorgente di ^{252}Cf ($E_n = 2,14 \text{ MeV}$) subisce in media 14,5 collisioni per arrivare ad avere un'energia di 1 eV nell'Idrogeno, mentre in un moderatore di solo Uranio ($\xi = 0,008$) ne servirebbero 1730. Fino ad ora si è assunto che gli atomi del materiale assorbitore siano a riposo, approssimazione valida per neutroni veloci. Quando ci si avvicina ad energie termiche o epitermiche, questa approssimazione non è più trascurabile e l'analisi richiede l'utilizzo della meccanica statistica. Possiamo assumere che dopo un tempo "sufficiente" i neutroni raggiungano l'equilibrio termico con il moderatore ad una temperatura T . In questo caso la distribuzione delle velocità dei neutroni è

descritta da una curva di tipo maxwelliano:

$$f(v)dv = 4\pi n \left(\frac{m}{2\pi kT} \right)^{3/2} v^2 e^{-mv^2/2kT} dv \quad (1.10)$$

dove m è la massa a riposo del neutrone e n è il numero totale di neutroni per unità di volume; il valore di temperatura T , tuttavia è maggiore di quello dell'ambiente circostante perché i neutroni molto lenti vengono catturati direttamente dal moderatore (elevata sezione d'urto per basse velocità) e questo causa un innalzamento del livello medio di temperatura nel materiale. In termini di energia la stessa distribuzione vale:

$$f(E)dE = \frac{2\pi n}{(\pi kT)^{3/2}} E^{1/2} e^{-E/kT} dE \quad (1.11)$$

1.3.2 Urti Anelastici

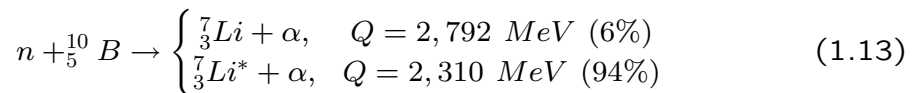
A differenza del caso precedente, in questo caso, il nucleo bersaglio si porta in uno stato eccitato. La reazione si rappresenta simbolicamente come $A(n,n)A^*$, ovvero:



Il neutrone incidente viene assorbito dal nucleo bersaglio e si ha la formazione di un nucleo composto instabile. Il seguente decadimento comporta l'emissione veloce di un neutrone a più bassa energia e vari decadimenti γ per tornare allo stato fondamentale.

1.3.3 Reazioni di trasmutazione

In questo tipo di reazioni il nucleo assorbitore cambia in carica e massa. A qualsiasi energia i neutroni possono provocare la trasmutazione, per esempio il ^{10}B che assorbe un neutrone, può scomporsi in 7Li ed una particella α :



Con neutroni termici incidenti il 94% dei prodotti è nello stato eccitato, solo il 6% delle reazioni popola direttamente lo stato fondamentale del 7Li . In entrambi i casi il Q-valore della reazione è molto grande rispetto all'energia del neutrone e di conseguenza lo si può considerare come l'energia rilasciata dalla reazione. Questo causa la perdita di ogni informazione sull'energia del neutrone incidente. Inoltre, essendo piccola anche la sua velocità, il momento

totale dei prodotti di reazione dovrà essere quasi nullo e quindi le particelle saranno emesse in direzione opposta nel sistema del laboratorio. Si possono anche calcolare le singole energie in uscita:

$$E_{Li} + E_{\alpha} = Q = 2,31 \text{ MeV} \quad (1.14)$$

$$m_{Li}v_{Li} = m_{\alpha}v_{\alpha} \quad (1.15)$$

$$\sqrt{2m_{Li}E_{Li}} = \sqrt{2m_{\alpha}E_{\alpha}} \quad (1.16)$$

Che, risolte per la reazione più probabile, danno:

$$E_{Li} = 0,84 \text{ MeV} \quad E_{\alpha} = 1,47 \text{ MeV} \quad (1.17)$$

In figura 1.7 sono mostrate le sezioni d'urto (vedi paragrafo 1.3.7) di alcune reazioni in funzione dell'energia del neutrone incidente. Tra queste si trova anche il processo appena mostrato.

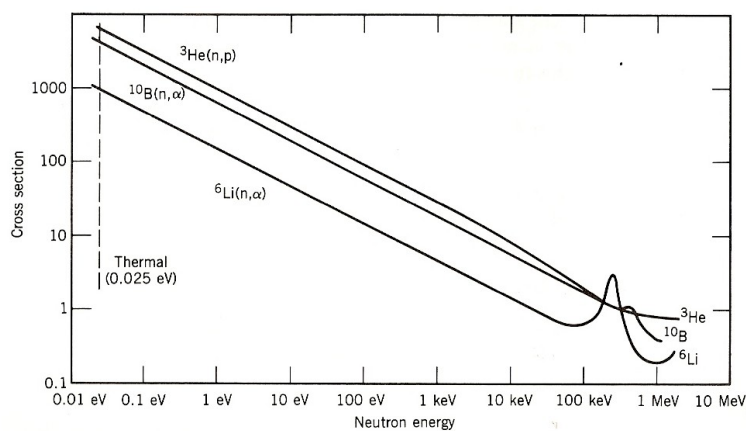


Figura 1.7: Sezioni d'urto per le reazioni ${}^3\text{He}(n,p)$, ${}^{10}\text{B}(n,\alpha)$ e ${}^6\text{Li}(n,\alpha)$. Si vedono l'andamento proporzionale ad $1/v$ e la comparsa di risonanze a circa 100 keV .

Le altre curve riguardano altre due possibili reazioni:

1. ${}^6\text{Li} + n \rightarrow {}^3_1\text{H} + \alpha; Q = 4,78 \text{ MeV}$
2. ${}^3\text{He} + n \rightarrow {}^3_1\text{H} + p; Q = 0,764 \text{ MeV}$

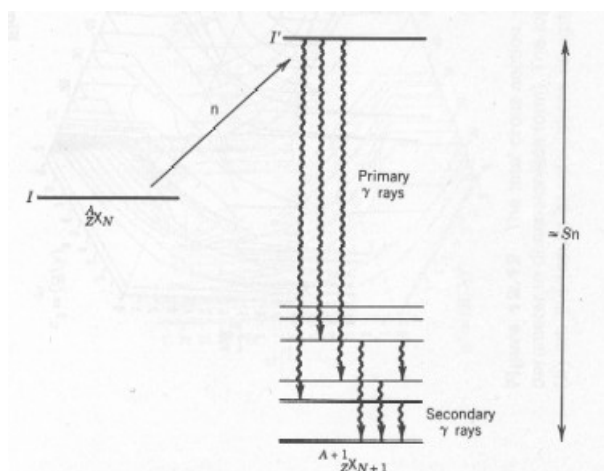


Figura 1.8: La cattura radiativa a basse energie porta il nucleo in uno stato eccitato I' che emette raggi gamma primari seguiti da emissioni secondarie.

1.3.4 Cattura radiativa

Si tratta di un fenomeno molto importante perché predomina per neutroni di bassa energia oppure per neutroni di alta energia moderati da grossi volumi di materia. Il nucleo bersaglio assorbe il neutrone e si porta in uno stato eccitato. Il ritorno allo stato fondamentale avviene solo per emissione di raggi γ (fig. 1.8). In questo caso non c'è trasmutazione del tipo di elemento, ma la composizione isotopica del bersaglio varia perché il neutrone non viene rimesso; siamo nella situazione $A(n, \gamma)A + 1$:



Un esempio è la "sintesi" del radioisotopo ^{60}Co :

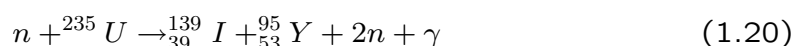


1.3.5 Spallazione

Allo stesso modo in cui si possono produrre neutroni con reazioni di spallazione, è possibile che un neutrone di alta energia rompa il nucleo bersaglio in vari frammenti, questo processo è importante solo ad energie maggiori di 100 MeV.

1.3.6 Fissione

Si tratta di una delle reazioni più importanti alle quali il neutrone possa dare luogo. In questo processo un neutrone lento viene catturato da un nucleo pesante (come ^{235}U) portandolo in uno stato eccitato. In seguito il nucleo fissiona rompendosi in coppie di frammenti. Oltre ai frammenti più pesanti vengono anche prodotti altri neutroni e raggi γ . Ad esempio per ^{235}U si può avere:



ma si tratta solo del canale più probabile. La fissione è la sorgente di calore nei reattori nucleari: il cosiddetto “nocciolo” del reattore è un ambiente controllato dove i neutroni possono produrre reazioni a catena come quella appena mostrata. I neutroni prodotti, infatti, sono liberi di dare luogo a loro volta a nuove reazioni. Di conseguenza viene prodotta una grande quantità di frammenti pesanti e di energia che viene raccolta sotto forma di calore, per essere poi convertita in energia elettrica. Il numero di reazioni deve essere controllato con attenzione per mantenere la reazione nel regime di criticità. La figura 1.9 mostra la sezione d'urto, in funzione dell'energia del neutrone incidente, per il processo di fissione in alcuni materiali.

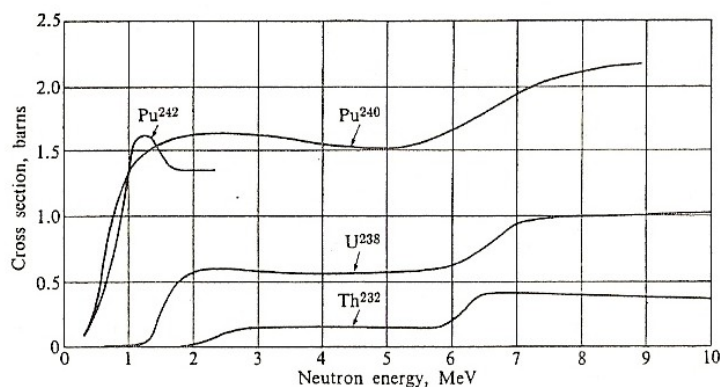


Figura 1.9: Sezioni d'urto del processo di fissione per alcuni nuclei.

1.3.7 Sezioni d'urto

Ognuno dei fenomeni appena elencati avviene con una certa sezione d'urto che dipende principalmente dall'energia del neutrone incidente e dal tipo di

materiale assorbitore. La sezione d'urto totale è la somma delle sezioni d'urto dei singoli processi:

$$\sigma_{tot} = \sigma_{elastico} + \sigma_{anelastico} + \dots$$

Come esempi si mostrano in figura 1.10 le sezioni d'urto per varie interazioni dei neutroni con Carbonio e Idrogeno. Questi due elementi sono di particolare interesse perché sono alla base dei composti organici.

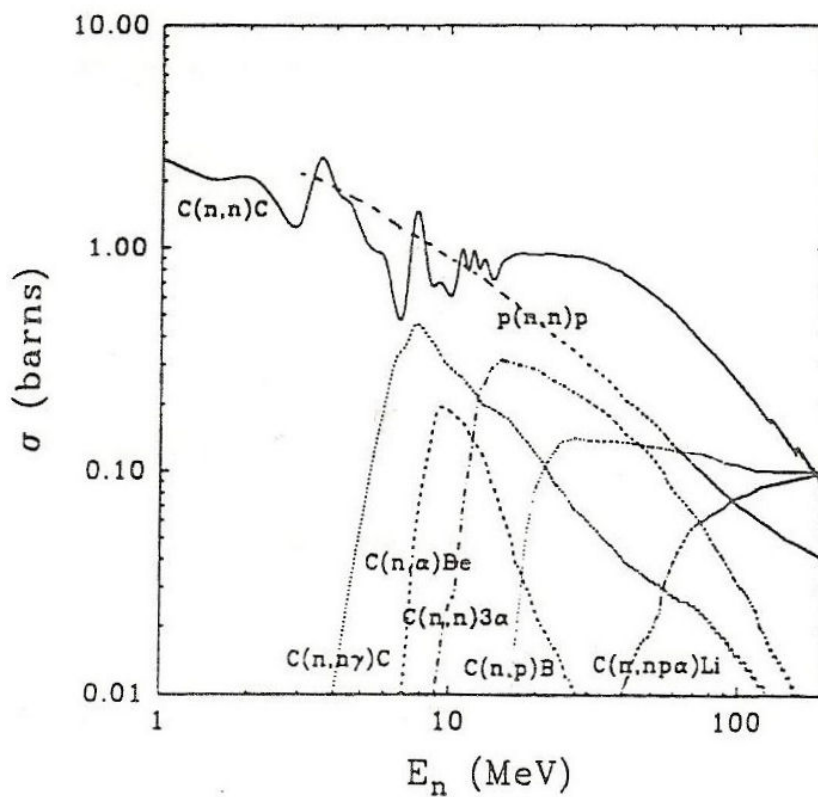


Figura 1.10: Sezioni d'urto per alcuni processi di interazione dei neutroni con C e H. Valori sperimentali.

Nell'attraversare uno spessore dx di materiale, i neutroni incontreranno $n dx$ atomi per unità di superficie, dove n è il numero di atomi per unità di volume del materiale. Se σ_t è la sezione d'urto totale, allora la perdita in intensità è:

$$dI = -I\sigma_t n dx \quad (1.21)$$

e l'intensità totale decresce in modo esponenziale con lo spessore:

$$I = I_0 e^{-\sigma_t n x} \quad (1.22)$$

Spesso si definisce il parametro $\mu_n = \sigma_t n$ come *coefficiente di attenuazione*, il cui inverso fornisce il *libero cammino medio* del neutrone nel materiale considerato:

$$\lambda_n = \frac{1}{\mu_n}$$

Si può anche esplicitare il valore di μ_n come:

$$\mu_n = n \sigma_t = \frac{N_A \rho}{A} \sigma_t \quad (1.23)$$

dove N_A è il *Numero di Avogadro* e ρ la densità del materiale.

Nel caso di un materiale composto da più elementi, è possibile definire un coefficiente di attenuazione medio come:

$$\mu_n^{medio}(E) = \rho_n \sum_{i=1}^n w_i \sigma_t^i(E) \quad (1.24)$$

dove w_i è la percentuale in massa dell'isotopo i -esimo che si sta considerando e ρ_n la densità del materiale. Dalla 1.21 si può dedurre che ad $x = \lambda_n$ si ha un'attenuazione del 63% del numero di neutroni. Si noti che queste espressioni si riferiscono a neutroni di una singola energia. Le equazioni precedenti non tengono conto di eventuali neutroni a più bassa energia che possono essere stati liberati in seguito a processi d'urto. Non è sufficiente, quindi, usare l'equazione 1.22 per calcolare la diminuzione effettiva del numero totale di neutroni. In effetti, per avere informazioni sul flusso di neutroni (ad esempio per dimensionare uno schermo), si utilizzano calcoli più complicati che tengono conto delle dipendenze energetiche in maniera più corretta. Spesso si introduce il *flusso di neutroni*: considerando neutroni di energia fissata, il prodotto $v\sigma_{tot}$ dà la frequenza del processo associato a tale sezione d'urto. La *densità di frequenza di reazione* (reazioni al secondo in un volume elementare) è data da $n(r)v\sigma$, dove $n(r)$ è la densità di neutroni nel punto r . Si ottengono due quantità:

- **Il flusso di neutroni:** $\phi(r) = n(r)v$;
- **La densità di frequenza di reazione:** $\int_0^\infty \phi(r, E)\sigma(E)dE$ che introduce la dipendenza energetica.

La figura 1.11 mostra l'andamento delle sezioni d'urto totali di interazione dei neutroni in funzione dell'energia e della massa del nucleo bersaglio [10].

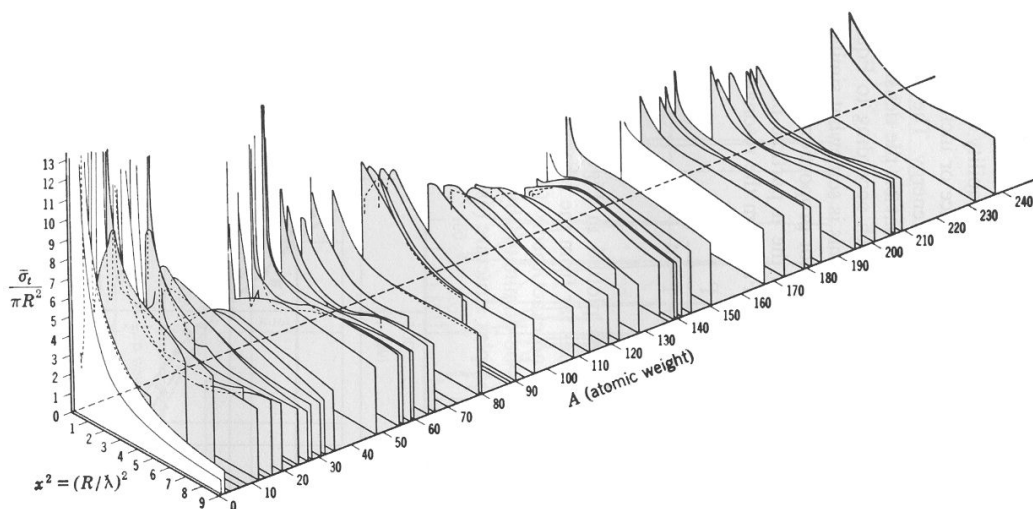


Figura 1.11: Sezioni d'urto totali in unità di πR^2 per neutroni di varie energie (x^2 è un parametro adimensionale legato all'energia). Valori sperimentali.

1.3.8 Moderazione

La moderazione dei neutroni avviene principalmente tramite urti elastici tra i neutroni incidenti ed i nuclei del materiale assorbitore. Nel paragrafo 1.3.1 abbiamo mostrato come avviene lo scambio di energia e come questo dipende dalla massa delle particelle, ora ci occupiamo dei parametri che caratterizzano la moderazione a livello collettivo. In tabella 1.1 sono mostrate le proprietà moderatrici di alcuni materiali. Il parametro "R" è il *rapporto di moderazione*, definito come:

$$MR = \xi \sigma_s / \sigma_c \quad (1.25)$$

dove σ_s e σ_c sono rispettivamente le sezioni d'urto di scattering elastico e di cattura. Un buon moderatore deve massimizzare il flusso di neutroni termici in uscita, rallentando efficacemente i neutroni veloci in ingresso. Di conseguenza si preferiscono valori ξ prossimi ad 1 e bassa σ_c , ovvero con un elevato rapporto di moderazione. Sempre dalla tabella si vede che l'acqua ha un buon valore di (ξ) ma avendo anche un'alta sezione d'urto di cattura neutronica (0,33 b a 0,025 eV) presenta un basso rapporto di moderazione, risultando un moderatore poco efficace. Al contrario, l'acqua pesante presenta un ottimo rapporto di moderazione. Nella valutazione di un moderatore si devono anche tenere in conto parametri come la densità ed il costo.

Nucleo	ξ	N	MR
1H	1,00	18	
2H	0,725	25	
4He	0,425	43	
H_2O	0,920	16	71
D_2O	0,509	29	5670
2Be	0,209	69	143
^{12}C	0,158	110	192
^{238}U	0,0084	2200	0,009

Tabella 1.1: Proprietà moderatrici di alcuni materiali: N è il numero di urti necessari per ridurre l'energia dei neutroni di un fattore 5×10^7 , ovvero moderare una sorgente di ^{252}Cf .

L'attenzione ricade spesso su materiali come il polietilene ad alta densità (HDPE - $\rho = 0,92 \text{ g/cm}^3$), che rappresenta un buon compromesso tra tutte le caratteristiche elencate ed è solido [11].

1.4 Rivelatori di neutroni

I rivelatori per neutroni possono essere classificati in due grandi gruppi [12]: quelli per neutroni "lenti" e quelli per neutroni "veloci". Questa separazione è legata all'andamento della sezione d'urto di cattura del ^{113}Cd . In questo caso i neutroni "lenti" sono quelli con energie inferiori a circa 0,5 eV, valore determinato dal brusco calo della sezione d'urto di assorbimento dei neutroni del Cadmio (fig.1.12) punto detto di *cutoff*. Volendosi riportare alla classificazione introdotta in precedenza si tratta dei neutroni termici ed in parte epitermici. I restanti vengono detti neutroni veloci.

1.4.1 Rivelatori per neutroni lenti

I processi dominanti a basse energie sono la cattura neutronica e le reazioni di conversione introdotte in 1.3.3, in particolare le reazioni del Boro. Un rivelatore molto usato, infatti, è il tubo proporzionale a BF_3 . Il Trifluoruro di Boro gassoso può fungere sia da assorbitore di neutroni che da gas per un contatore proporzionale. In passato sono stati sviluppati anche altri gas a base di Boro ma il BF_3 viene scelto nella maggior parte delle applicazioni per l'ottimo compromesso tra le proprietà di assorbitore (viene spesso arricchito con ^{10}B) e quelle di gas proporzionale. La pressione di utilizzo tipica è tra 0,5 e 1 atm.

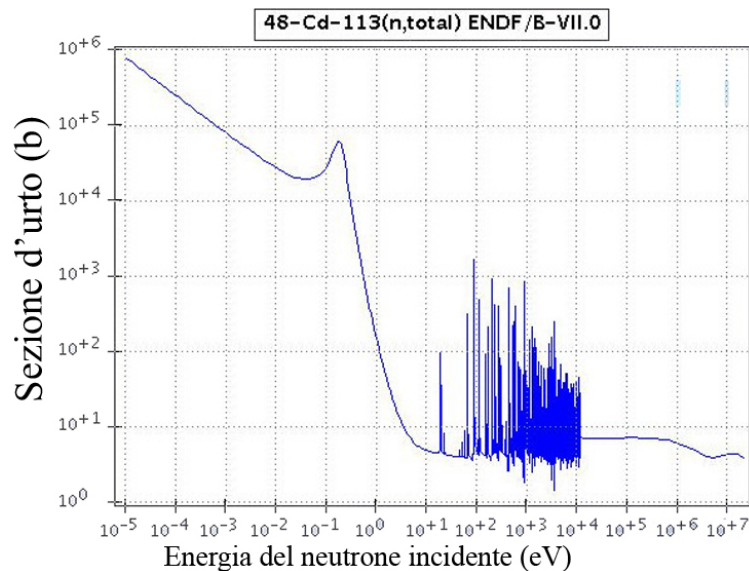


Figura 1.12: Sezione d'urto di assorbimento del ^{113}Cd , la curva presenta un *cutoff* a circa 0,5 eV.

Un'alternativa è rappresentata da contatori proporzionali classici, riempiti con gas standard (ad esempio gas nobili o miscele) le cui pareti siano rivestite di Boro solido. La reazione avviene nella parte solida ed il contatore a gas rivela le particelle α emesse. Ovviamente, siccome il cammino massimo delle alfa emesse è dell'ordine di 1 mg/cm^2 , sarà necessario produrre spessori di Boro inferiori a questo valore.

In altri rivelatori viene utilizzato ^3He . In questo caso pur avendo un'alta sezione d'urto, essendo un gas nobile, non è possibile prepararne dei composti solidi.

Esistono anche scintillatori organici drogati con ^{10}B (BC-523A [13]) o contenenti ^6Li che presentano indiscutibili vantaggi rispetto ai contatori proporzionali in termini di tempi di risposta, quindi di efficienza. Si tratta di materiali solidi o liquidi che generalmente mostrano buone caratteristiche di discriminazione tra gli eventi indotti da neutroni e quelli da fotoni di alta energia (γ) tramite tecniche di analisi del segnale.

Si può dire che la maggior parte dei rivelatori per neutroni è fatta con scintillatori; nel prossimo capitolo ci occuperemo in modo dettagliato delle proprietà di scintillazione dei materiali organici e di come questi possano essere utilizzati nei rivelatori.

Tuttavia il limite intrinseco di questi metodi è la mancanza di informazioni sull'energia del neutrone incidente: siccome non è possibile determinare la

direzione della particella emessa dalla reazione, anche se si conosce la sua energia non si possono fare considerazioni cinematiche, quindi non si può ricostruire l'energia dello stato iniziale.

Sono stati anche realizzati dei contatori a fissione. Si tratta di camere a ionizzazione rivestite nella finestra di entrata con un materiale fissile che libera i frammenti carichi prodotti dall'interazione col neutrone incidente. Si ha una grande quantità di energia liberata per neutrone incidente (fino a 200 MeV), la maggior parte della quale appare come energia cinetica dei frammenti (fino a 160 MeV). Tuttavia un rivelatore di questo tipo è normalmente molto sensibile al fondo e non consente di sostenere ritmi di conteggio elevati. Si hanno inoltre forti non linearità nella determinazione dell'energia depositata.

1.4.2 Rivelatori per neutroni veloci

Abbiamo discusso un certo numero di reazioni indotte dai neutroni che possono essere utilizzate per la loro rivelazione. In teoria tutto quello che si è detto per neutroni lenti si dovrebbe poter applicare anche ad energie più alte. Tuttavia l'andamento della sezione d'urto rende trascurabili molti processi ad energie elevate. Di conseguenza i rivelatori illustrati in precedenza hanno una bassissima efficienza di rivelazione per neutroni veloci.

Contatori basati sulla moderazione

Una tecnica abbastanza diffusa per la rivelazione dei neutroni veloci, che consente di riutilizzare le tecniche già esposte in precedenza, consiste nel rallentarli (*moderarli*) facendoli interagire con materiali ricchi di elementi leggeri (specialmente Idrogeno). In seguito ad uno o più processi d'urto si ottengono neutroni di bassa energia che possono essere contati con gli strumenti sopra discussi.

In figura 1.13 sono mostrati i diversi processi che si possono avere all'interno di moderatori di varie dimensioni:

1. Neutroni termalizzati e rivelati;
2. Neutroni moderati ma con energia sufficiente ad uscire dal materiale. L'energia di uscita è bassa ed eventuali rivelatori limitrofi li potrebbero osservare. In caso di misure di energia questo comporterebbe un errore sistematico;

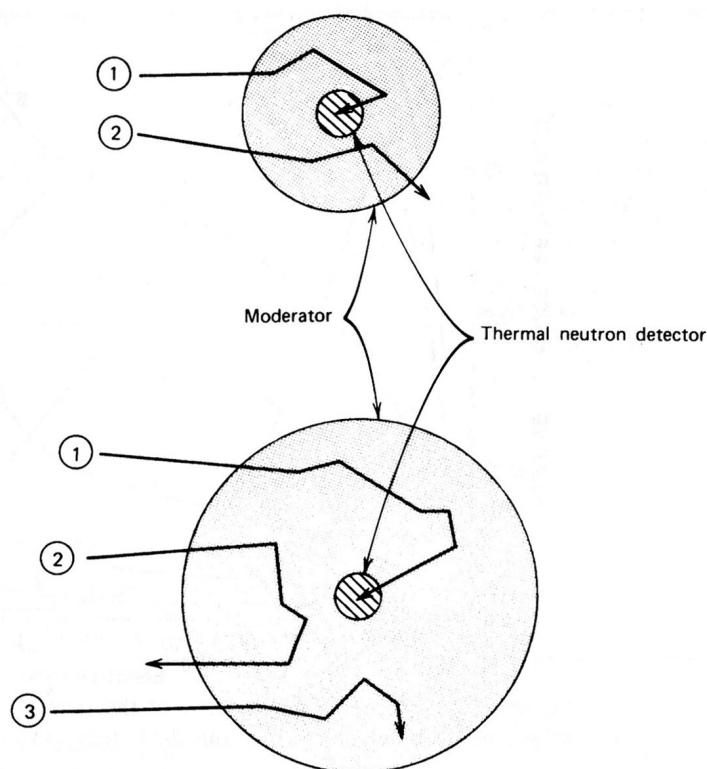


Figura 1.13: Moderazione di neutroni veloci in volumi grandi e piccoli. Al centro un rivelatore per neutroni lenti.

3. Neutroni termalizzati ma non rivelati perché assorbiti dal materiale. Questi non saranno mai rivelati (quenching, abbassamento dell'efficienza dello strumento).

Con questa tecnica sono stati realizzati vari tipi di apparati di misura: i *dosimetri sferici*, i *long counters*, ecc. per i dettagli costruttivi dei quali si veda [12]. Il denominatore comune è rappresentato dall'utilizzo di strumenti per neutroni lenti come i BF_3 o i contatori proporzionali ad 3He circondati da volumi più o meno grandi di moderatore.

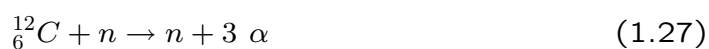
Rivelatori basati su processi d'urto

I processi mostrati in precedenza portano inevitabilmente alla perdita di qualsiasi tipo di informazione sull'energia del neutrone incidente. Inoltre si tratta sempre di meccanismi lenti, le particelle incidenti devono subire molte collisioni prima di essere rivelate e questo non consente misure con elevata

efficienza. Con neutroni veloci il problema viene superato basando la rivelazione direttamente sui nuclei di rinculo.

Nell'urto elastico (o anelastico) il neutrone incidente cede parte della sua energia cinetica al bersaglio. La frazione massima di energia trasmessa nell'urto dipende dalla massa del proiettile e si è già dimostrato che il massimo (100%) si ha per nuclei con massa simile a quella del neutrone (protoni dell'atomo di Idrogeno). Per questo motivo si preferiscono bersagli leggeri (contenenti Idrogeno, Deuterio, Elio) per costruire i cosiddetti *rivelatori a rinculo di protoni*. Un modo semplice per realizzare questo tipo di rivelatori consiste nell'utilizzare un qualunque scintillatore organico: tutti i materiali organici sono ricchi di elementi leggeri come H o C . In letteratura si trovano esperienze positive sia con cristalli organici come lo stilbene o l'antracene che con liquidi a più componenti o con materie plastiche in cui una matrice di idrocarburi polimerizzati ospita molecole scintillanti.

I cristalli organici offrono una generosa resa di luce ed una buona discriminazione neutroni-fotoni, tuttavia sono materiali costosi e delicati sia a livello termico che meccanico, inoltre la loro risposta in luce subisce variazioni significative a seconda dell'orientazione dei piani cristallini rispetto alla direzione della particella da rivelare (*channeling*). Per questo motivo vengono spesso preferiti i meno costosi scintillatori plastici o liquidi. Mentre i plastici hanno il vantaggio di potersi produrre in forme e dimensioni a piacere, i liquidi hanno ottime performance di discriminazione $n - \gamma$. In tutti i casi, oltre al contributo di scattering neutrone-protone non si può trascurare l'interazione neutrone-Carbonio tramite le reazioni:



La soglia di queste reazioni è rispettivamente di $6,17 \text{ MeV}$ e $7,98 \text{ MeV}$, in realtà esse diventano significative sopra ai 9 MeV . Nel caso in cui i neutroni incidenti siano monoenergetici, rivelando i protoni indipendentemente dall'angolo di scattering, si ottiene una distribuzione di forma rettangolare, altrimenti la somma di diverse distribuzioni assieme alla non linearità della risposta luminosa di molti scintillatori rendono abbastanza complicata la deconvoluzione degli spettri sperimentali.

Un'alternativa agli scintillatori è rappresentata dai contatori proporzionali a rinculo di protoni: in queste implementazioni il gas utilizzato è sempre ad alto contenuto di idrogeno: H_2 , CH_4 o di altri nuclei leggeri come il solito

He. La resa di un rivelatore di questo tipo è limitata dalla bassa densità dei gas che non consente di sostenere elevati ritmi di conteggio.

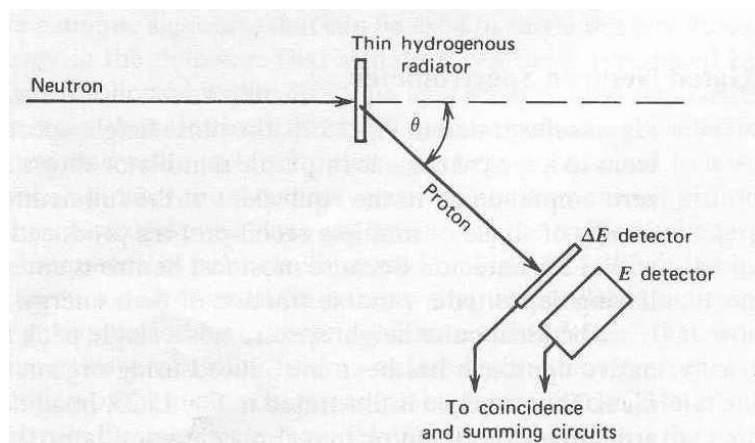


Figura 1.14: Schema di un rivelatore a rinculo di protoni.

Telescopi a rinculo di protoni Negli esempi fatti in precedenza la misura dello spettro energetico complessivo delle particelle cariche liberate in seguito agli urti dei neutroni con il materiale assorbente non era comunque sufficiente a dare una stima evento per evento dell'energia della radiazione incidente. I nuclei di rinculo trasportano una frazione dell'energia incidente in funzione dell'angolo di scattering: senza la misura di questo dato non è possibile fare altro che valutazioni estensive. Un modo per ottenere una misura diretta dell'energia consiste nel porsi ad un determinato angolo e misurare l'energia dei protoni emessi solo in quella direzione rispetto alla traiettoria dei neutroni (fig.1.14. La relazione che lega le due grandezze è la seguente:

$$E_p = E_n \cos\theta \quad (1.28)$$

A causa della dipendenza come $\cos^{-2}(\theta)$ della sezione d'urto di scattering elastico, vengono preferiti angoli piccoli, anche se avvicinandosi alla linea di fascio, cresce il rischio di introdurre eventi spuri dovuti all'interazione del fascio primario con il rivelatore stesso. Un rivelatore siffatto è noto come rivelatore a *rinculo di protoni* e può essere utilizzato solo se il fascio di neutroni incidente ha una direzione ben definita.

Si noti che lo stadio di identificazione $\Delta E - E$ è necessario per selezionare in massa le particelle emesse identificando i protoni (così da poter utilizzare la 1.28).

Tecniche capture gated Lo spettro di ampiezze prodotto da un fascio monoenergetico di neutroni negli scintillatori organici mostra un andamento continuo che si annulla in corrispondenza dell'effettiva energia del fascio incidente. Questo riflette il fatto che ogni neutrone interagisce più volte rilasciando solo parte della sua energia ai singoli protoni, può anche capitare che dopo qualche urto esca dal materiale. Ovviamente lo spettro di ampiezze ideale per un fascio monoenergetico presenta un solo picco in corrispondenza del massimo trasferimento di energia in un singolo urto ad un singolo protone. Un modo per cercare di avvicinarsi a questo risultato consiste nell'utilizzare scintillatori particolari in cui: il volume sia sufficiente a contenere la maggior parte dei neutroni incidenti e sia presente un drogante che cattura i neutroni termalizzati (ad es. il ^{10}B). Siccome l'energia incidente è elevata, i protoni liberati dall'interazione elastica sono tutti prodotti in una finestra temporale ristretta e questo comporta un unico segnale luminoso con energia pari alla somma delle energie di ogni singolo evento d'urto. Una volta che il neutrone ha perso la sua energia tramite le collisioni, continua a diffondere come neutrone termico finché non viene catturato dall'elemento drogante presente nel materiale. Questa reazione produce γ o particelle cariche che danno luogo ad un secondo impulso luminoso con un certo ritardo rispetto al primo (circa $10 - 20 \mu\text{s}$). Di conseguenza si ha una "firma" dell'interazione neutronica data dall'osservazione di un secondo impulso con un ritardo caratteristico di qualche decina di microsecondi. La rivelazione di entrambi consente di affermare che l'energia associata al primo impulso era tutta l'energia del neutrone incidente perché questo è stato termalizzato e successivamente catturato. Allo stesso modo è possibile scartare gli eventi in cui il neutrone non è stato completamente assorbito perché uscito dal rivelatore prima di aver ceduto tutta la sua energia. Nessuna delle due tecniche illustrate, comunque, appare di facile applicazione in quanto la rivelazione dei protoni di rinculo presenta difficoltà sperimentali notevoli.

Tecnica del tempo di volo Il metodo più comune per la stima dell'energia rimane la misura del tempo di volo (*TOF*). Questo è misurato tra il punto in cui avviene la reazione che porta all'emissione di un neutrone (radiatore) e la sua rivelazione ad una distanza nota (rivelatore).

Mentre la distanza è fissa, per misurare il tempo sono necessari un segnale che identifichi l'emissione del neutrone (*start*) ed uno di arrivo (*stop*). Come stop si utilizza il segnale indotto su un rivelatore per neutroni con buone qualità di discriminazione neutroni- γ .

Per lo start ci sono due metodi: il più comune nello studio delle reazioni nucleari è l'utilizzo di fasci pulsati in cui il segnale di start è dato semplicemente

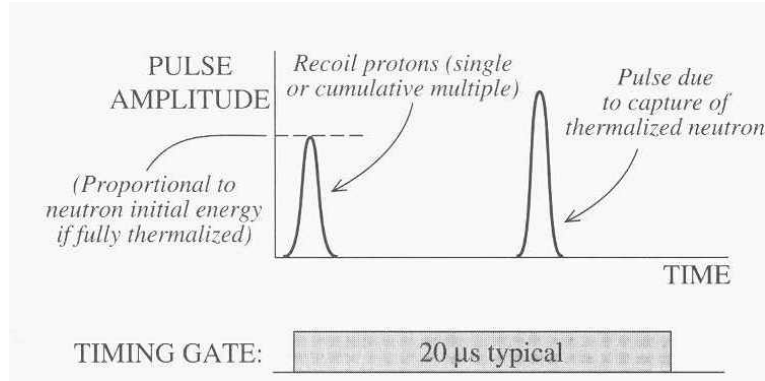


Figura 1.15: Successione di impulsi in un evento *capture gated*.

dalla radiofrequenza del fascio; un metodo alternativo consiste nell'utilizzo di rivelatori γ molto veloci posti molto vicino al radiatore che permettano di identificare i fotoni emessi in coincidenza con i neutroni.

Aumentando la distanza tra il radiatore ed il rivelatore aumenta la precisione con cui può essere misurato il tempo di volo e questo migliora la risoluzione della misura. Tuttavia si riduce l'angolo solido sotto cui il rivelatore vede il radiatore e, se non viene aumentato il numero di rivelatori, questo cala l'efficienza. Se poi gli eventi sono molto frequenti (i.e. il fascio è pulsato ad alta frequenza) c'è il rischio che i segnali dei neutroni più lenti si sovrappongano con quelli veloci dell'impulso successivo. Pertanto esiste un limite superiore alle frequenze degli eventi rivelabili (che si traduce in una frequenza di pulsazione del fascio). Si può mostrare che, detti α il *duty cycle*, cioè la frazione di periodo occupata dal fascio, D la distanza di volo, m la massa del neutrone e E_{min} ed E_{max} le energie minima e massima dei neutroni, la frequenza del fascio che permette di evitare grosse sovrapposizioni deve essere inferiore a:

$$\nu_{max} = \frac{1 - \alpha}{D \left(\sqrt{\frac{m}{2E_{min}}} - \sqrt{\frac{m}{2E_{max}}} \right)} \quad (1.29)$$

Ad esempio, per una distanza $D = 2 \text{ m}$, un *duty cycle* del 5% e neutroni che vanno da 5 MeV a 100 MeV , la frequenza deve essere inferiore a $18,9 \text{ MHz}$

Radiazione	Reazioni	Tipo di rivelatore	Esempio
n lenti	$^{10}_5B + n \rightarrow ^7_3Li + \alpha$ $^6_3Li + n \rightarrow ^3_1Li + \alpha$ $^3_2He + n \rightarrow ^3_1H + p$	Cont. Prop. Scintillatori drogati	contenuto: BF_3 , 3He mod. BC – 523A [13]
n lenti	Cattura radiativa (es. $^{157}Gd + n \rightarrow ^{158}Gd^* \rightarrow X, \gamma, \dots$)	Scintillatori drogati	mod. BC – 525 [13]
n lenti	Fissione ($^{238}U \rightarrow f.f. + en.$)	Camere a fissione	FIC di n_TOF [1]
n veloci	Moderazione	Dosimetri Sferici Long Counters	
n veloci	Rivelatori basati su processi d'urto	Telescopi a rinculo di protoni Spettr. a Tempo di Volo Spettr. capture gated	PRT [14] DEMON, RIPEN
n veloci	Reazioni indotte da neutroni veloci (bassa efficienza)	Cont. prop Scintillatori	BC-525

Tabella 1.2: Panoramica riassuntiva sui tipi di rivelatori per neutroni.

1.5 La fisica dei neutroni

Per ora ci siamo limitati a descrivere alcune delle proprietà dei neutroni, di come possono essere prodotti e delle loro interazioni con i materiali. Tutto questo assume un interesse maggiore alla luce delle innumerevoli applicazioni in campo scientifico e tecnologico della fisica dei neutroni, ovvero di tutta la fisica che si può studiare rivelando neutroni e tutto quello che è necessario sapere per poterli rivelare con precisione. Senza la pretesa di essere completi, vogliamo illustrare alcune situazioni concrete della fisica fondamentale ed applicata.

Reazioni nucleari fra ioni pesanti con fasci stabili Nelle collisioni fra ioni pesanti, dalle basse energie a quelle intermedie, è necessaria l'identificazione della maggior parte dei prodotti di reazione per ricostruirne al meglio la sorgente di emissione ed il meccanismo di produzione. L'identificazione in carica e massa con risoluzione energetica dell'ordine del per cento, dei prodotti di reazione carichi dalle particelle leggere ai frammenti più pesanti è un'ottima soluzione che permette con metodi calorimetrici di ricostruire le sorgenti di emissione. Questo però è vero per sistemi leggeri o medio-pesanti. Quando si cominciano a formare nuclei pesanti, dove il numero di neutroni è importante, i canali di decadimento che coinvolgono radiazione neutra divengono sempre più predominanti e avere informazioni sulla molteplicità neutronica e e/o sulla loro spettroscopia diviene pertanto sostanziale. Purtroppo la misura simultanea di particelle cariche e neutroni non è semplice, data proprio la natura dell'interazione di quest'ultimi con la materia. Questo è infatti dovuto da una parte alla necessità di avere apparati per prodotti carichi, ma anche per raggi γ (spettroscopia gamma ad alta risoluzione) a grande angolo solido (4π), che possono costituire dei veri e propri diffusori per i neutroni al punto tale da far perdere l'informazione sull'energia e la direzione di provenienza a causa del multiplo scattering nel materiale circostante.

Poiché tuttavia la misura dei neutroni è ritenuta importante e complementare a quella dei prodotti carichi sono stati realizzati apparati dedicati allo studio dettagliato della spettroscopia neutronica (ad esempio DEMON a GANIL e RIPEN a LNL ed LNS), o che, se accoppiati a rivelatori per prodotti carichi, potessero almeno ricostruire l'informazione sulle molteplicità neutroniche in gioco (ad esempio NEUTRON BALL alla Texas A& M University). Nel primo caso i sistemi di rivelazione erano costituiti da una serie di scintillatori liquidi (fino a 100 celle nel caso di DEMON) posti ad angoli

e distanze opportuni rispetto al punto di interazione tali da poter ricostruire sia l'energia (tramite tempo di volo) che la direzione. La NEUTRON BALL è invece un esempio di rivelatore di grosso volume di scintillatore liquido a settori arricchito con Gadolinio che ha, come abbiamo visto, un'alta sezione d'urto di cattura. I neutroni vengono moderati nel liquido scintillatore fino ad un'energia tale che ne permette la cattura tramite il Gadolinio. In questo caso le informazioni di energia iniziale e direzione di incidenza del neutrone vengono perse, ma l'efficienza di rivelazione (conteggio) dei neutroni è molto alta.

Le tematiche più interessanti che possono essere studiate tramite i neutroni e che possono fornire informazioni complementari ai prodotti carichi sono quelle relative alla misura della dinamica delle reazioni, sia nella regione energetica vicina alla barriera coulombiana che alle energie di Fermi. Alle basse energie significa studiare, ad esempio, la dinamica e la competizione fra fusione-evaporazione, fusione-fissione in funzione del parametro di fissilità, del punto di Businaro-Gallone fino agli elementi superpesanti con $Z = 110$, derivando dalle molteplicità neutroniche di pre e post-scissione il tempo di fissione [15]. Un altro campo molto interessante, sempre relativo alla dinamica delle reazioni, riguarda lo studio dell'emissione di pre-equilibrio in sistemi formati tramite diverse asimmetrie di massa nel canale di ingresso [16]. I neutroni sono molto importanti in questo studio perché le loro molteplicità sono dominanti nei sistemi medio-pesanti, quindi portano importanti informazioni sulla perdita di energia del sistema composto caldo prima dell'equilibratura.

I neutroni sono anche importanti misure di cronologia dell'emissione di particelle ad energie basse ed intermedie dove l'informazione sull'estensione spazio-temporale della sorgente è una convoluzione che deve essere distinta tramite analisi dimensionali [17]. Per distinguere le possibili sorgenti multiple di emissione e le differenti scale temporali possono essere utilizzate funzioni di correlazione selezionate sulle velocità delle particelle o selezionate integrando sulla quantità di moto totale. Le correlazioni tra particelle non identiche danno molte informazioni sull'ordine di emissione delle particelle che sono sensibili ai dettagli del meccanismo di reazione. La comprensione della sequenza temporale di emissione di neutroni, protoni e particelle cariche contribuisce anche alla comprensione dell'interazione nucleare, della struttura della materia nucleare e dello studio di dettagli dell'equazione di stato nucleare (NEOS) come la dipendenza dalla densità dell'energia di simmetria.

In ogni caso, l'integrazione di sistemi di rivelazione neutra con i nuovi apparati di spettroscopia gamma (ad esempio AGATA) o di particelle/frammenti carichi (FAZIA) rimane un obiettivo interessante e da perseguire perché permetterebbe di avere sotto controllo nel medesimo esperimento tutti i parametri

rilevanti della reazione.

Fisica delle reazioni indotte da neutroni Con la sempre maggiore disponibilità di apparati capaci di fornire fasci di neutroni di alta intensità, è possibile ed interessante studiare la misura di sezioni d'urto neutroniche ad alta risoluzione energetica ed in un vasto intervallo di energie, di interesse per la fisica nucleare fondamentale, per l'Astrofisica Nucleare e per varie applicazioni legate in particolare a problemi energetici ed ambientali. Ad esempio possiamo indicare l'innovativa facility per tempi di volo di neutroni n_TOF, operativa al CERN [1]. In particolare, l'alto flusso ed il basso pulsamento del fascio consentono di ottenere valori estremamente accurati delle sezioni d'urto per neutroni sia su bersagli stabili che su bersagli radioattivi. Tali dati sono attualmente di estremo interesse:

- per l'Astrofisica Nucleare, in cui è essenziale la conoscenza di tali dati per i vari elementi che compaiono nella Nucleosintesi Stellare. Questo genere di processi porta alla sintesi dei nuclei pesanti ($A > 60$) per cattura di neutroni. La formazione di nuclei più pesanti del Ferro, infatti, avviene tramite l'assorbimento di neutroni da parte dei nuclei in condizioni molto particolari di temperatura e pressione. I processi rapidi hanno tempi di cattura molto brevi e questo porta alla formazione di nuclei pesanti ma dalla vita media altrettanto breve. Il loro decadimento li riporta nella valle di stabilità. Contesti esplosivi come l'esplosione di supernovae o gli X-ray bursts potrebbero essere il luogo adatto per lo sviluppo di questi processi, ma la conoscenza in questi campi è ancora limitata;
- nel campo degli studi di fattibilità e della progettazione di sistemi basati su acceleratori per la trasmutazione di scorie radioattive a lunga vita media e per la produzione di energia in reattori intrinsecamente sicuri;
- nel campo dell'adroterapia, nonché per una migliore comprensione degli effetti delle radiazioni e per la dosimetria neutronica ad alta energia, conoscenze rese sempre più necessarie dalle prospettive di applicazioni mediche ed industriali dei neutroni;

Lo sviluppo dei fasci radioattivi La figura 1.16 mostra la *carta dei nuclidi* che individua e classifica i nuclei in base al numero di protoni (Z) e di neutroni (N): i nuclei stabili sono rappresentati dalla regione che viene detta *valle di stabilità*; attorno a questa zona si trovano i nuclei prodotti artificialmente aggiungendo protoni o neutroni. Continuando ad aggiungere protoni si arriva ad un punto in cui la forza nucleare forte assume intensità trascurabili rispetto

alle repulsione coulombiana ed il nucleo diventa completamente instabile: si tratta dalla *drip-line* dei protoni. Aggiungendo neutroni, invece, la carica elettrica è sempre più schermata, ma la forza forte cala a causa della grande distanza tra i nucleoni ed i nuclei diventano comunque instabili (*drip-line* dei neutroni). Dalle drip-lines in poi viene a mancare un vero e proprio legame nucleare e i nucleoni in eccesso vengono emessi molto rapidamente per formare nuclei più leggeri ma più vicini alla valle di stabilità.

Un settore di intenso sviluppo per la fisica nucleare delle energie basse ed intermedie è quello che riguarda la produzione di fasci di ioni esotici (RIBs - *Radioactive Ion Beams*) da utilizzare per lo studio di reazioni e della struttura di sistemi nucleari lontani dalla valle di stabilità. L'utilizzo, infatti, di fasci di ioni stabili su bersagli costituiti anch'essi da nuclei stabili o comunque a vita media relativamente lunga, ha permesso di investigare una notevole regione della carta dei nuclidi, ma sostanzialmente solo attorno alla *valle di stabilità*.

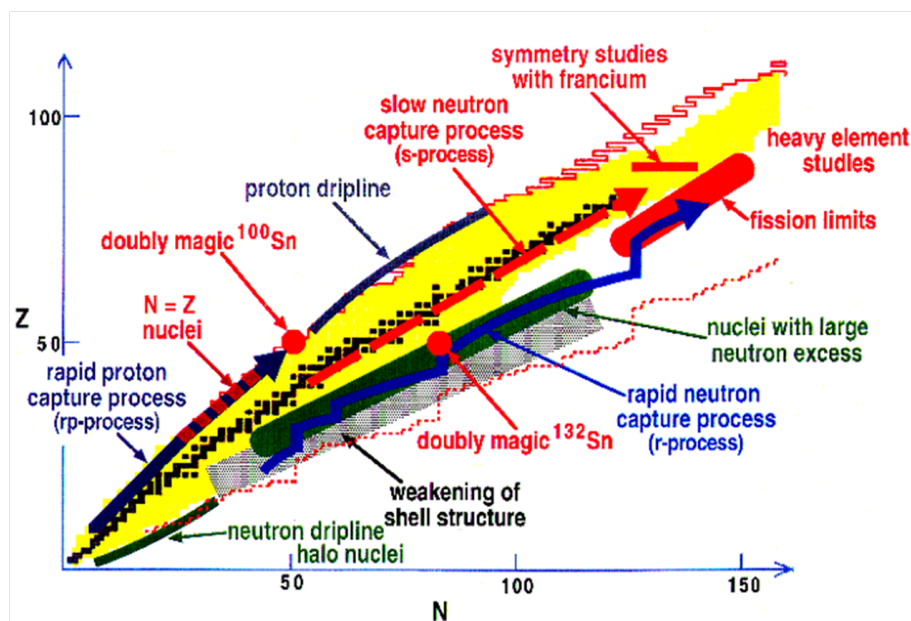


Figura 1.16: Diagramma nucleare, in nero la valle di stabilità.

La possibilità di produrre fasci di nuclei instabili, con intensità sufficienti da permettere lo studio di reazioni e la formazione di migliaia di specie nucleari instabili è quindi di notevole interesse, non solo per la Fisica Nucleare, ma anche perché può aprire nuove opportunità in diversi settori applicativi legati allo studio dei materiali, con applicazioni per l'industria e la medicina. Per quanto riguarda la Fisica Nucleare, lo studio di nuclei esotici ricchi di neutroni o di protoni, tali da raggiungere le drip-lines, possono portare ad in-

teressanti risultati legati a nuovi aspetti, fino ad ora ignoti, sia della struttura nucleare che della dinamica delle reazioni. Fra gli aspetti interessanti c'è fra l'altro la verifica del modello a shell nel passaggio fra nuclei conosciuti a nuclei esotici, mano a mano che si aggiungono neutroni. Il primo effetto è sicuramente legato all'energia di legame dei neutroni più esterni che diventa sempre più piccola tale da indurre il nucleo stesso a decadere principalmente per emissione di neutroni. Tali nuclei si trovano sulla drip line dei neutroni, che giace molto più lontana dalla valle di stabilità della linea corrispondente per protoni grazie all'assenza della repulsione Coulombiana. L'interesse nello studio dei nuclei molto ricchi di neutroni non è focalizzato solo alla ricerca della posizione di queste drip lines (che è nota solo fino a masse di circa 30 nucleoni) ma anche allo studio della dipendenza dalle densità della materia nucleare e dell'interazione effettiva nucleone-nucleone. Cambiamenti di questi parametri al variare del rapporto N/Z potrebbero portare ad evidenziare nuove simmetrie nella struttura nucleare e a misurare nuovi modi di eccitazione. Si prevede, ad esempio, la formazione di *nuclei a pelle di neutroni* in cui le shell più esterne potrebbero essere riempite principalmente da questo tipo di particelle, il corrispondente delle strutture con aloni nel caso di nuclei più leggeri. L'evoluzione delle proprietà della materia nucleare lungo la drip line neutronica dipende da come evolve la struttura a shell in funzione dell'eccesso di neutroni. Questa evoluzione ha conseguenze sulle proprietà dello stato fondamentale (spin, parità, momenti elettromagnetici...) e sui livelli di eccitazione sia di particella singola che collettivi. C'è molto interesse, ad esempio, per la struttura di nuclei oltre allo ^{132}Sn , doppiamente magico, perché potrebbe mostrare un'interessante evoluzione dei livelli di particella singola oltre la chiusura di shell ad $N = 82$. Uno strumento potente per studiare questi aspetti è fornito dalle reazioni di fusione e trasferimento di nucleoni. Il trasferimento di una particella permette non solo di determinare i livelli di particella singola, ma anche di studiarne i fattori spettroscopici e determinare così le probabilità di occupazione. L'identificazione anche di pochi livelli eccitati più bassi del normale potrebbe portare informazioni fondamentali sulla dinamica dei nucleoni nel mezzo nucleare, in particolare nelle transizioni in forma verso nuclei deformati.

Un altro aspetto riguarda l'equazione di stato nucleare: nonostante la grande quantità di studi esistenti, non è ancora possibile prevedere in modo realistico quali possano essere i limiti della stabilità nucleare o il comportamento di tale equazione a bassissime ed altissime densità barioniche.

Oltre a questi argomenti di fisica fondamentale, che rimangono la motivazione principale (e più affascinante), lo studio dei fasci radioattivi presenta anche sfide importanti dal punto di vista tecnologico ed applicativo. Fra le

altre sono di interesse: la produzione di acceleratori di nuova generazione (si veda il progetto EURISOL); lo sviluppo di tecniche di estrazione degli ioni esotici con buona efficienza; lo studio di materiali per i bersagli come i carburi di Uranio e lo sviluppo di soluzioni per il controllo delle radiazioni in ambienti ad alta attività.

1.5.1 Il progetto SPES

Le opportunità offerte dallo studio della fisica con fasci radioattivi sono viste con grande interesse dalla comunità scientifica mondiale. In ambito europeo viene discusso ormai da anni un ambizioso progetto per la costruzione di un acceleratore di nuova concezione per la produzione di fasci radioattivi di grande qualità ed intensità. Questa nuova *facility* prenderà il nome di EURISOL e sarà preceduta da impianti dalle capacità ridotte ma dalla fattibilità più immediata. Questi impianti, detti di *generazione intermedia*, saranno principalmente due: SPIRAL II presso i laboratori di GANIL (Francia) e SPES ai Laboratori Nazionali di Legnaro. Il progetto SPES (Selective Production of Exotic Species) vede coinvolte diverse sezioni dell'Istituto Nazionale di Fisica Nucleare, l'ENEA, e vari Dipartimenti dell'Università di Padova. A livello internazionale, oltre che con GANIL, sono state strette collaborazioni con il CERN ed i Laboratori di Oak Ridge luoghi in cui esistono già complessi acceleratori per la produzione di fasci radioattivi a più bassa intensità (rispettivamente SPIRAL, ISOLDE e HRIBF).

Dal punto di vista italiano è inoltre fondamentale la collaborazione con i LNS, che hanno esperienza in questo campo grazie ai progetti EXCYTE (ISOL per fasci radioattivi leggeri) e FRIBS (produzione per frammentazione) [18]. Il progetto SPES prevede la realizzazione di due entità indipendenti che, al bisogno, possono combinarsi per applicazioni particolari:

- un acceleratore per fasci radioattivi;
- una facility per la realizzazione di fasci di neutroni.

Analizziamo in dettaglio le due componenti

Produzione di fasci radioattivi Per la produzione di fasci radioattivi si è scelta la tecnica ISOL (Isotope Separation On-Line). Gli ioni radioattivi vengono prodotti facendo incidere un fascio primario di alta energia su un bersaglio di materiale fissile, tipicamente carburo di Uranio (UCx). Qui, in seguito a reazioni di vario genere (fissione, spallazione, frammentazione ecc.)

si formano gli isotopi radioattivi. Questi vengono successivamente separati, selezionati e riaccelerati fino alle sale sperimentali. L'intensità del fascio in uscita (I) sarà legata a quella del fascio primario (Φ) dal prodotto della sezione d'urto σ per le efficienze di ogni singolo passaggio ϵ_i :

$$I = \sigma \times \Phi \times N \times \epsilon_1 \times \epsilon_2 \times \epsilon_3 \quad (1.30)$$

dove N rappresenta lo spessore del target ed ϵ_1 è l'efficienza di rilascio del target, ϵ_2 quella di ionizzazione, ϵ_3 l'efficienza di estrazione. La figura 1.17 mostra schematicamente il processo.

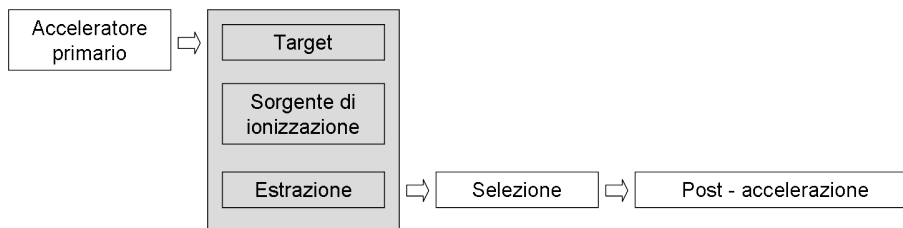


Figura 1.17: Il processo ISOL.

L'obiettivo di SPES è quello di produrre un fascio di nuclei radioattivi ricchi di neutroni con una resa massima di 10^{13} fissioni al secondo. Il metodo scelto consiste nel bombardare il bersaglio di UCx con una corrente di $200\mu A$ di protoni da $40 MeV$ di energia (potenza totale: $8 kW$). Per questo primo passaggio è stato scelto di installare come acceleratore un ciclotrone costruito da una ditta esterna³, capace di raggiungere $70 MeV$ di energia per fasci di protoni su due porte di uscita, per un massimo di $750 \mu A$ di corrente complessiva.

Per migliorare l'efficienza di estrazione degli isotopi prodotti è stato sviluppato presso i LNL un target sottile formato da sette dischi coassiali di $40 mm$ di diametro e $1 mm$ di spessore, questo permette un guadagno di un fattore 20 nel numero massimo di fissioni rispetto ai tradizionali sistemi a bersaglio diretto spesso (HRIBF). Lo sviluppo di questo bersaglio richiede notevoli accorgimenti perché è necessario un materiale resistente alle alte temperature di esercizio ($2000 ^\circ C$) che possa contemporaneamente essere posto in vuoto ad una pressione di $10^{-6} mbar$. Entrambi questi parametri sono necessari per agevolare l'estrazione degli ioni dalla zona di produzione. La figura 1.18 mostra uno schema del prototipo di bersaglio sottile a dischi di UCx realizzato [2].

³La IBA, che collabora con l'INFN.

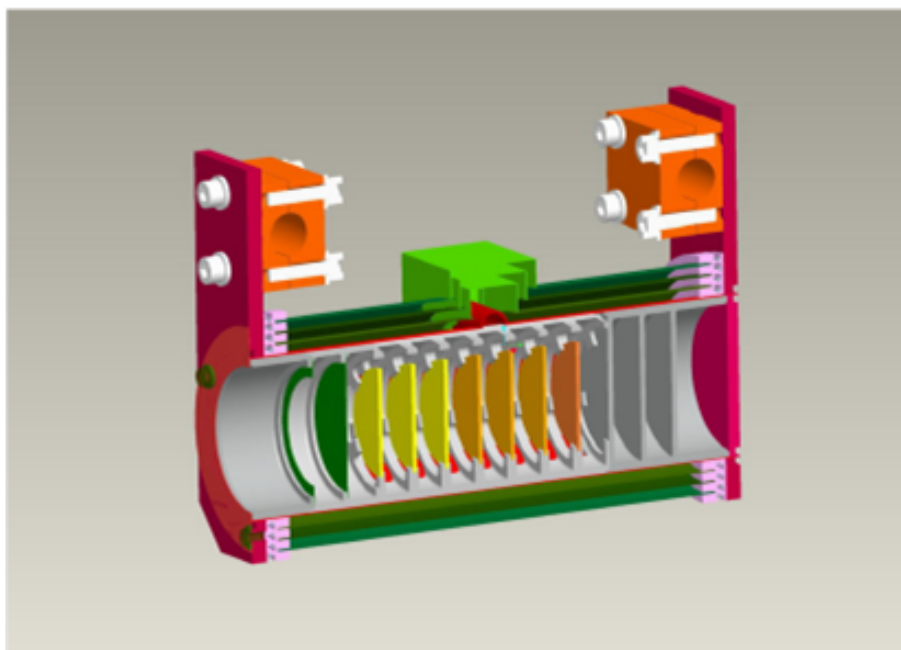


Figura 1.18: Vista 3D del target sottile realizzato per SPES.

Il processo di fissione nucleare porta alla produzione di nuclei radioattivi con massa tra 80 e 160 *amu*. A questo punto è necessario estrarre e ionizzare la specie esotica di interesse. I processi di estrazione e post accelerazione richiedono tempo, per questo motivo non sarà possibile estrarre isotopi di vita media inferiore a poche decine di millisecondi.

Il processo di estrazione avviene mediante la linea di trasferimento, all'interno della quale gli isotopi vengono anche ionizzati e preaccelerati da una differenza di potenziale di 60 *kV*. La ionizzazione può avvenire per interazione degli isotopi con una superficie calda (*hot cavity*) o per eccitazione da parte di una sorgente laser. Questo secondo metodo è molto più potente perché consente una attenta selezione in termini isotopici già a questo livello. La luce laser di opportune lunghezze d'onda (i.e. energie) viene proiettata all'interno della cavità di ionizzazione dove agisce eccitando (ionizzando) solamente le specie atomiche con la configurazione energetica selezionata.

A questo punto avviene la selezione definitiva della specie esotica richiesta tramite il passaggio attraverso un separatore elettromagnetico di massa ed un separatore isobarico, nei quali vengono intrappolati una grande quantità di contaminanti. Le risoluzioni dei dispositivi devono essere elevate per poter garantire una buona selezione isotopica ed isobarica. Per il primo è richiesto un valore di $\Delta M/M \simeq 1/300$, nel secondo $\Delta Z/Z \simeq 1/15000$. A questo punto il

fascio è pronto per essere accelerato all'energia desiderata ed inviato alle sale sperimentali. Il progetto SPES prevede di utilizzare come post-acceleratori gli impianti PIAVE ed ALPI, già esistenti, opportunamente adattati. L'iniezione in PIAVE è preceduta da un *charge-breeder*, che è un dispositivo per l'incremento dello stato di carica degli ioni esotici che arrivano dal selettore e devono poi essere riaccelerati da ALPI.

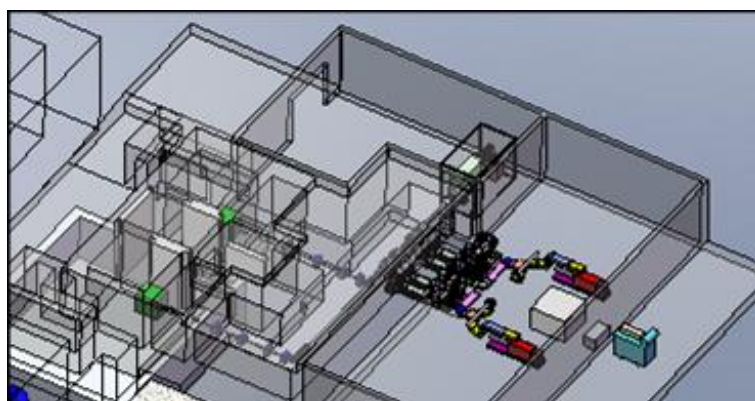


Figura 1.19: Schema della facility per neutroni del progetto SPES

Facility per neutroni Negli ultimi anni un rinnovato interesse per la fisica dei neutroni di bassa energia ha portato alla costruzione di vari impianti ed apparati sperimentali. La mancanza di dati in molti campi dell'astrofisica nucleare, della fisica applicata ai reattori e alla trasmutazione delle scorie radioattive ha portato alla realizzazione di nuove strutture in tutto il mondo (n_TOF al CERN, JPARC in Giappone, SNS e LENS negli Stati Uniti e varie altre). Il progetto SPES ha lo scopo di sviluppare due sistemi di produzione di fasci di neutroni basati su un acceleratore lineare di protoni, per realizzare sorgenti di neutroni ad alta intensità (10^{14} n/s). Il primo sistema è inteso ottenere un flusso di neutroni termici di 10^9 n/cm²s per la *Boron Neutron Capture Therapy* (BNCT), una tecnica medica per cure tumorali [19]; il secondo per ottenere un flusso di neutroni veloci e/o epitermici nell'ambito del progetto LENOS (*LEgnaro NeutrOn Source*) dedicato a studi di sezioni d'urto per l'astrofisica e la Fisica Nucleare e a studi di fisica applicata (specialmente nell'ambito dei materiali).

La produzione di neutroni avviene, nel primo caso, facendo incidere un fascio di protoni di alta intensità (35 mA) e di energia pari a 5 MeV su un convertitore di Berillio, nel secondo caso, in alternativa, tramite una tecnica innovativa con degradazione del fascio di protoni da 5 MeV e conversione

finale su target di Litio [20]. Il fascio primario sarà ottenuto tramite un acceleratore lineare ad alta intensità costituito da una sorgente ECR (*TRIPS*) che inietta protoni in un sistema di trasporto a bassa energia (LEBT - *Low Energy Beam Transport*), il quale funge da driver per l'acceleratore vero e proprio a radiofrequenza (RFQ) dove i protoni raggiungono la loro energia massima; infine il fascio viene trasportato (MEBT - *Medium Energy Beam Transport*) verso uno dei due bersagli, convertitori dove vengono prodotti i neutroni.

Una possibile estensione del sistema RIBs-Sorgenti di neutroni prevede di utilizzare il ciclotrone precedentemente descritto per la produzione dei fasci radioattivi, anche come iniettore di protoni per la produzione di fasci di neutroni. Questo porterebbe alla produzione di fasci di neutroni di alta energia ma con intensità più bassa rispetto al caso descritto in precedenza.

Il progetto della facility SPES prevede l'integrazione delle nuove strutture con i laboratori e gli apparati già esistenti, come mostrato in figura 1.20.

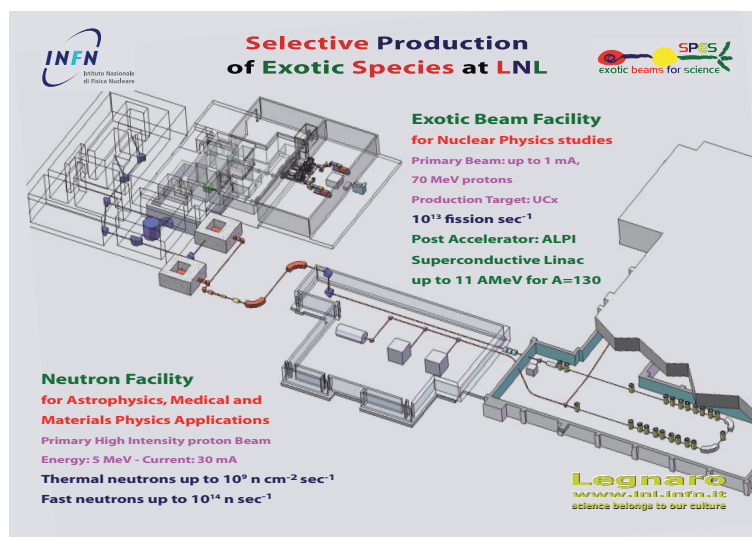


Figura 1.20: Schema del progetto per la facility SPES

Da quanto detto negli ultimi paragrafi appare evidente la necessità di sviluppare rivelatori per neutroni affidabili, precisi e a basso costo sia per l'utilizzo come strumenti di misura in reazioni nucleari, sia in un'ampia classe di applicazioni di contorno. Queste vanno dai monitor ambientali di radiazioni alla diagnostica dei fasci prodotti nelle facilities per fasci radioattivi. Con la possibile estensione agli impianti di uso civile come le centrali nucleari o alcune particolari applicazioni mediche.

Capitolo 2

Scintillatori Organici

Nel capitolo precedente è stato sottolineato più volte che l'interesse di questo lavoro è rivolto allo studio di materiali scintillanti da applicare al campo della rivelazione dei neutroni. Per occuparsi di un aspetto così specifico è necessario approfondire i meccanismi generali della scintillazione: bisogna conoscere a fondo le proprietà del materiale che si vuole utilizzare per ottimizzare le sue prestazioni e garantirne i risultati specialmente in termini di efficienza ed affidabilità.

I rivelatori a scintillazione sono strumenti molto usati in diversi campi della fisica sperimentale. Il loro funzionamento si basa sul fenomeno della *luminescenza*. Il processo base può essere schematizzato nel modo seguente: il passaggio di radiazione attraverso un materiale scintillante causa la ionizzazione di alcuni suoi atomi (o molecole) e la formazione di stati eccitati a breve vita media. Il loro decadimento produce la cosiddetta luce di scintillazione che viene raccolta e convertita in impulsi elettrici da un apposito apparato. Di conseguenza un rivelatore a scintillazione è composto da due elementi principali: un **materiale scintillante** ed un **fotorivelatore**. Per favorire l'accoppiamento ottico tra i due si utilizzano spesso delle **guide di luce** (tipicamente fibre ottiche).

Si distinguono scintillatori *organici* ed *inorganici*, differenti nella composizione chimica e nei meccanismi di assorbimento e riemissione della radiazione. Mentre gli inorganici sono principalmente solidi cristallini, gli scintillatori organici possono essere anche composti liquidi, gassosi o formati da particolari polimeri quali gomme o siliconi. Come fotorivelatori, a seconda delle necessità, si utilizzano dei fotomoltiplicatori o dei fotodiodi. Le molte tipologie di scintillatori esistenti permettono di coniugare al meglio le singole necessità ed il tipo di strumentazione utilizzata.

In generale, si vuole che uno scintillatore abbia le seguenti caratteristiche:

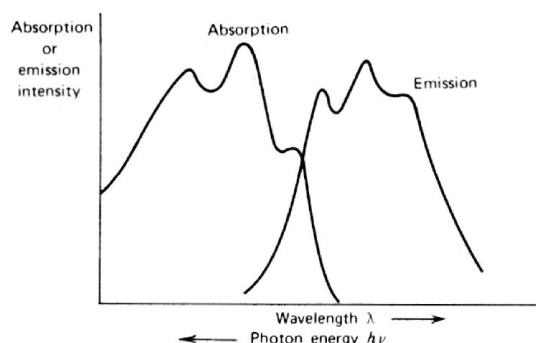


Figura 2.1: Sovrapposizione tra gli spettri di emissione e di assorbimento. Tanto più il materiale è trasparente alla luce prodotta, tanto migliore sarà la resa finale.

- Elevata **efficienza di scintillazione**, che si traduce in un'alta **resa di luce**, ovvero nella capacità di convertire in luce la maggior parte dell'energia assorbita.
- Proporzionalità lineare tra energia assorbita e luce prodotta, in modo da poter calibrare con più precisione possibile lo strumento.
- Trasparenza alla luce prodotta (i.e. poca sovrapposizione tra gli spettri di assorbimento ed emissione, vedi fig. 2.1).
- Buona qualità ottica nell'accoppiamento con i fotorivelatori (e con le guide di luce, se presenti). In particolare è importante che gli indici di rifrazione dei materiali adiacenti siano molto simili per minimizzare gli effetti rifrattivi.
- Buona sovrapposizione tra lo spettro di emissione del materiale e l'intervallo di sensibilità del fotorivelatore (vedi par. 2.9).
- Tempi rapidi di decadimento degli stati eccitati che permettano di produrre segnali veloci. (vedi par. 2.5).

Il tutto per ottenere e rivelare il massimo numero di fotoni possibile.

Si può osservare che il materiale scintillante utilizzato gioca un ruolo fondamentale nel determinare la qualità dello strumento ed è per questo che la ricerca in materia è attiva ancora oggi.

In questo lavoro ci occuperemo della caratterizzazione dei materiali silicici in fase di studio in collaborazione con l'esperimento ORIONE dell'INFN il

cui scopo è la realizzazione di scintillatori organici solidi in grado di rivelare anche neutroni termici. Le soluzioni commerciali disponibili sono costituite principalmente da scintillatori liquidi quali il BC501 della St. Gobain [13] e altri; il loro utilizzo presenta svantaggi notevoli in quanto tossici, corrosivi, infiammabili ed inquinanti per cui sia il loro contenimento che lo smaltimento richiedono particolari attenzioni. Si sta cercando di sviluppare un materiale solido che riproduca le caratteristiche di efficienza degli scintillatori commerciali più diffusi (ad esempio il noto NE102 o lo stesso BC501) con la capacità aggiuntiva di rivelare i neutroni termici. La matrice scelta è di tipo silicico: l'utilizzo di gomme polimeriche permette una grande flessibilità nella conformazione geometrica ed un relativo contenimento dei costi ed inoltre si dovrebbero ridurre la tossicità e l'inquinamento prodotto al livello di un comune silicone. Torneremo sui dettagli di questi materiali nel capitolo 3, per ora ci limitiamo a ripercorrere velocemente i principali meccanismi che portano alla scintillazione dei materiali organici.

2.1 Struttura energetica dei materiali organici

Nei materiali organici il fenomeno della luminescenza coinvolge la struttura energetica delle molecole, rendendo indipendente il processo dallo stato fisico del composto. Ad esempio l'Antracene emette luce sia sotto forma di solido policristallino che come gas oppure come soluto in composti a due o più componenti; questo rende possibile la realizzazione di scintillatori organici sia solidi che liquidi o gassosi. Quanto detto contrasta con la necessità dei materiali inorganici di avere una struttura reticolare ben precisa. È la struttura energetica degli *Orbitali Molecolari* a determinare le caratteristiche di assorbimento della radiazione e di emissione luminosa. Un orbitale molecolare è un orbitale esteso a due o più atomi uniti da un legame covalente. Lo si può visualizzare come il prodotto della sovrapposizione di due orbitali atomici. Quando gli orbitali atomici giacciono lungo la congiungente i due nuclei, l'orbitale molecolare prende il nome di σ [21], mentre se gli stessi sono distribuiti perpendicolarmente alla congiungente si forma un orbitale molecolare detto orbitale π (vedi fig.2.2).

Nel caso di gruppi aromatici, come il benzene, gli orbitali π si sovrappongono permettendo la delocalizzazione degli elettroni lungo tutto il gruppo come mostrato in figura 2.3. Questa struttura delocalizzata presenta una sequenza di stati eccitati ad energie relativamente basse che danno luogo al fenomeno della luminescenza con emissione di radiazione in un intervallo compreso fra il vicino ultravioletto e il vicino infrarosso.

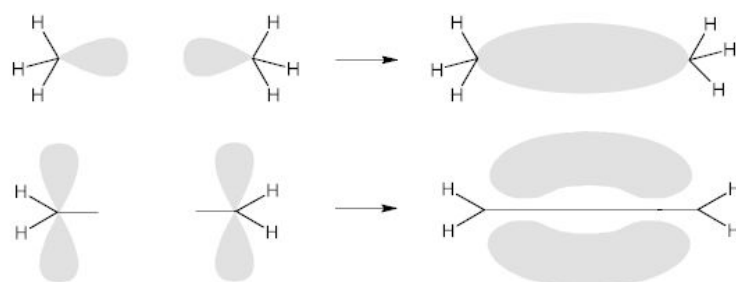


Figura 2.2: Orbitali σ e π [21].

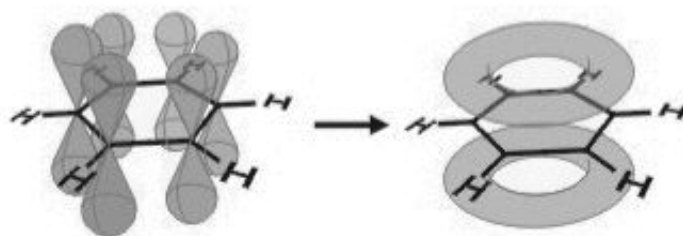


Figura 2.3: Orbitali delocalizzati del benzene [21].

La schema 2.4 mostra la possibile struttura energetica di un composto organico con orbitali di tipo π . Si osservano una sequenza di stati di singoletto S_1 , S_2 , S_3 (e superiori) con energie E_1 , E_2 , E_3 fino ad arrivare all'energia di ionizzazione degli elettroni dell'orbitale π (ad energia I_π).

Valori tipici sono dell'ordine di $1,5 - 4 \text{ eV}$. I sottolivelli energetici sono dati dai gradi di libertà vibrazionali atomici e sono distanziati da 1 a 16 meV . Questi vengono spesso denotati con un secondo suffisso, ad esempio S_{00} , S_{01} per lo stato fondamentale.

Si nota anche una sequenza di stati di Tripletto, ognuno dei quali ha un'energia più bassa del corrispondente singoletto. Nonostante la transizione dallo stato fondamentale a quelli di tripletto ($T_0 - T_1$ ecc.) sia proibita per conservazione dello spin totale, è possibile accedervi in altre maniere che vedremo in seguito. Spesso ad energie superiori di E_3 si trovano i livelli eccitati degli orbitali σ che confondono l'osservazione spettrometrica dei livelli π ad energie elevate.

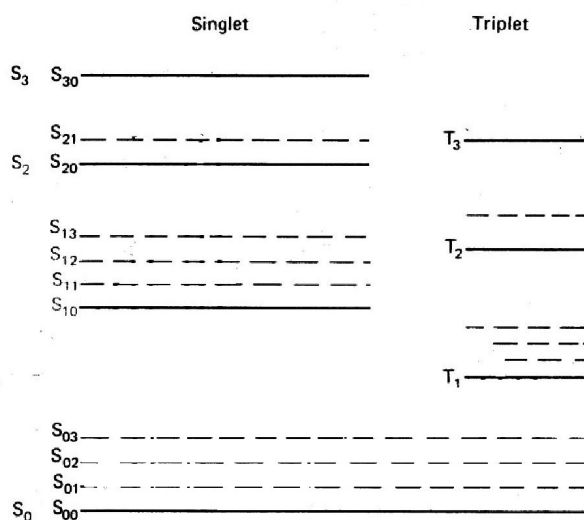


Figura 2.4: Livelli energetici molecolari.

2.2 Meccanismi di scintillazione

Il diagramma di Perrin-Jablonski (fig. 2.5) è molto utile per visualizzare e riassumere le possibili transizioni (radiative e non) tra i vari stati elettronici: *assorbimento di fotoni*, *conversione interna*, *fluorescenza*, *inter system crossing*, *fosforescenza*, *fluorescenza ritardata* (afterglow), e *transizioni tripletto-tripletto*.

Quello che avviene all'interno del materiale attraversato dalla radiazione ionizzante è stato descritto da Birks [22] in varie occasioni e faremo riferimento al suo lavoro per quanto riguarda la schematizzazione e la nomenclatura. Bisogna notare che i tempi caratteristici di assorbimento sono molto piccoli ($\simeq 10^{-15}$ s) rispetto ai processi di diseccitazione, di conseguenza possiamo considerare i due processi indipendenti tra loro e, in accordo con il Principio di Franck-Condon¹, privi di contaminazioni tra diversi nuclei.

Le frecce verticali corrispondenti all'assorbimento partono dal livello vibrazionale più basso dello stato fondamentale (S_0) perché la maggior parte delle

¹Il principio di Franck-Condon parte dall'osservazione del fatto che i tempi caratteristici di assorbimento sono almeno tre ordini di grandezza più rapidi di quelli di agitazione termica delle molecole; per questo motivo si può affermare che le transizioni elettroniche hanno un'elevata probabilità di avvenire senza spostamento delle posizioni dei nuclei nelle molecole. La conseguenza è che le transizioni disegnate in figura 2.5 con delle frecce verticali si hanno da uno stato ben definito ad un altro, senza altri passaggi.

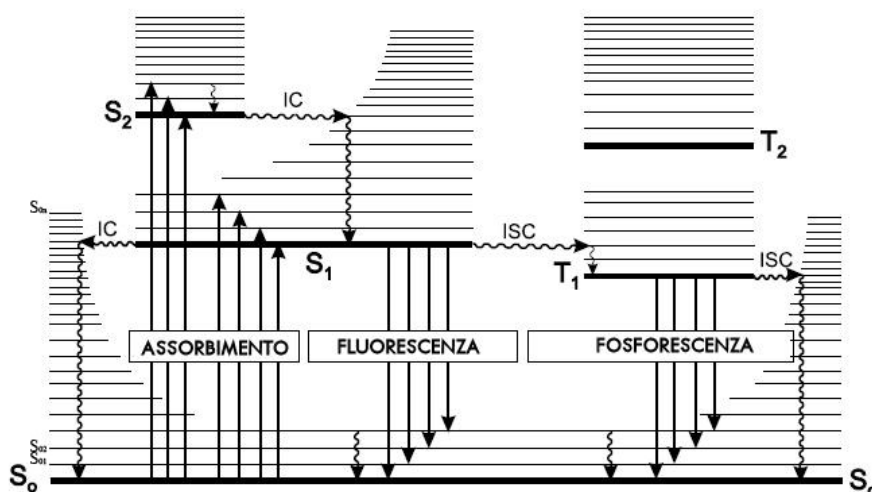


Figura 2.5: Diagramma di Perrin-Jablonski. Mostra i possibili processi di eccitazione e diseccitazione di una molecola organica. I livelli di singoletto sono indicati con S_x , mentre quelli di tripletto con T_x . Le strutture più fini sono i sottolivelli vibrazionali delle molecole.

molecole si trova in questa situazione a temperatura ambiente. L'assorbimento di un fotone può portare una molecola in uno dei livelli eccitati S_1, S_2, \dots e al successivo decadimento secondo uno dei meccanismi che illustreremo nel paragrafo 2.2.2.

Si possono quindi distinguere due fasi principali:

- Il processo primario ovvero il trasferimento di energia dalla particella al materiale.
- Il processo secondario che porta dalla conversione interna dell'energia all'emissione luminosa.

Analizziamo con ordine questi due aspetti.

2.2.1 Processi primari

Focalizziamo la discussione sui meccanismi di scintillazione in soluzioni a due o tre componenti che, come vedremo nel prossimo capitolo, sono quelle di nostro interesse: avremo a che fare con composti binari o ternari di cui indichiamo con X il solvente e con Y o $Y+Z$ i soluti. Data l'usuale abbondanza relativa del solvente rispetto ai soluti, si può ipotizzare che sia proprio questa componente ad assorbire l'energia persa dalla particella. Di conseguenza il

processo sarà simile per soluzioni ad una, due o più componenti. Consideriamo, per esempio, un elettrone incidente con un'energia di 1 MeV. I processi primari possibili nella molecola X sono:

- I Eccitazione degli orbitali π in stati di singoletto;
- II Ionizzazione degli orbitali π ;
- III Eccitazione di orbitali interni (elettroni σ ed 1s del C);
- IV Ionizzazione di orbitali interni (Raggi δ).

L'eccitazione degli elettroni π in stati di singoletto è l'origine principale dell'emissione veloce, le altre tre possibilità danno luogo ad emissioni più lente, mentre gli stati di tripletto non sono eccitati direttamente perché le transizioni ottiche dallo stato fondamentale (S_{0X}) sono proibite. Tuttavia la ricombinazione ionica conseguente al processo II porta le molecole principalmente in stati eccitati di tripletto (75%) e per questo, come vedremo in seguito, l'emissione associata è necessariamente più lenta: solo un 12% del restante 25% contribuisce effettivamente alla fluorescenza.

L'energia di eccitazione di stati elettronici non π , processo III, è dissipata termicamente e non produce fluorescenza.

La ionizzazione vera e propria porta ad un temporaneo danneggiamento della struttura molecolare, che può diventare permanente se non avviene una ricombinazione con gli ioni circostanti. Le zone danneggiate in modo permanente si trasformano in centri di impurità dove la luminescenza è fortemente inibita e causano invecchiamento del materiale. Le zone a danneggiamento temporaneo sono probabilmente responsabili degli effetti di *quenching* da ionizzazione osservati in seguito all'esposizione dei materiali alla radiazione.

Una certa frazione P dell'energia incidente viene spesa nell'eccitazione degli elettroni π del materiale, con conseguente emissione luminosa (processo I); la restante frazione $(1-P)$ verrà rilasciata tramite i processi dissipativi II, III e IV. L'efficienza primaria di eccitazione P è un parametro importante perché la sua grandezza influenza l'efficienza assoluta di scintillazione (spesso indicata con S).

L'eccitazione dei livelli π delle molecole del solvente X porta principalmente a popolare il secondo ed il terzo livello di singoletto perché questi hanno le probabilità più alte di transizione. L'energia media di eccitazione primaria sarà dunque data da:

$$E_{ex} = \frac{h \int \epsilon_x(\nu) \nu d\nu}{\int \epsilon_x(\nu) d\nu} \quad (2.1)$$

dove ϵ_ν è il coefficiente di estinzione molare alla frequenza ν e gli integrali sono calcolati su tutto lo spettro di assorbimento. Dall'analisi di un tipico spettro di assorbimento di uno scintillatore organico si osserva che $E_{ex} \simeq 1,5 E_{1x}$ sembra essere una stima ragionevole del rapporto tra l'energia media di eccitazione e quella del primo stato eccitato E_{1x} . Riassumendo, nel processo primario, una frazione P dell'energia incidente è spesa per eccitare direttamente gli stati di singoletto π della molecola X ad un'energia media E_{ex} , di questa una frazione sarà convertita in luce di fluorescenza tramite una sequenza di processi secondari con un'efficienza complessiva Q , così **l'efficienza assoluta di scintillazione** sarà:

$$S = PQ \quad (2.2)$$

2.2.2 Processi secondari

Esaminiamo ora i possibili meccanismi di diseccitazione.

Conversione Interna La conversione interna è una transizione non radiativa tra due stati elettronici con la stessa molteplicità di spin (i.e. tra diversi stati di singoletto o di tripletto), può avvenire ad esempio, tra lo stato S_{20} ed un sottolivello S_{1X} della stessa energia. Nelle soluzioni questo processo è seguito da un rilassamento verso il livello vibrazionale più basso dello stato elettronico di arrivo; l'energia vibrazionale dissipata viene trasferita, tramite collisioni, dalla molecola eccitata alle molecole del solvente. I tempi caratteristici di questi processi variano da 10^{-13} a 10^{-11} secondi.

La conversione interna verso lo stato fondamentale (ad esempio da S_1 a S_0) è possibile ma molto meno efficiente rispetto a quelle tra i diversi stati eccitati a causa dell'elevata differenza in energia; a questo livello si entra in forte competizione con altri importanti processi come la fosforescenza e la fluorescenza. Questo processo è classificato da Birks come numero "V" ed è la chiave di accesso per i diversi meccanismi di diseccitazione successivi.

Fluorescenza Si tratta della causa principale di emissione di luce, è associata alla transizione $S_1 \rightarrow S_0$. Si deve sottolineare che, escludendo poche eccezioni², l'emissione di fluorescenza avviene sempre dallo stato S_1 per cui le sue caratteristiche non dipendono dalla reale energia di eccitazione. Le transizioni $0 \rightarrow 1$ ed $1 \rightarrow 0$ corrispondenti all'assorbimento ed emissione di

²In alcune sostanze particolari si possono avere emissioni dirette da S_2 o simultaneamente da S_1 e S_2

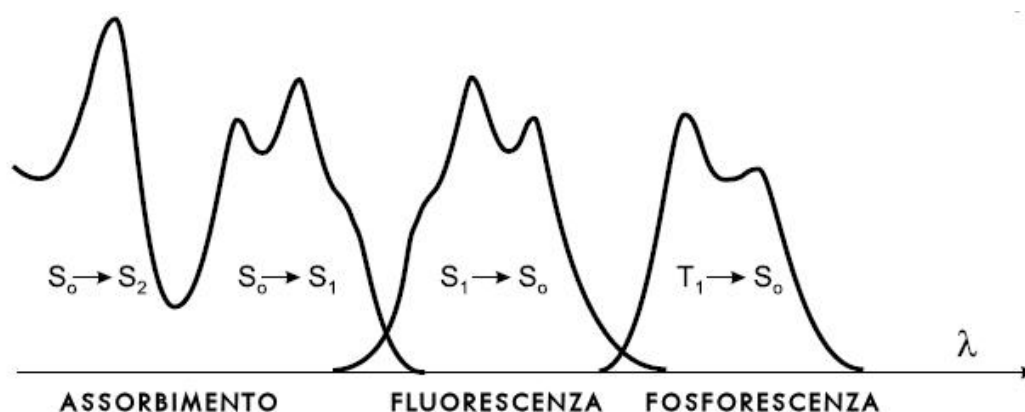


Figura 2.6: Posizioni relative degli spettri di assorbimento, fluorescenza e fosforescenza. La simmetria gli spettri di assorbimento e di fosforescenza è detta *mirror imaging rule*.

energia del primo stato eccitato dovrebbero quindi essere identiche, tuttavia lo spettro di assorbimento si trova ad energie maggiori (lunghezze d'onda minori) rispetto a quello di emissione, questo è dovuto alla presenza dei livelli vibrazionali nei due stati elettronici. Secondo quanto affermato dalla "regola di Stokes" (un'osservazione empirica precedente al diagramma di Perrin-Jablonski), la lunghezza d'onda dell'emissione di fluorescenza deve essere sempre maggiore di quella del corrispondente assorbimento. Tuttavia nella maggior parte dei casi lo spettro di assorbimento si sovrappone parzialmente a quello di fluorescenza, ciò significa che una frazione della luce emessa ha una lunghezza d'onda più piccola della corrispondente riga di assorbimento. Questa osservazione sembra essere in contrasto con il principio di conservazione dell'energia, tuttavia la differenza è compensata (come osservato da Einstein per la prima volta) dal fatto che a temperatura ambiente alcune molecole si trovano nei livelli vibrazionali eccitati dello stato fondamentale, cioè ad un'energia (anche se poco) maggiore di quella del livello fondamentale puro per cui la differenza tra l'energia assorbita e quella rimmessa è positiva solo in modo apparente. La popolazione di questi livelli è in accordo con la legge di Boltzmann:

$$\frac{N_1}{N_0} = e^{-(E_1 - E_0)/kT} \quad (2.3)$$

A basse temperature questa deviazione dalla legge di Stokes cala fino ad annullarsi. In generale, le differenze tra i livelli vibrazionali sono simili nello stato fondamentale e negli stati elettronici eccitati, in questo modo lo spettro

di fluorescenza risulta spesso molto simile a quello di assorbimento (fig.2.6) ribaltato in energia ("mirror imaging rule", la transizione da S_{00} ad S_{1x} più alti corrisponde alla transizione S_{10} S_{0x} più alti: la forma rimane ma la differenza in energia è speculare). La differenza tra il massimo dello spettro di assorbimento ed il massimo di quello di emissione per fluorescenza viene detto Stokes Shift (fig. 2.7) e si riassume come la differenza energetica tra assorbimento ed emissione dovuta alla sotto-struttura vibrazionale dei livelli energetici elettronici molecolari.

Si deve notare che l'emissione di un fotone è veloce quanto l'assorbimento ($\simeq 10^{-15}$ s), tuttavia le molecole eccitate rimangono nello stato S_1 per un intervallo di tempo che varia da poche decine di picosecondi ad alcune centinaia di nanosecondi, in funzione del tipo di molecola e di materiale, prima di emettere un fotone o subire un qualsiasi processo di diseccitazione. Per questo motivo, dopo un tempo brevissimo di assorbimento della radiazione, l'intensità di emissione luminosa per fluorescenza subisce un decadimento esponenziale con un tempo caratteristico che riflette la vita media degli stati popolati:

$$I = I_0 e^{-t/\tau} \quad (2.4)$$

L'ordine di grandezza di questi tempi varia da 10^{-10} a 10^{-7} secondi.

Intersystem Crossing e processi successivi Un terzo possibile meccanismo di diseccitazione riguarda la transizione energetica tra stati a molteplicità differenti (i.e. tra stati S_{XX} e stati T_{XX}), questo processo viene detto "intersystem crossing", ovvero attraversamento trasversale del sistema energetico. Si tratta di una transizione non radiativa tra due livelli vibrazionali isoenergetici che appartengono, come detto, a stati con differenti molteplicità di spin. Per esempio una molecola eccitata nel livello 0 dello stato S_1 si può trasferire nel livello isoenergetico n-esimo dello stato di tripletto T_n e successivamente può avere luogo il caratteristico rilassamento vibrazionale che porta nello stato T_{10} . Da qui possono avere luogo i processi di diseccitazione tipici di questo livello che discuteremo nei prossimi paragrafi.

Questo meccanismo può essere sufficientemente veloce ($10^{-7} - 10^{-9}$ s) da competere con altri processi come la fluorescenza e la conversione interna, tuttavia porta a stati in cui l'emissione è molto più lenta per cui la distinzione è identificabile a posteriori. Il passaggio tra stati di molteplicità differente sarebbe teoricamente proibito, tuttavia l'accoppiamento spin-orbita³ (l'ac-

³Le transizioni tra stati a differenti molteplicità di spin sono proibite, i.e. le transizioni singoletto-singoletto e tripletto-tripletto sono consentite mentre quelle tripletto-singoletto e

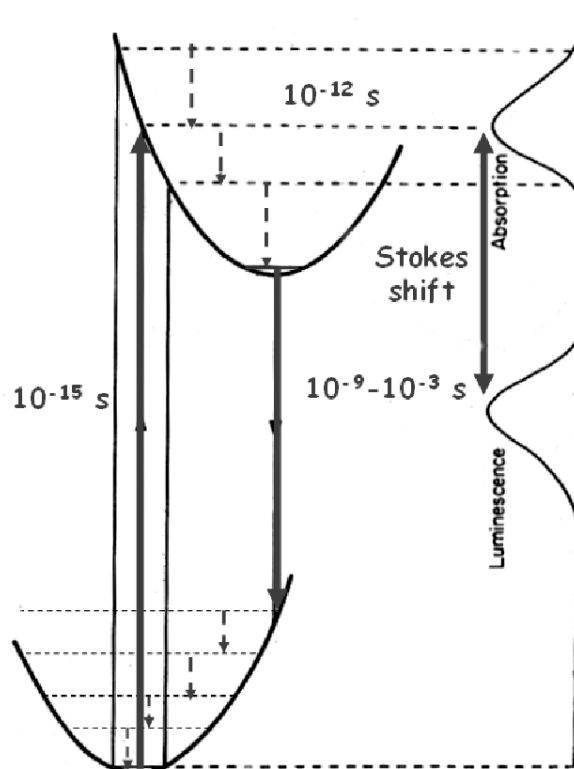


Figura 2.7: Lo Stokes Shift.

coppiamento tra il momento magnetico orbitale e quello di spin) può essere sufficientemente largo da renderlo possibile. La probabilità di transizione dipende dalle caratteristiche degli stati coinvolti.

Fosforescenza e diseccitazione non radiativa I processi di rilassamento dagli stati di tripletto sono principalmente due: la fosforescenza e la diseccitazione non radiativa. La fosforescenza è un'emissione di luce a lunghezze d'onda maggiori della fluorescenza. Il secondo processo, invece, non prevede l'emissione di luce e domina nelle soluzioni a temperature ordinarie perché ancora una volta il passaggio $T_1 \rightarrow S_0$ è proibito a meno di una bassa percentuale dovuta all'accoppiamento spin-orbita. Avendo a disposizione tempi lunghi cresce la probabilità di collisione delle molecole eccitate con le

singoleto-tripletto sono proibite. Tuttavia c'è sempre una piccola probabilità che le funzioni d'onda interagiscano tramite l'accoppiamento spin-orbita. Come risultato si ha che una funzione d'onda di singoletto (tripletto) contiene sempre una piccola frazione di una di tripletto (singoletto). Questo porta ad una piccola ma non trascurabile probabilità di transizione tra gli stati. Questa proprietà si manifesta nell'intersystem crossing.

molecole circostanti. Questo significa che vengono favoriti i meccanismi di intersystem-crossing ed il rilassamento vibrazionale, cioè la diseccitazione non radiativa (termica). Al contrario, per i materiali solidi o a basse temperature, si osserva anche la fosforescenza ovvero l'emissione radiativa dallo stato di tripletto T_{10} , ad energia minore del corrispondente stato di singoletto (S_{10}).

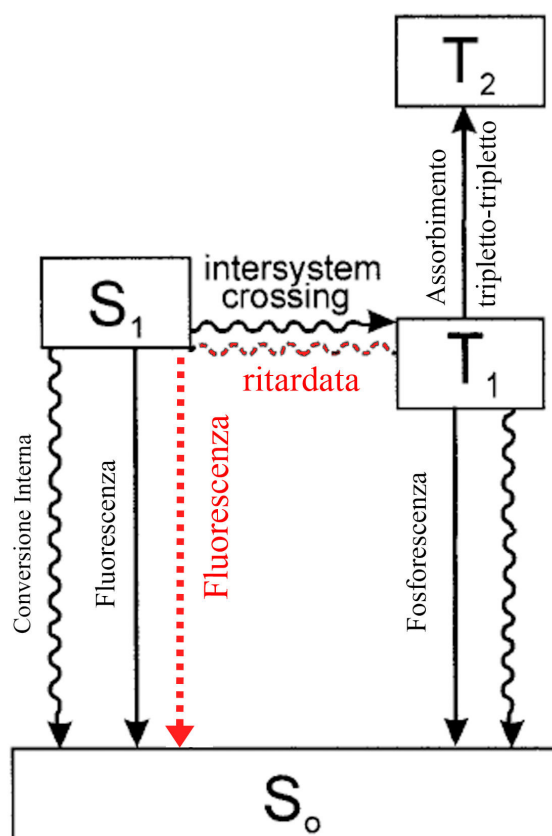


Figura 2.8: Schema riassuntivo dei processi illustrati. In rosso è evidenziato il meccanismo della fluorescenza ritardata.

Fluorescenza ritardata Questo processo è dovuto al fenomeno dell'intersystem crossing inverso. E' possibile che il sistema, in seguito all'attraversamento dallo stato S_1 allo stato T_0 , assorba un'energia sufficiente per ritornare allo stato iniziale S_1 e da qui decada tramite emissione di fluorescenza. Ovviamente i tempi caratteristici sono di gran lunga maggiori rispetto alla semplice emissione di fluorescenza, ecco perché si parla di fluorescenza ritardata. L'apporto energetico necessario deve necessariamente provenire dall'esterno,

ci sono principalmente due modi perché questo avvenga: l'attivazione termica e l'annichilazione tripletto-tripletto.

Nel primo caso l'energia viene fornita dall'agitazione termica delle molecole, infatti l'effetto è più rilevante al crescere della temperatura. Si parla di fluorescenza ritardata di tipo "E" perché fu osservata inizialmente nell'Eosina ma è anche frequente nei fullereni. Negli idrocarburi aromatici non è un effetto importante a causa della grande differenza energetica tra i livelli S_1 e T_1 .

Il secondo caso è frequente nelle soluzioni ad alta densità: dove le molecole sono molto vicine, la probabilità di urto aumenta, così come la possibilità che in una collisione tra due molecole di tipo T_1 , una delle due assorba energia sufficiente a tornare nello stato S_1 mentre l'altra decade nel fondamentale. Questa annichilazione tripletto-tripletto porta così alla fluorescenza ritardata di tipo "P" ed è chiamata così perché fu osservata inizialmente nel Pirene. I tempi di decadimento della fluorescenza ritardata sono dell'ordine di metà della vita media degli stati di tripletto e l'intensità ha una dipendenza caratteristica quadratica rispetto all'intensità della radiazione incidente.

Transizioni tripletto-tripletto Siccome i tempi di decadimento degli stati di tripletto sono elevati può accadere che uno stato eccitato assorba un fotone e si porti in un livello energetico più alto, popolando altri livelli energetici di tripletto o le sottostrutture vibrazionali il cui decadimento è molto lento.

Tempi caratteristici dei processi illustrati	
assorbimento	10^{-15} s
rilassamento vibrazionale	$10^{-12} - 10^{-10}$ s
vita media dello stato eccitato S_1	$10^{-10} - 10^{-7}$ s → fluorescenza
intersystem crossing	$10^{-10} - 10^{-8}$ s
conversione interna	$10^{-11} - 10^{-9}$ s
vita media dello stato eccitato T_1	$10^{-6} - 1$ s → fosforescenza

Tabella 2.1: Schema riassuntivo con i tempi caratteristici dei processi illustrati.

Dal nostro punto di vista, che è quello di costruire dei rivelatori veloci e precisi, tutti i meccanismi illustrati che si discostano dalla semplice emissione di fluorescenza rappresentano fattori di *quenching*. Andando ad intaccare l'effettiva resa di luce del materiale e causando la dispersione di una parte dell'energia in agitazione termica costituiscono la prima fonte di inefficienza del rivelatore. Ovviamente non è possibile eliminare del tutto questi processi perché sono meccanismi strettamente legati alla struttura dei materiali, la ricerca consiste nell'individuare dei materiali ad alta efficienza di scintillazione,

in cui la componente di fluorescenza predomina sulle altre. Gli strumenti principali a disposizione sono la conoscenza della struttura energetica dei materiali e la misura sperimentale delle rese di luce.

2.3 Soluzioni a due e tre componenti

Fino ad ora abbiamo considerato solamente gli effetti della radiazione sul solvente X , trascurando l'eccitazione delle molecole del soluto (Y o Z a seconda del tipo di sistema) a causa della loro bassa concentrazione.

Ora vogliamo descrivere i fenomeni che coinvolgono i soluti: indichiamo con $[Y]$ e $[Z]$ le loro concentrazioni (frazioni molari) per soluzioni a due o tre componenti e con k_f , k_i , k_t (s^{-1}) e gli indici opportuni le frequenze relative ai processi di fluorescenza, conversione interna e di trasferimento.

Indichiamo con a_{xx} , a_{xy} e $(1 - a_{xx} - a_{xy})$ rispettivamente le frazioni di luce di fluorescenza emessa dal solvente, assorbita dal soluto Y e che esce dalla soluzione. Questi coefficienti possono essere stimati per via teorica secondo le formule introdotte da Birks [22].

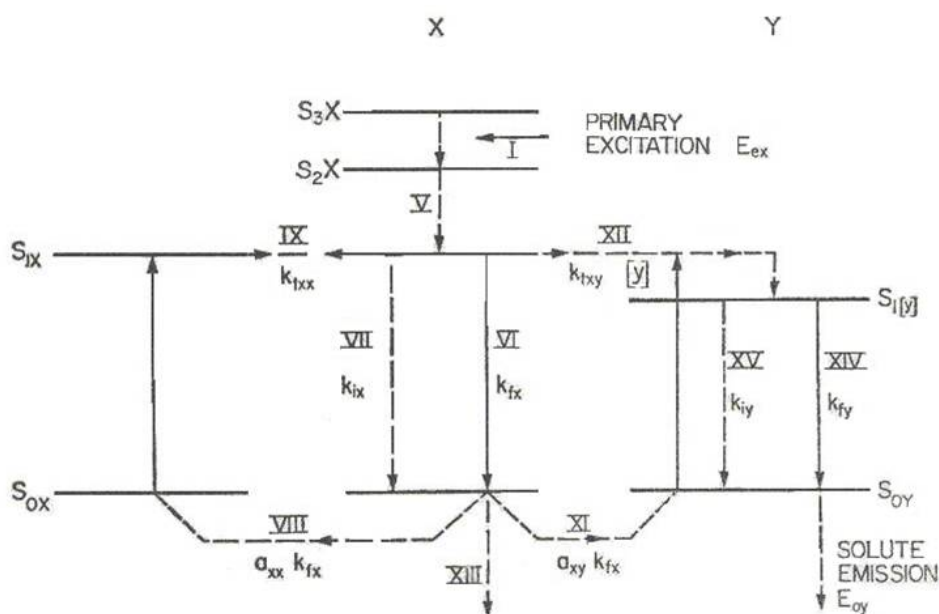


Figura 2.9: Meccanismi di trasferimento di energia e diseccitazione per soluzioni a due componenti.

Le figure 2.9 e 2.11 mostrano i processi in gioco per soluzioni a due e tre componenti. Rispettando la classificazione originale di Birks, i processi

menzionati fino ad ora e numerati I-V portano all'eccitazione delle molecole di tipo X con un'energia media E_{1x} ; i processi successivi per soluzioni a due componenti saranno:

VI Emissione di fluorescenza della molecola X che porta ai meccanismi 8,9 o 13;

VII assorbimento interno (quenching) k_{ix} ;

VIII migrazione radiativa ad un'altra molecola X ($a_{xx}k_{fx}$);

IX migrazione non radiativa verso un'altra molecola X (k_{xx});

XI ⁴ trasferimento radiativo verso una molecola Y ($a_{xy}k_{fx}$)

XII trasferimento non radiativo verso una molecola Y ($k_{txy}[Y]$);

XIII uscita della luce emessa del solvente ($(1 - a_{xx} - a_{xy})k_{fx}$).

I due processi di trasferimento dell'energia contraddistinti come VIII e IX sono importanti perché accrescono la mobilità dell'energia di eccitazione del solvente, cioè contribuiscono a migliorare l'efficienza di trasferimento dell'energia dei processi XI e XII.

Come avvenga il trasporto di questa energia dipende fondamentalmente dal tipo di solvente: in un cristallo si ha diffusione di eccitoni; nei liquidi avviene probabilmente una combinazione tra le risonanze delle interazioni solvente-solvente e la diffusione termica delle molecole stesse. Nei materiali plastici si hanno risonanze tra segmenti della stessa catena polimerica.

L'importanza relativa dei trasferimenti radiativi di energia dipende dal rapporto tra i valori a_{xx} e k_{fx} , ovvero tra la probabilità di autoassorbimento e di trasferimento della radiazione ad altre molecole del solvente. Nei liquidi k_{fx} è solitamente trascurabile rispetto a k_{ix} ed è per questo motivo che l'efficienza quantica di fluorescenza dei liquidi puri è solitamente dell'ordine di 0,05 o meno. Nelle materie plastiche l'autoassorbimento a_{xx} è solitamente basso, così l'efficienza quantica può diventare anche dell'ordine di 0,2 e la migrazione radiativa (processo ristretto alle molecole della stessa specie) può essere trascurata. In questa approssimazione ($a_{xx}k_{fx} = 0$), l'efficienza quantica di fluorescenza di un sistema binario è ridotta rispetto a quella di un sistema singolo ($[Y] = 0$) dal valore:

$$(q_{0x})_0 = \frac{k_{fx}}{k_{fx} + k_{ix}} \quad (2.5)$$

⁴Per evitare di rendere ambigua la notazione della molecola X , non esiste un processo denominato "X"

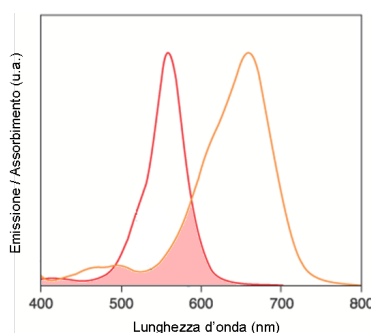


Figura 2.10: Sovrapposizione tra spettri di emissione e di assorbimento.

al valore:

$$q_{0x} = \frac{k_{fx}}{k_{fx} + k_{ix} + k_{txy}[Y]} \quad (2.6)$$

da questa si possono definire l'**efficienza tecnica** di trasferimento radiativo (processo XI):

$$f_{rxy} = a_{xy}q_{0x} \quad (2.7)$$

e non radiativo:

$$f_{txy} = \frac{k_{txy}[Y]}{k_{fx} + k_{ix} + k_{txy}[Y]} \quad (2.8)$$

per ottenere una valutazione dell'**efficienza quantica** totale del trasferimento dell'energia di eccitazione dal solvente al soluto Y si deve scrivere:

$$f_{xy} = f_{rxy} + f_{txy} = \frac{a_{xy}(q_{0x})_0 + \sigma_{xy}[Y]}{1 + \sigma_{xy}[Y]} \quad (2.9)$$

dove

$$\sigma_{xy} = \frac{k_{txy}}{k_{fx} + k_{ix}} \quad (2.10)$$

descrive la competizione tra i processi di trasferimento dell'energia e l'emissione o il quenching di E_{1x}

Nelle soluzioni binarie le molecole Y sono scelte in modo tale per cui l'energia del loro primo stato di singoletto πE_{1y} sia minore di E_{1x} ovvero che il loro spettro di assorbimento sia almeno parzialmente sovrapposto a quello a quello di emissione per fluorescenza di X (fig. 2.10). In questo modo l'energia di fluorescenza emessa dal solvente viene catturata dal soluto

che si porta in una configurazione eccitata. L'energia vibrazionale in eccesso viene rapidamente dissipata in modo termico. Si ottiene così una molecola Y eccitata con energia E_{1y} nello stato S_{1y} . Se l'autoassorbimento è trascurabile $a_{yy} = 0$ i processi di emissione di rilassamento possibili sono essenzialmente due:

XIV Emissione primaria della molecola Y (k_{fy});

XV Quenching interno (k_{iy}).

Analogamente a prima si può definire l'efficienza quantica di fluorescenza:

$$(q_{0y})_0 = \frac{k_{fy}}{k_{fy} + k_{iy}} \quad (2.11)$$

che deve essere ridotta per i fattori di quenching (interazioni dissipative tra molecole) e diventa:

$$(q_{0y}) = \frac{k_{fy}}{k_{fy} + k_{iy} + k_{cy}[Y]} \quad (2.12)$$

La fluorescenza emessa avrà un'energia media calcolabile come per il solvente X (2.1) ma integrando sullo spettro di emissione della molecola Y :

$$E_{py} = \frac{h \int I_y(\nu) d\nu}{\int I_y(\nu) d\nu} \quad (2.13)$$

Possiamo finalmente valutare l'efficienza totale del processo secondario per soluzioni a due componenti:

$$Q_y = \frac{E_{py}}{E_{ex}} f_{xy} q_{0y} = C \frac{E_{py}}{E_{1x}} f_{xy} q_{0y}. \quad (2.14)$$

Queste conoscenze sono fondamentali nelle applicazioni: è pratica comune utilizzare soluzioni a più componenti per massimizzare la resa dello scintillatore. Capita spesso che l'emissione di fluorescenza primaria (quella del solvente) sia in una regione dello spettro elettromagnetico poco compatibile con la sensibilità dei fotorivelatori, ecco perché nasce la necessità di introdurre uno o più soluti (Y, Z, \dots) che agiscano da *wavelength-shifters*. Il loro compito è di assorbire la luce emessa per scintillazione e di riemetterla ad una lunghezza d'onda diversa. Come abbiamo visto, agendo in questo modo si introducono delle perdite di energia e per questo è bene limitare il più possibile il numero di passaggi. Tuttavia il guadagno in termini di accoppiamento con il fotorivelatore può essere tale da giustificare la presenza di uno o due soluti (detti anche *dyes*).

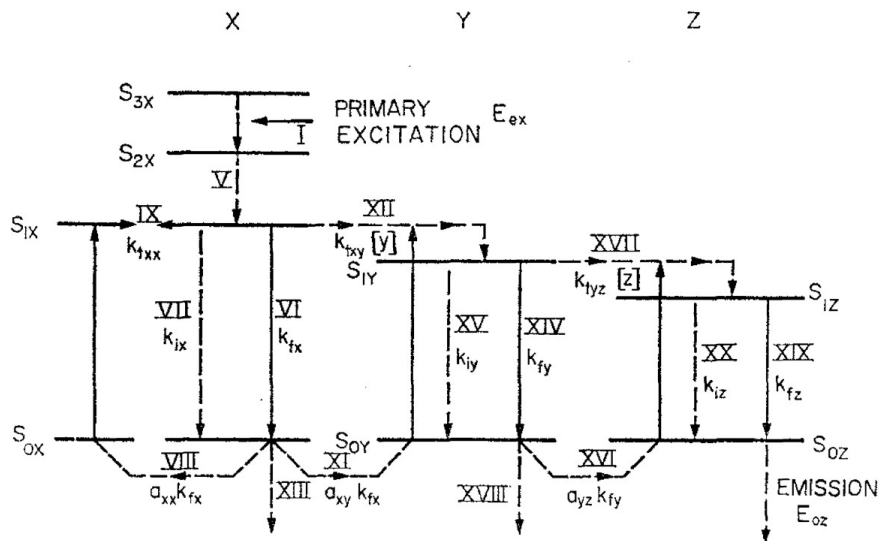


Figura 2.11: Meccanismi di trasferimento di energia e diseccitazione per soluzioni a tre componenti.

L'estensione della valutazione semi-empirica delle efficienze di Birks alle soluzioni trifase esula dai nostri scopi illustrativi. Ci limitiamo a notare che si tratta di un semplice ampliamento del caso precedente con la complicazione di dover considerare le possibili emissioni dirette di ogni componente ed i trasferimenti interni $X \rightarrow Y$ e $Y \rightarrow Z$. Analogamente a quanto detto prima si giunge a valutare l'efficienza complessiva del processo secondario:

$$Q_z = C \frac{E_{pz}}{E_{1z}} f_{xy} f_{yz} q_{0z} \quad (2.15)$$

dove il significato dei simboli è analogo al caso precedente.

2.4 Valutazione Sperimentale dell'efficienza di scintillazione

Torniamo per un momento a considerare il parametro S introdotto nell'equazione 2.2. Vogliamo valutare l'efficienza collettiva di scintillazione per sistemi ad una, due e tre componenti. Tenendo presente la definizione 2.2, si

può dedurre che nel caso di un sistema monocomponente come un cristallo puro (X), l'efficienza assoluta di scintillazione vale:

$$S_x = PC \frac{E_{px}}{E_{1x}} q_{px} \quad (2.16)$$

per un sistema a due componenti ($X + Y$):

$$S_y = PC \frac{E_{py}}{E_{1x}} f_{xy} q_{0y} \quad (2.17)$$

infine, nel caso di tre componenti ($X + Y + Z$):

$$S_z = PC \frac{E_{pz}}{E_{1x}} f_{xy} f_{yz} q_{0z}. \quad (2.18)$$

Una grandezza più interessante dal punto di vista della rivelazione della luce di scintillazione è il Numero di Fotoni per MeV di energia di un elettrone incidente. Per sistemi singoli:

$$\mathcal{N}_x = \frac{PC}{E_{1x}} q_{px} \times 10^6 \quad (2.19)$$

per sistemi binari o ternari:

$$\mathcal{N}_y = \frac{PC}{E_{1x}} f_{xy} q_{0y} \times 10^6 \quad (2.20)$$

$$\mathcal{N}_z = \frac{PC}{E_{1x}} f_{xy} f_{yz} q_{0z} \times 10^6 \quad (2.21)$$

dove E_{1x} è in elettronVolt.

2.5 Risposta degli scintillatori in funzione del tipo di radiazione

Nei paragrafi precedenti ci siamo limitati a considerare l'esempio di un elettrone incidente con energia di 1 MeV sul materiale scintillante. In questo caso, la bassa perdita di energia specifica (dE/dx) causa ionizzazioni ed eccitazioni molecolari molto distanti tra loro lungo la direzione di cammino della particella, quindi le interazioni tra questi centri di eccitazione possono essere trascurate. Sotto queste condizioni la risposta dello scintillatore L (cioè l'energia emessa per fluorescenza) è proporzionale all'energia persa dalla particella nel materiale:

$$L = SE \leftrightarrow \frac{dL}{dx} = S \frac{dE}{dx} \quad (2.22)$$

dove S è l'efficienza assoluta di scintillazione introdotta nel paragrafo precedente, dE/dx è la perdita di energia specifica nel materiale (per particelle massive cariche si può calcolare con la formula di Bethe-Block) e dL/dx è detta *fluorescenza specifica*.

Per molti scintillatori organici solidi e liquidi si osserva una risposta lineare per elettroni di bassa energia. Come esempio, la figura 2.12 mostra le rese di luce a basse energie per protoni ed elettroni. L'andamento è abbastanza lineare e si nota come la resa di luce dei protoni rimanga sistematicamente inferiore rispetto a quella degli elettroni.

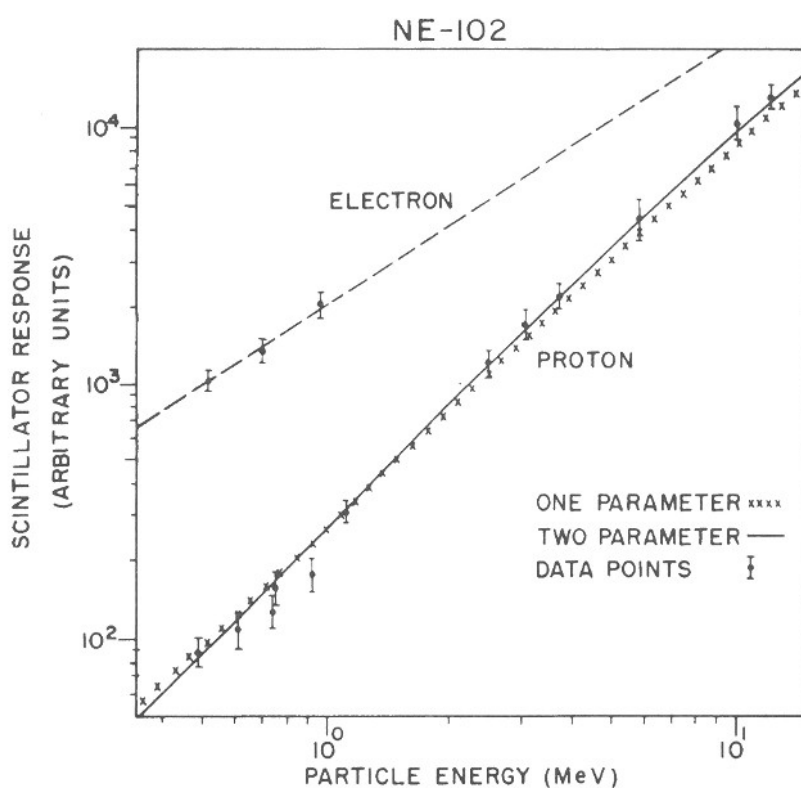


Figura 2.12: Resa di luce per uno scintillatore plastico commerciale (NE102). La resa dei protoni è sistematicamente inferiore a quella degli elettroni

Invece per gli ioni pesanti la risposta a bassa energia non è lineare [23] e a questo proposito è necessario tenere presente che in caso di elevata densità di ionizzazione i fattori di quenching diventano importanti perché intervengono i processi di danneggiamento delle molecole e di autoassorbimento dell'energia descritti in precedenza. Se ipotizziamo che la densità delle molecole danneggiate sia direttamente proporzionale alla densità di ionizzazione $B dE/dx$

e che una frazione k di queste molecole dia luogo a quenching, possiamo correggere l'equazione 2.22 ed ottenere la nota *formula di Birks*:

$$\frac{dL}{dx} = \frac{S \frac{dE}{dx}}{1 + kB \frac{dE}{dx}} \quad (2.23)$$

La formula 2.23 deve essere considerata come un approccio empirico al problema della resa di luce. Nella pratica, infatti, il parametro kB viene determinato sperimentalmente a partire da misure con fasci di particelle note ad energia nota. Laddove i dati ottenuti non siano compatibili con la formula, sono state proposte varianti più o meno complesse che hanno permesso di caratterizzare un gran numero di materiali organici. Il caso più semplice prevede di introdurre un termine quadratico nella perdita di energia ed una costante C che consentono di riprodurre la formula originale per basse energie, introducendo un fattore correttivo ad energie maggiori:

$$\frac{dL}{dx} = \frac{S \frac{dE}{dx}}{1 + kB \frac{dE}{dx} + C \left(\frac{dE}{dx}\right)^2} \quad (2.24)$$

2.6 Quenching

Il quenching descrive l'effetto del calo della resa di luce di uno scintillatore a causa di alcuni parametri quali temperatura, energia della radiazione incidente, impurità, concentrazione delle molecole... Nella precedente descrizione dei processi abbiamo incontrato numerosi meccanismi che possono causare inefficienze di vario tipo, ora vogliamo riassumerli e catalogarli:

Auto Quenching Con questo termine si indicano i processi di autoassorbimento che avvengono nelle miscele a due o più componenti. La resa di luce effettiva dipende fortemente dalla concentrazione dei costituenti (come si evince dalla formula 2.12); in molti materiali organici si ha una crescita con la concentrazione del primo fluoroforo⁵ per poi raggiungere un livello di saturazione.

Quenching da impurità Alcuni tipi di materiali sono molto sensibili alle piccole impurità che possono contenere. Questo non si traduce solo in un abbassamento della resa di luce, ma anche nella modifica delle proprietà ottiche (indice di rifrazione ecc.) del materiale stesso. L'elevata purezza

⁵Il termine fluoroforo viene utilizzato per indicare un elemento drogante che assorbe l'energia emessa per fluorescenza e la riemette a diversa lunghezza d'onda.

richiesta per gli elementi utilizzati nella sintesi di materiali così delicati si riflette spesso nei costi di fabbricazione.

Quenching termico Il calo della resa di luce all'aumentare della temperatura viene definito quenching termico. I materiali organici sono particolarmente sensibili a forti variazioni di temperatura che possono portare all'incremento degli effetti di ricombinazione termica degli stati eccitati e di allargamento dei livelli vibrazionali, tuttavia solo pochi materiali mostrano forti variazioni alle temperature normali di utilizzo.

Quenching da saturazione L'uscita di luce dipende in modo non lineare dall'energia depositata dalla radiazione incidente, il rilascio di una elevata densità di energia può portare alla saturazione. Questo significa che il rilascio di ulteriore energia non si riflette in una maggiore resa di luce.

Proprietà meccaniche La vulnerabilità meccanica agli agenti atmosferici rende molti scintillatori organici particolarmente sensibili e delicati. Per esempio si possono avere variazioni delle proprietà ottiche delle soluzioni liquide in funzione della temperatura.

Un altro fattore importante è che i solidi devono essere sottoposti a tagli e abrasioni per la pulizia superficiale, questi trattamenti possono causare danni alla struttura interna ("crack") se questa non è sufficientemente resistente alle sollecitazioni meccaniche.

2.7 Risposta temporale

Assumendo che l'assorbimento dell'energia incidente e la formazione degli stati luminescenti siano istantanei ed ipotizzando di misurare solo la luce di fluorescenza immediata si può pensare che il profilo temporale della luce emessa sia composto da un fronte di salita molto veloce, seguito da un semplice decadimento esponenziale (si veda anche il par. 2.2.2). Tuttavia questo è un modello un po' troppo approssimativo: è necessario tenere conto dei tempi di necessari a popolare gli stati luminescenti e delle componenti di emissione più lente quali la fluorescenza ritardata e la fosforescenza. Tipicamente sono necessari tempi dell'ordine di mezzo nanosecondo per popolare i livelli da cui ha poi luogo la fosforescenza; per scintillatori molto veloci il tempo di decadimento da questi livelli è solo tre o quattro volte maggiore, quindi una descrizione completa non può trascurare nessuna delle due componenti.

Si assume che anche la popolazione dei livelli avvenga secondo una legge esponenziale, così la forma globale dell'impulso luminoso assume la forma:

$$I = I_0 (e^{-t/\tau} - e^{-t/\tau_1}) \quad (2.25)$$

dove τ_1 è la costante di tempo che descrive la popolazione dei livelli energetici e τ è la costante che ne descrive il decadimento.

Studi più complessi sulla risposta di luce hanno portato a modificare la 2.25 aggiungendo un termine gaussiano per caratterizzare la prima fase del processo, ne risulta una forma del tipo:

$$I = I_0 f(t) e^{-t/\tau} \quad (2.26)$$

dove $f(t)$ rappresenta una gaussiana di larghezza σ_{ET} . Questo valore viene spesso utilizzato per caratterizzare la velocità di risposta dello scintillatore. Per la maggior parte delle applicazioni si preferiscono materiali dalla risposta veloce, le motivazioni sono varie e se ne è già ampiamente discusso, tuttavia esiste almeno un caso in cui è richiesta la presenza di una componente lenta. Si tratta dei rivelatori di tipo *phoswich*, dove due o tre scintillatori vengono sistemati in serie e letti dallo stesso fotorivelatore. La discriminazione dei segnali (e quindi l'identificazione delle particelle) è fatta tramite l'analisi della forma del segnale in uscita. Questa distinzione è possibile se i vari rivelatori hanno risposte diverse in termini temporali. Per questo sono stati sviluppati materiali organici dall'emissione lenta (con costanti di decadimento dell'ordine di 200 ns) da associare ad altri molto più veloci.

2.8 Forma del segnale

Nella maggior parte degli scintillatori organici la componente di fosforescenza rappresenta la frazione maggiore dell'uscita di luce totale; tuttavia si osserva spesso anche la crescita di una componente più lenta corrispondente all'emissione da fluorescenza ritardata 2.2.2.

La curva risultante può essere tranquillamente descritta dalla somma di due esponenziali chiamate componenti *lenta* e *veloce* della luce di scintillazione. Il rapporto tra le due costanti di decadimento è quasi sempre elevato: si parla di pochi nanosecondi per la prima contro diverse centinaia della seconda. Siccome la maggior parte della luce appartiene alla componente veloce, la parte lenta del segnale sarebbe trascurabile se non fosse per una fondamentale proprietà: *la frazione di luce che costituisce la componente lenta del segnale è fortemente legata alla natura della particella incidente*. Questo consente l'applicazione di tecniche di analisi dei segnali per favorire la discriminazione

delle particelle. Alcuni scintillatori organici, tra cui i cristalli contenenti stilbene, sono molto adatti a questo tipo di misura perché le componenti lenta e veloce di emissione presentano delle differenze in funzione del tipo di particella incidente. La figura 2.13 mostra le differenze osservate nello stilbene per particelle alfa, neutroni e fotoni di alta energia.

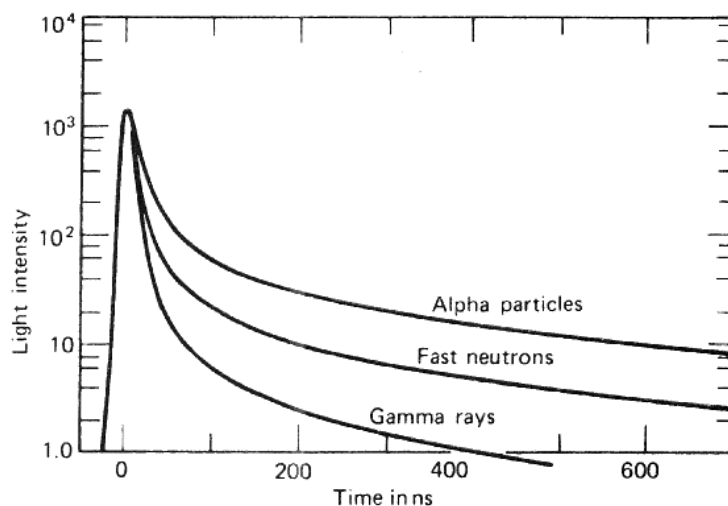


Figura 2.13: La dipendenza degli impulsi di scintillazione nello stilbene in funzione del tipo di particella incidente. La normalizzazione è in intensità al tempo zero.

2.9 Rivelazione della luce prodotta

La luce prodotta dal materiale scintillante deve essere raccolta e trasformata in impulsi elettrici trattabili elettronicamente. A questo proposito esistono vari tipi di fotorivelatori. Come si è detto in precedenza, in molte applicazioni è necessario interporre un dispositivo per la raccolta e la guida della luce verso il fotorivelatore. Queste *guide di luce* sono molto utili specialmente se non è possibile accoppiare direttamente il rivelatore per ragioni geometriche o di spazio. Si deve porre anche molta attenzione all'accoppiamento tra i due elementi:

1. lo spettro di emissione del materiale scintillante deve essere il più possibile centrato nell'intervallo di sensibilità del rivelatore;
2. le varie componenti a contatto tra loro devono avere indici di rifrazione il più simile possibile;

3. per massimizzare l'accoppiamento si utilizzano delle colle ottiche che aderiscono alle superfici, massimizzando la trasmissione.

Viste le dimensioni geometriche e la buona adesione alla finestra del fotomoltiplicatore dei campioni oggetto di questo lavoro non si sono resi necessari né l'uso di guide di luce, né quello di colle ottiche. Per questo motivo non ci soffermiamo sulla descrizione di questi elementi.

I fotorivelatori si dividono principalmente in due categorie: i fotomoltiplicatori ed i fotodiodi. Un fotomoltiplicatore è un dispositivo di conversione della luce in impulsi elettrici i cui elementi base sono illustrati in figura 2.14. Questi consistono in un catodo rivestito di materiale fotosensibile (fotocatodo) seguito da un sistema di raccolta ed amplificazione degli elettroni; alla fine si trova l'anodo dal quale viene prelevato il segnale. Tra catodo e anodo esiste una differenza di potenziale costante (valori tipici sono di qualche migliaio di Volt).

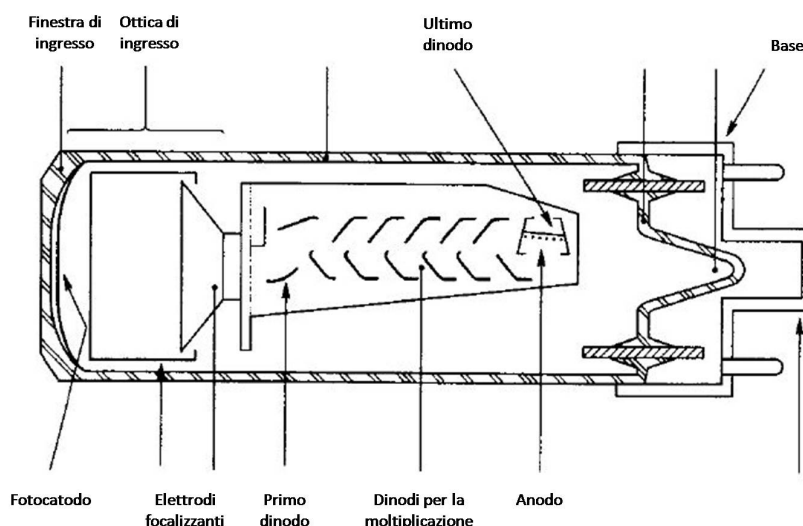


Figura 2.14: I componenti principali di un fotomoltiplicatore.

I fotoni incidono sul fotocatodo e, rilasciando la loro energia, liberano per effetto fotoelettrico un certo numero di elettroni. Questi avranno un'energia proporzionale a quella dei fotoni incidenti secondo la legge di Einstein:

$$E = h\nu - \phi \quad (2.27)$$

da cui risulta chiaro che esiste una soglia di rivelazione data dal lavoro di estrazione ϕ . Questo valore dipende dal tipo di materiale utilizzato per

realizzare il fotocatodo e su questo parametro si gioca gran parte della sensibilità dello strumento. Sopra la soglia di estrazione, tuttavia, la probabilità di emissione di un elettrone dal fotocatodo è tutt'altro che massima: il processo è mediato da un fattore detto *efficienza quantica* del fotomoltiplicatore che associa ad ogni lunghezza d'onda della luce incidente la probabilità di emissione di un fotoelettrone:

$$\eta(\lambda) = \frac{\text{numero di fotoelettroni liberati}}{\text{numero di fotoni incidenti sul catodo}(\lambda)} \quad (2.28)$$

come si può vedere figura 2.15, valori tipici sono dell'ordine del 20 – 30%.

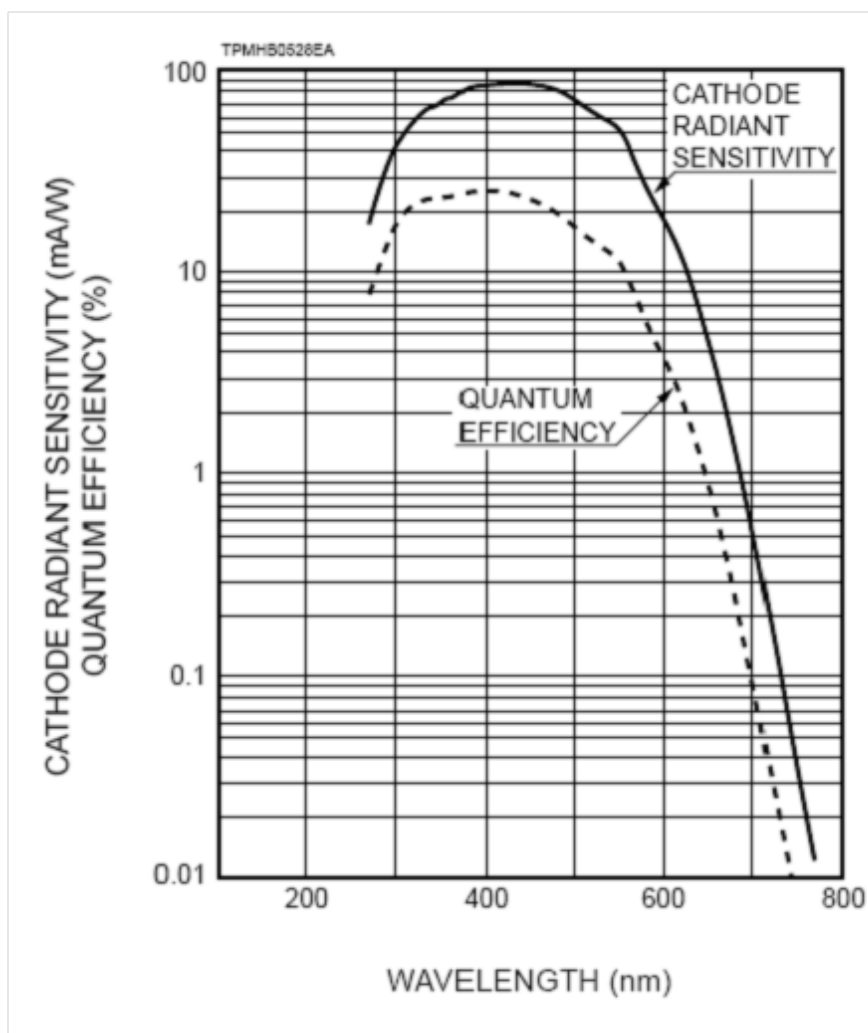


Figura 2.15: Risposta del fotomoltiplicatore Hamamatsu H6524 in funzione della lunghezza d'onda.

Questi elettroni hanno energie di pochi eV e non sono sufficienti a generare un impulso elettrico. Per questo motivo vengono accelerati e focalizzati verso uno stadio di amplificazione formato da una catena di *dinodi* a potenziale crescente. Il primo dinodo è tenuto ad un potenziale positivo molto alto, così da poter attirare il maggior numero di elettroni prodotti al fotocatodo; questi acquistano energia ed, incidendo, riescono a liberare altri elettroni e a dare luogo ad una moltiplicazione a valanga. Il lavoro di estrazione degli elettroni nei dinodi è di qualche eV , di conseguenza un elettrone accelerato da un potenziale di $100 V$ sarebbe in grado di liberarne altri 30. Tuttavia siccome il moto iniziale di queste particelle è casuale, non tutte riusciranno a raggiungere il primo dinodo, inoltre alcuni di quelli che arrivano avranno perso gran parte della loro energia, di conseguenza solo una piccola frazione degli elettroni accelerati darà luogo alla moltiplicazione a valanga. Il processo di emissione di elettroni secondari è dominato da un fattore di moltiplicazione del tipo:

$$\delta = \frac{\text{numero di elettroni secondari emessi}}{\text{numero di elettroni incidenti}} \quad (2.29)$$

questo meccanismo si ripete per ogni dinodo, fino all'anodo. Il guadagno totale è dato dal prodotto dei singoli guadagni δ relativi ad ogni stadio di moltiplicazione (dinodo) per la frazione α dei fotoelettroni effettivamente raccolti dal primo dinodo:

$$\text{guadagno totale} = \alpha \delta^N \quad (2.30)$$

dove N è il numero di dinodi. Un buon fotocatodo permette di raggiungere valori di α prossimi all'unità, mentre δ varia in funzione del potenziale applicato e del tipo di materiale utilizzato. Per differenze di potenziale tra i dinodi di qualche centinaio di volt si ottengono valori di δ tra 5 e 55, che si riflettono in un guadagno dell'ordine di $10^6 - 10^7$. In questo lavoro è stato utilizzato un fotomoltiplicatore H6524 della Hamamatsu [24] (fig. 2.16) che, come si può vedere dal *datasheet* riportato in Appendice A, ha un guadagno di circa $1,7 \cdot 10^6$. Siccome la corrente anodica generata dai fotomoltiplicatori è proporzionale al numero di fotoni prodotti, è possibile individuare una relazione tra l'energia rilasciata dei fotoni incidenti e la carica totale raccolta nel segnale in uscita.

2.10 Scintillatori Plastici

Una importante categoria di scintillatori organici è costituita dai plastici, così chiamati perché formati da una base di materie plastiche polimeriche



Figura 2.16: Il fotomoltiplicatore usato per le misure.

come il PVT (*poliviniltoluene*). In genere gli scintillatori plastici presentano segnali molto veloci (costanti di decadimento di $2 - 3 \text{ ns}$) e questo li rende particolarmente adatti a misure temporali o in ambienti con elevati flussi di particelle.

Le materie plastiche che formano la matrice di questi scintillatori non sono quasi mai dei buoni emettitori di luce in intervalli di lunghezze d'onda adeguati, sono indispensabili per fornire al materiale la struttura polimerica e la capacità di assorbire la radiazione, ma devono essere combinati con fluorofori per favorirne la scintillazione. Vengono quindi messe in pratica le tecniche di spostamento dell'emissione luminosa introdotte in precedenza. La matrice equivale al composto X della soluzione, un primo fluoroforo Y (ad es. il *p*-terphenil) assorbe la radiazione in uscita dalla matrice e la riemette a circa 350 nm , a questo punto entra in gioco la componente Z (spesso PPO o POPOP) che agisce da *wavelength shifter* e riemette la radiazione nell'intervallo visibile ($400 - 450 \text{ nm}$), rivelabile da un fotomoltiplicatore. Esempi commerciali di scintillatori plastici sono la serie BC-400 della St. Gobain [13] o il ben noto NE102, scelto come materiale di riferimento in questo lavoro.

Capitolo 3

Produzione e caratterizzazione di scintillatori silconici

Nei capitoli precedenti abbiamo descritto le caratteristiche principali degli scintillatori organici ed introdotto alcuni meccanismi utili per la rivelazione dei neutroni.

Ora ci occupiamo della parte sperimentale di questo lavoro di tesi che, come già anticipato, si è svolta in collaborazione con un progetto dell'Istituto Nazionale di Fisica Nucleare denominato ORIONE (ORGanic scINTillatros fOR NEutrons).

Per utilizzare un materiale scintillante come rivelatore di radiazione, è necessario caratterizzarne le proprietà ottiche ed eseguire test specifici per la valutarne la resa, definita come rapporto tra l'uscita di luce ottenuta e l'energia depositata. Altri parametri fondamentali da tenere sotto controllo sono la riproducibilità nella preparazione e la disponibilità dei componenti. Per queste ragioni si è proceduto in maniera sistematica alla realizzazione di numerose serie di campioni nominalmente identici o con lievi differenze, partendo da composti scelti in base alle proprietà di scintillazione ed alla disponibilità commerciale. Il lavoro presentato in seguito si inserisce nelle primissime fasi di un progetto pluriennale, verrà quindi posta l'attenzione sulla caratterizzazione dei materiali sintetizzati e sui loro primi test di utilizzo. In effetti l'interesse primario riguarda la possibilità di ottenere prodotti dalle qualità confrontabili con quelle degli scintillatori già in uso o in commercio (ad esempio il noto NE102), ma che possano mostrare rispetto ad essi dei possibili vantaggi in termini di preparazione, costi oppure resistenza alla radiazione. In un secondo momento si potrà procedere alla loro ottimizzazione per un possibile utilizzo nella rivelazione neutronica.

I materiali di cui ci occuperemo sono di tipo plastico-silconico (anche detti

gomme siliconiche) e sono costituiti da due componenti principali che reticolano dando origine alla matrice, questa viene drogata con fluorofori (PPO o BBOT) per promuoverne la scintillazione. In aggiunta si inseriscono composti contenenti elementi ad elevata sezione d'urto di cattura neutronica (1.3.4) quali il Gadolinio o il Boro. Alla fine è previsto il comportamento illustrato in figura 3.1.

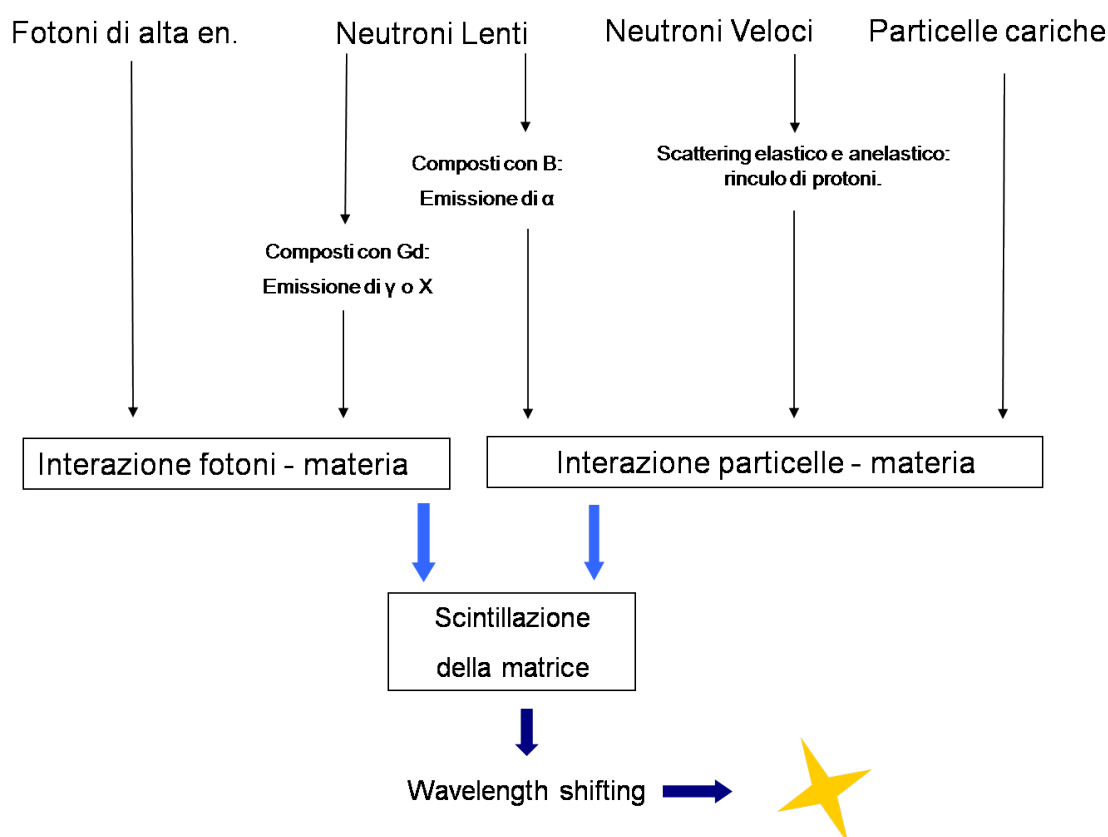


Figura 3.1: I differenti processi attesi in funzione del tipo di radiazione incidente.

Uno scintillatore siffatto dovrebbe essere in grado di rivelare radiazione carica e neutra. In particolare dovrebbe poter moderare e rivelare neutroni veloci e catturare neutroni lenti, trasformando l'energia assorbita in luce di scintillazione.

3.1 Composizione chimica dei campioni

La matrice delle gomme siliconiche realizzate è ottenuta dalla reticolazione di due resine base: il **polidimetil-difenil silossano vinil terminato** ed il **polifenilmetilidrossilossano, terminato idruro**. La loro struttura molecolare è mostrata in figura 3.2. Il primo composto (che chiameremo resina 'A') rappresenta il costituente base e termina con i due gruppi vinile che permettono la polimerizzazione. La percentuale relativa di gruppi fenile e metile presenti nella macromolecola varia a seconda dei numeri n ed m di ripetizioni dei gruppi *metile – Si – metile* e *fenile – Si – fenile* nella molecola stessa. Commercialmente sono disponibili preparati con rapporto $n/(n + m)$ dal 4% al 22%.

La seconda componente, la "resina B", è terminata con idruri. Qui il rapporto p/q tra il numero di gruppi *fenile – Si – metile* e *metile – Si – idruro* è fissato commercialmente a circa 0,5. I polisilossani presentano i vantaggi di polimerizzare a temperatura ambiente (o poco sopra questa) e di non subire significative variazioni di volume, rimanendo elastici.

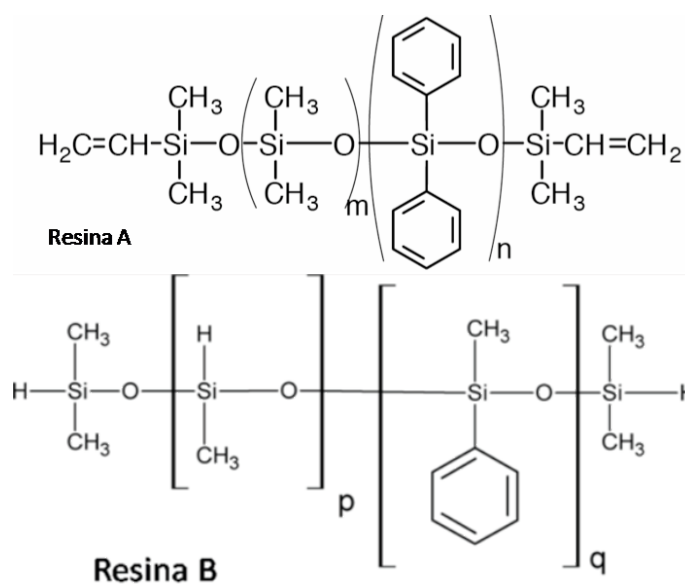


Figura 3.2: Formula di struttura delle resine A e B utilizzate per realizzare i campioni siliconici.

Il processo di polimerizzazione è catalizzato da un composto contenente Platino ed avviene essenzialmente in tre passaggi:

1. Indebolimento dei doppi legami dei gruppi vinilici $\text{CH}_2 = \text{CH} - \text{Si}$ e dei

- legami idruro $Si - H$ da parte del Platino;
2. Rottura dei doppi legami con formazione di radicali del Carbonio molto reattivi;
 3. Rottura del legame $Si - H$ e formazione dei legami $Si - CH_2 - CH_2 - Si$ mostrati in figura 3.3b.

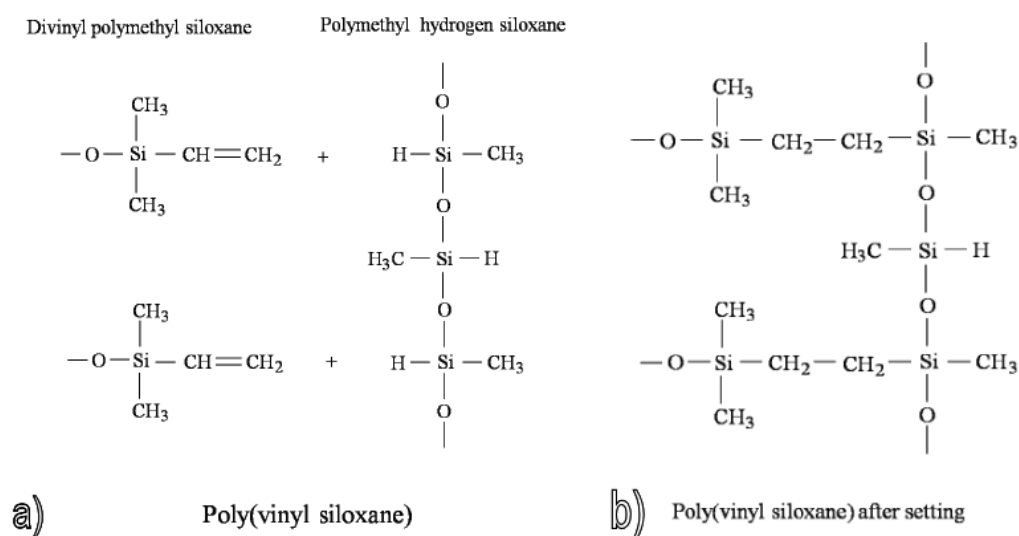


Figura 3.3: a) Addizione della resina A sui legami idruro della resina B. b) Struttura della catena polimerizzata.

Progressivamente le due resine reticolano formando lunghe catene di macromolecole unite nelle posizioni finali della catena di polidimetil-fenilsilossano e nelle posizioni intermedie della catena di idrossi-metilsilossano. Si forma così un solido gommoso con una buona resistenza termica.

La resina base è fluorescente e corrisponde al composto X della trattazione di Birks (cap 2), questo è reso possibile dalla presenza dei gruppi fenile all'interno della matrice; come si diceva, infatti, la luminescenza ha luogo grazie alla struttura energetica dell'anello benzenico. La sua emissione, tuttavia, è centrata attorno ai 300 nm e non sono disponibili fotorivelatori molto sensibili in quella zona dello spettro. Per ottenere una buona resa di luce si utilizzano dei wavelength-shifters il cui funzionamento è stato ampiamente discusso; in questo lavoro sono stati testati il PPO ed il $BBOT$.

Il PPO (2,5-difenilossazolo) ha la formula di struttura mostrata in figura 3.4

ed è un assorbitore a circa 300 nm con emissione a 340 – 370 nm (fig. 3.5).

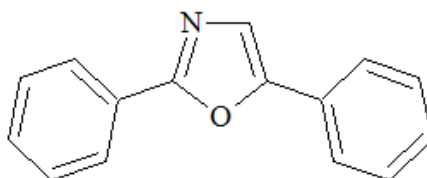


Figura 3.4: Struttura del PPO.

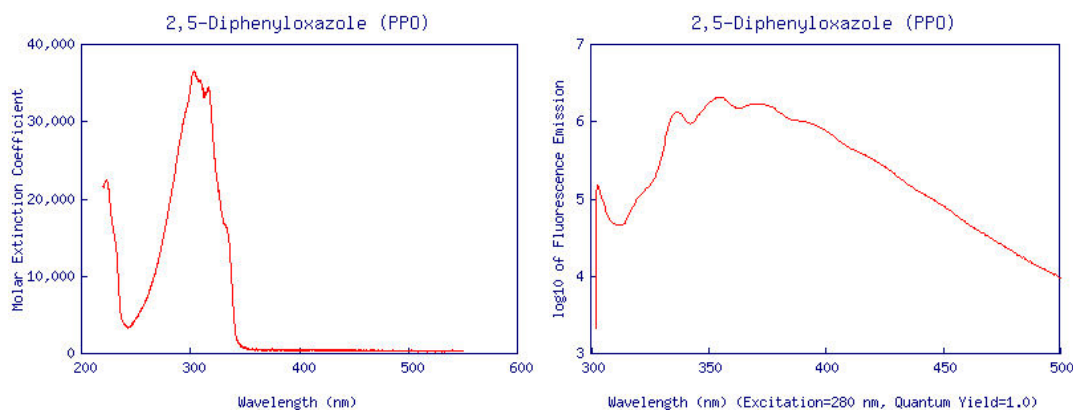


Figura 3.5: Spettro di assorbimento del PPO; b) Spettro di emissione del PPO disciolto nello stilbene [25].

Il BBOT (2,5-bis(5-tert-butyl-2-benzoxazolyl)thiofene) assorbe tra i 300 nm ed i 400 nm con un picco attorno a 370 nm e riemette con uno spettro più stretto ma ad una lunghezza d'onda maggiore del PPO (~ 420 nm) (fig. 3.6).

Per favorire la reazione di polimerizzazione è necessario l'uso di un catalizzatore: sono stati scelti composti contenenti Platino per le loro caratteristiche di efficienza anche a temperatura ambiente ($T < 60\text{ }^{\circ}\text{C}$).

Arricchimento con Boro o Gadolinio Le reazioni che si pensa di sfruttare per la cattura dei neutroni termici sono le seguenti:

Tuttavia né il Gadolinio né il Boro possono essere sciolti all'interno della matrice come polveri contenenti gli elementi puri perché agirebbero da centri di diffusione della luce, essendo praticamente insolubili nelle resine siliciche usate, causando quindi l'opacità dei rivelatori sintetizzati e la conseguente perdita di resa di emissione. Per questo motivo si utilizzano dei composti

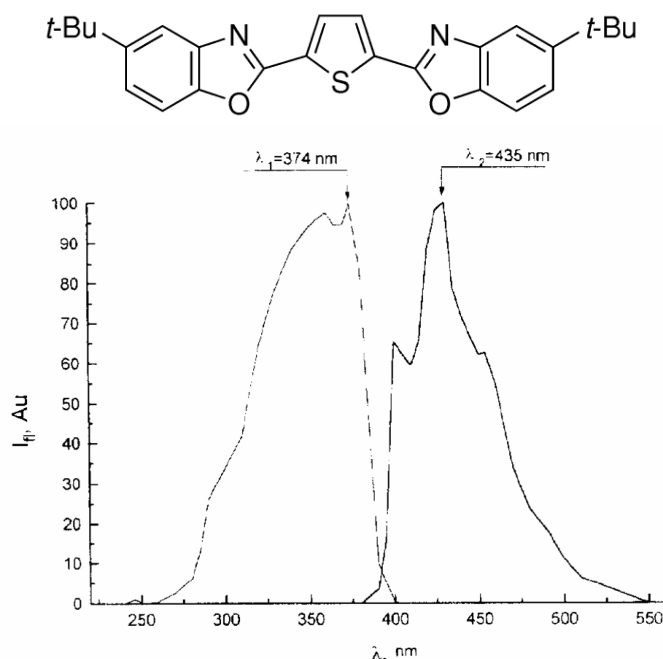
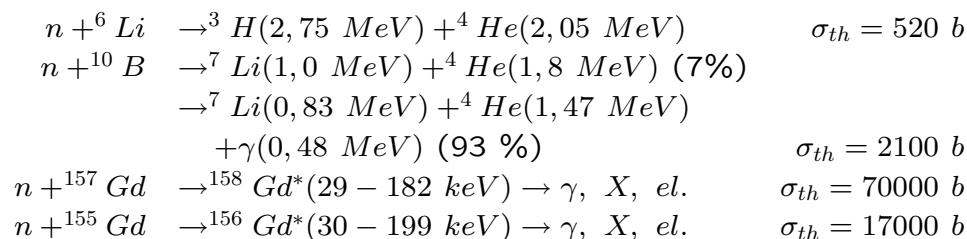


Figura 3.6: Sopra: formula di struttura del BBOT. Sotto: spettri di assorbimento e di emissione del BBOT [26].



organici che permettano di formare un prodotto omogeneo. Per il Gadolinio si è scelto il complesso metallo-organico **gadolinio nitrato tributilsolfato**, mentre nell'altro caso si pensa di utilizzare un precursore del B contenente gruppi vinilici (Boro allil-ossido), in modo da far partecipare il composto alla reticolazione dei siliconi in qualità di reagente e creando veri e propri legami covalenti tra il Boro e le macromolecole siliconiche.

3.2 Preparazione dei campioni

Sotto il coordinamento della dott. Sara Carturan del gruppo di chimica dei LNL, sono state studiate e realizzate varie serie di campioni con tecniche fra

loro leggermente differenti. Sono state principalmente utilizzate due distinte procedure che prevedono diverse fasi:

- 1.A Mescolamento della resina A e del fluoroforo per un elevato numero di ore (circa 12);
- 1.B Eventuale aggiunta di Gadolinio o Boro;
- 1.C Aggiunta della resina B, del catalizzatore e di un inibitore che consente di aumentare il tempo di lavorabilità;
- 1.D Rimozione dell'aria in una camera a vuoto a temperatura ambiente;
- 1.E Riscaldamento in vuoto a temperature tra i 40°C ed i 70°C .

La seconda procedura si distingue dalla prima in quanto il riscaldamento del fluoroforo avviene prima del mescolamento. Il rapporto percentuale in massa tra le resine B ed A viene indicato con il simbolo "Si-H".

3.3 I campioni realizzati

Visto l'elevato numero di campioni da gestire è stato necessario catalogare ed organizzare le informazioni in maniera appropriata. Per l'occasione si sono raggruppati in serie distinte gli scintillatori con composizione chimica simile e si è proceduto alla loro catalogazione in un database appositamente implementato (fig. 3.7). Ogni campione è anche stato fotografato al momento della sua sintesi per poter individuare eventuali trasformazioni in forma, colore ed altri parametri macroscopici. Il lavoro necessario alla registrazione informatica degli oggetti in questione risulta fortemente appagato dalla possibilità di gestire in modo ordinato una grossa quantità di dati. La caratterizzazione completa di questi materiali, infatti, richiede un elevato numero di misure sia su serie differenti che ripetute su campioni nominalmente simili. In particolare si sono studiate la fotoluminescenza, la ionoluminescenza, la radioluminescenza, la resa di luce, lo spettro di assorbimento e quello di emissione di un centinaio di campioni. La gestione elettronica permette anche una grande versatilità di utilizzo specialmente nell'aggiungere nuovi tipi di misura o nel creare tabelle riassuntive delle proprietà dei materiali. Nel seguito si riportano la tabella riassuntiva delle serie prodotte (tab. 3.1), le tabelle specifiche dei campioni (3.2-3.6) ed alcune immagini degli scintillatori in oggetto (figg. 3.8-3.11).

Le variabili principali sono il valore $n/(n+m)$ della resina A, compreso tra il 15% e il 22% (comunemente detto "% fenile"), il rapporto tra la quantità

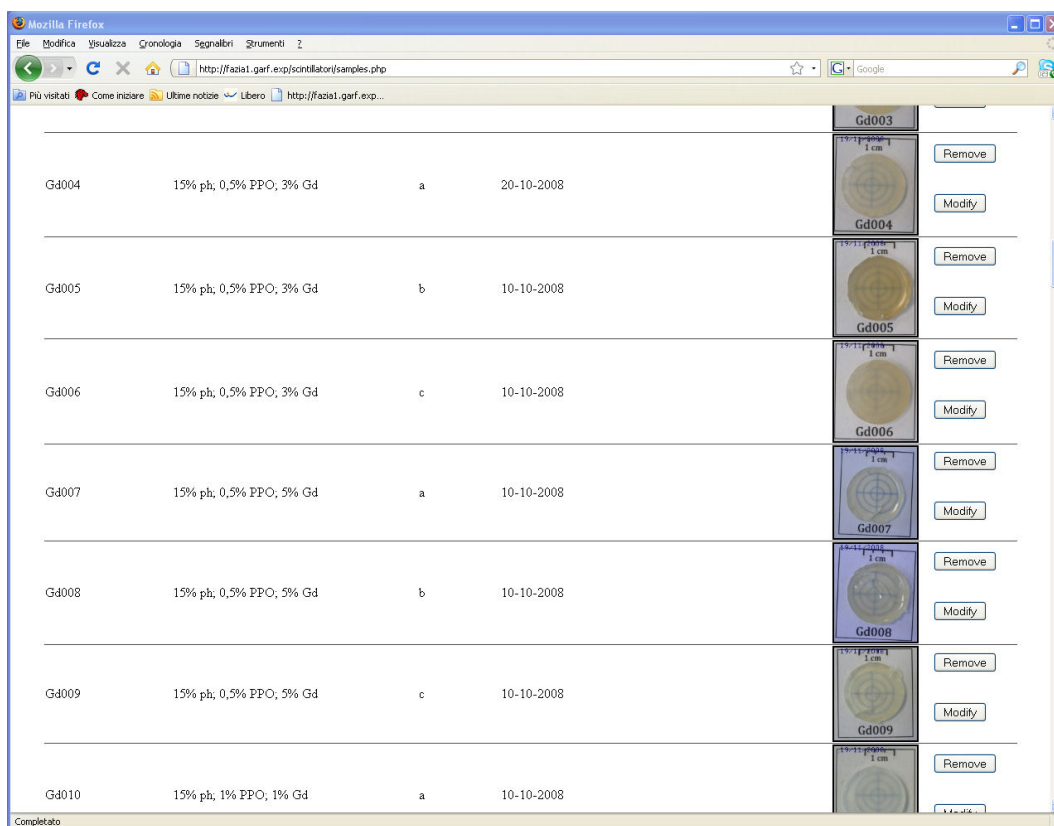


Figura 3.7: Uno “screen-shot” del database realizzato per catalogare i campioni.

Nome	procedura	catalizzatore	fluoroforo	additivo
Serie K	1	3 % Pt	PPO	
Serie Gd	1	3 % Pt	PPO	tutti con Gd
Serie MT	1 + risc. PPO	1,8 % Pt	PPO	
Serie SB	1 + risc. PPO	1,8% Pt	PPO	
Serie BBOT	1	2 % Pt	BBOT	

Tabella 3.1: Elenco delle serie realizzate.

di resina A e B, la concentrazione del fluoroforo (BBOT o PPO che sia) e la concentrazione dell’additivo per la cattura neutronica dove presente. Di ogni tipologia sono stati realizzati due o tre esemplari per verificarne la riproducibilità.

Serie K.

Data di produzione: 10-ott-2008.

Si-H: 100:8,2 per i 22% fenile; 100:5 per i 15% fenile.

	0,5 % PPO	1,0 % PPO	1,5 % PPO	2,0 % PPO
15 % fenile	K001 (a)	K004 (a)	K007 (a)	K010 (a)
	K002 (b)	K005 (b)	K008 (b)	K011 (b)
	K003 (c)	K006 (c)	K009 (c)	K012 (c)
22 % fenile	K013 (a)	K016 (a)	K019 (a)	K022 (a)
	K014 (b)	K017 (b)	K020 (b)	K023 (b)
	K015 (c)	K018 (c)	K021 (c)	K024 (c)

Tabella 3.2: Elenco dei campioni della serie K.

Serie GD.

Data di produzione: 10-ott-2008.

Si-H: 100:8,2 per i 22% fenile; 100:5 per i 15% fenile.

	1% Gd	2% Gd	3 % Gd	5% Gd
15 % fenile 0,5 % PPO	GD001 (a)		GD004 (a)	GD007 (a)
	GD002 (b)		GD005 (b)	GD008 (a)
	GD003 (c)		GD006 (c)	GD009 (c)
15 % fenile 1,0 % PPO	GD010 (a)			
	GD011 (b)			
	GD012 (c)			
25 % fenile 1,0 % PPO			GD013 (a)	GD016 (a)
			GD014 (b)	GD017 (a)
			GD015 (c)	GD018 (a)
25 % fenile 1,5 % PPO	GD019 (a)	GD022 (a)	GD025 (a)	
	GD020 (b)	GD023 (b)	GD026 (b)	
	GD021 (c)	GD024 (c)	GD027 (c)	

Tabella 3.3: Elenco dei campioni della serie GD.

Serie MT.

Data di produzione: 12-nov-2008.

15 % fenile	no PPO	0,5 % PPO	1,0 % PPO	1,5 % PPO
Si-H 5,2	MT001	MT004	MT007	MT010
	MT002	MT005	MT008	MT011
	MT003	MT006	MT009	MT012
Si-H 6,5	MT013	MT016	MT019	MT022
	MT014	MT017	MT020	MT023
	MT015	MT018	MT021	MT024

Tabella 3.4: Elenco dei campioni della serie MT.

Serie SB.

Data di produzione: 4-dic-2008.

Si-H: 100:8,2 per i 22% fenile; 100:5 per i 15% fenile.

15 % fenile	1,0 % PPO	1,5 % PPO	2,0 % PPO
1,8 % Pt	SB001 (a)	SB003 (a)	SB005 (a)
	SB002 (b)	SB004 (b)	SB006 (b)
3,0 % Pt	SB007 (a)	SB009 (a)	SB011 (a)
	SB008 (b)	SB010 (b)	SB012 (b)
25 % fenile	1,0 % PPO	1,5 % PPO	2,0 % PPO
1,8 % Pt	SB015 (a)	SB017 (a)	SB019 (a)
	SB016 (b)	SB018 (b)	SB020 (b)
3,0 % Pt	SB024 (a)	SB026 (a)	SB028 (a)
	SB025 (b)	SB027 (b)	SB029 (b)

Tabella 3.5: Elenco dei campioni della serie SB.

I campioni SB013, SB014, SB021 e SB030 sono spessi 1,5 *cm* (si veda 3.3.1). La loro composizione è:

- SB013 - 25 % fenile, 3 % Pt, 1,5 % PPO;
- SB014 - 25 % fenile, 3 % Pt, 1,5 % PPO, 3,0 % Gd;
- SB021 - 15 % fenile, 3 % Pt, 1,0 % PPO, 1,0 % Gd;
- SB030 - 15 % fenile, 3 % Pt, 1,0 % PPO, 5,0 % Gd;

Serie BBOT.

Data di produzione: 14-01-2009.

Si-H: 100:8 per i 22% fenile; 100:6,5 per i 15% fenile.

Nome	fenile	PPO	BBOT
1A	22%	0,5%	0,05%
1B	22%	0,5%	0,05%
2A	22%	1,0%	0,10%
2B	22%	1,0%	0,10%
3A	22%	2,0%	0,20%
3B	22%	2,0%	0,20%
4A	22%	1,5%	0,15%
4B	22%	1,5%	0,15%
5A	15%	2,0%	0,20%
5B	15%	2,0%	0,20%
5C	15%	2,0%	0,20%
6A	15%	1,5%	0,15%
6B	15%	1,5%	0,15%
6C	15%	1,5%	0,15%
7A	15%	1,0%	0,10%
7B	15%	1,0%	0,10%
7C	15%	1,0%	0,10%
8A	15%	0,5%	0,05%
8B	15%	0,5%	0,05%

Tabella 3.6: Elenco dei campioni della serie BBOT.

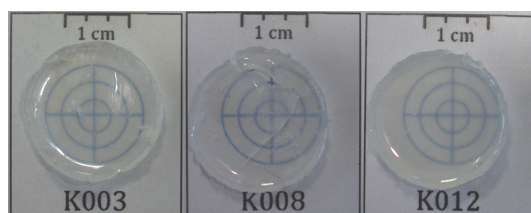


Figura 3.8: Alcuni campioni della serie K.

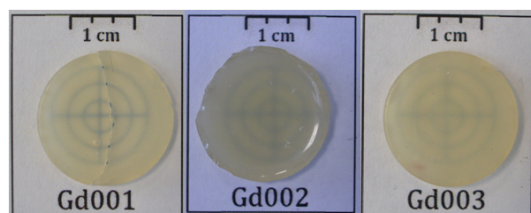


Figura 3.9: Alcuni campioni della serie Gd.

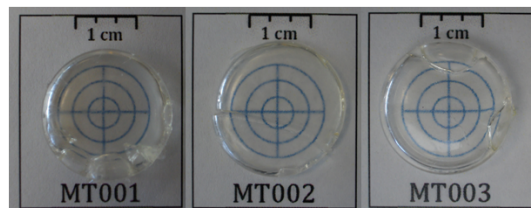


Figura 3.10: Alcuni campioni della serie MT.

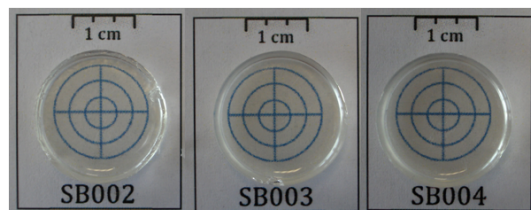


Figura 3.11: Alcuni campioni della serie SB.

3.3.1 Spessori dei campioni

Come si può dedurre dalle fotografie 3.8,3.9 e seguenti, tutti i campioni hanno forma cilindrica con raggio di circa 15 *mm*. Particolare attenzione va

Samp	h (± 0.02)mm	Samp	h (± 0.02)mm	Samp	h (± 0.02)mm	
K001	1,15	Gd001	1,06	MT001	2,67	
K002	1,76	Gd002	2,49	MT002	1,14	
K003	1,25	Gd003	1,40	MT003	2,58	
	Max-Min	0,61	Max-Min	1,43	Max-Min	1,53
K004	1,94	Gd004	1,17	MT004	1,20	
K005	1,76	Gd005	2,31	MT005	2,04	
K006	0,54	Gd006	1,58	MT006	1,93	
	Max-Min	1,40	Max-Min	1,14	Max-Min	0,84
K007	1,30	Gd007	1,50	MT007	1,99	
K008	0,89	Gd008	2,38	MT008	1,96	
K009	1,79	Gd009	1,46	MT009	1,96	
	Max-Min	0,90	Max-Min	0,92	Max-Min	0,03
K010	1,73	Gd010	1,61	MT010	1,99	
K011	0,83	Gd011	2,04	MT011	2,39 Bolle	
K012	1,84	Gd012	1,11	MT012	2,03 Bolle	
	Max-Min	1,01	Max-Min	0,93	Max-Min	0,40
K013	1,53	Gd013	2,42	MT013	2,40 Bolle	
K014	1,66	Gd014	1,42	MT014	2,56 Bolle	
K015	1,81	Gd015	1,21	MT015	2,08 Bolle	
	Max-Min	0,28	Max-Min	1,21	Max-Min	0,48
K016	2,04	Gd016	1,80 Bolle	MT016	2,04	
K017	1,24	Gd017	2,00 Bolle	MT017	2,09	
K018	1,31	Gd018	2,40	MT018	2,21	
	Max-Min	0,80	Max-Min	0,60	Max-Min	0,17
K019	1,40	Gd019	1,56	MT019	1,97	
K020	1,44	Gd020	1,99	MT020	2,07	
K021	2,01	Gd021	1,01	MT021	1,78	
	Max-Min	0,61	Max-Min	0,98	Max-Min	0,29
K022	-	Gd022	1,74	MT022	1,95	
K023	1,61	Gd023	1,72	MT023	2,08	
K024	1,59	Gd024	1,26	MT024	2,01	
	Max-Min	0,02	Max-Min	0,48	Max-Min	0,13
		Gd025	1,98			
		Gd026	1,03			
		Gd027	1,90			
		Max-Min	0,95			

Figura 3.12: Gli spessori misurati di alcuni campioni.

posta ai loro spessori, mediamente dell'ordine di qualche millimetro. Alcuni di questi vengono riportati in figura 3.12.

Lo spessore del campione è di fondamentale importanza sia dal punto di vista dell'interazione radiazione-materia, sia per quanto riguarda l'autoassorbimen-

to della luce di scintillazione. La radiazione, infatti, incide su una faccia e penetra nel materiale per uno spessore legato alla sua energia, alla sua massa e alle caratteristiche del composto assorbente. Il rilascio di energia è graduale e la luce viene prodotta lungo tutto il percorso di interazione sia per particelle cariche che per fotoni o neutroni veloci. Per neutroni lenti l'interazione è puntuale perché il centro di assorbimento è il singolo nucleo che opera cattura. In tutti i casi uno scintillatore spesso darà maggiori probabilità di assorbimento e di contenimento dei fotoni emessi nei decadimenti post cattura. Tuttavia, ad uno spessore crescente, si associa una crescente capacità di autoassorbimento (quenching) della radiazione prodotta.

Si potrebbe intuitivamente pensare che, al crescere della trasparenza, sia lecito aumentare lo spessore degli scintillatori. Questa ipotesi deve essere tuttavia verificata con misure di resa di luce.

Da quanto detto risulta chiaro che, per confrontare misure di resa di luce tra loro, sia importante che i campioni abbiano lo stesso spessore.

Dalla tabella mostrata in figura 3.12 si nota una maggiore disomogeneità negli spessori dei campioni della serie K, questo è dovuto ad una iniziale difficoltà nel processo produttivo che in seguito è stato corretto. Per questo motivo si possono considerare omogenei in spessore tutti i campioni proposti tranne quelli della suddetta serie K che è la prima in ordine cronologico ad essere stata realizzata.

Data la grande quantità di campioni da realizzare non si può sottovalutare il costo relativo alla quantità di materiale utilizzato: per questo motivo l'ordine di grandezza degli spessori della maggior parte dei campioni realizzati è del millimetro, allo scopo di evidenziare i migliori campioni. Una volta selezionata la "ricetta" migliore, per tali tipologie si potranno realizzare e studiare i campioni più spessi.

In questa prima fase solo alcuni campioni (SB013, SB014, SB021, SB030) sono stati preparati con spessori di circa 1,5 *cm* per verificare da una parte, l'andamento della trasparenza e dall'altra, aumentare la possibilità di interazione dei neutroni.

3.4 Fotoluminescenza: spettri di emissione

Un passaggio preliminare alla valutazione della resa di luce dei materiali sintetizzati riguarda la misura dei loro spettri di emissione e di eccitazione. Utilizzando uno spettrofotometro si eccitano le molecole del materiale con radiazione luminosa avente lunghezza d'onda selezionata (tra 300 e 500 *nm*)

e si misura la risposta di fluorescenza complessiva (spettri di emissione) o ad una particolare lunghezza d'onda (spettri di eccitazione).

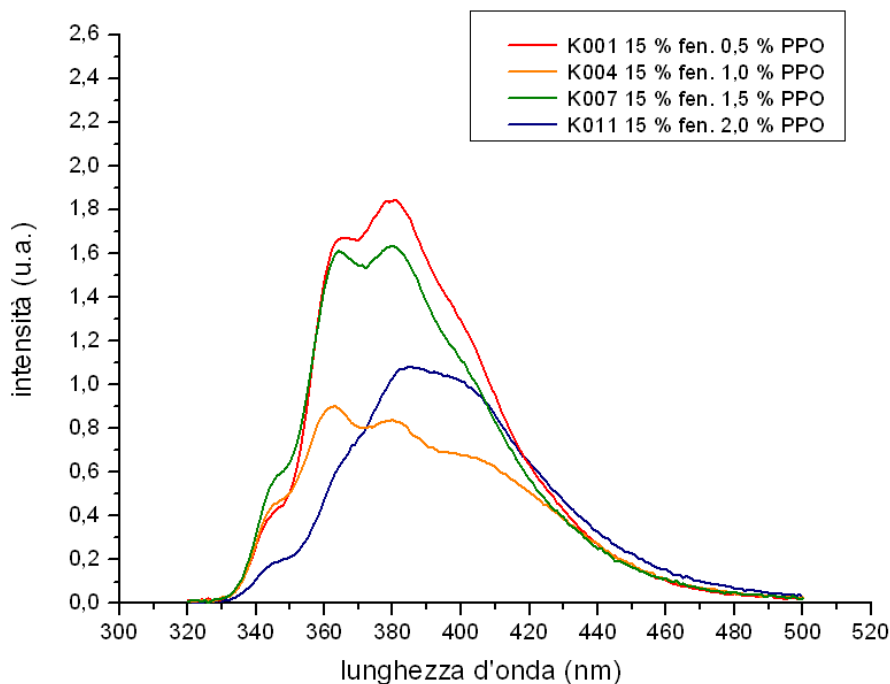


Figura 3.13: Spettri di emissione della matrice silconica (15% fenile).

Questo lavoro è stato svolto presso i Laboratori del Dipartimento di Ingegneria dei materiali dell'Università di Trento, dove è in corso uno studio approfondito sulle proprietà di emissione ed assorbimento delle varie componenti di questi materiali. Si mostrano i risultati per alcuni campioni delle serie K e GD (figg. 3.13-3.16). Si nota immediatamente che l'intervallo di emissione del PPO è compreso tra i 360 ed i 380 *nm* e che si sovrappone bene alla zona di sensibilità del fotomoltiplicatore H6524 (appendice B), confermando la possibilità di utilizzare questo strumento nelle successive misure con sorgenti.

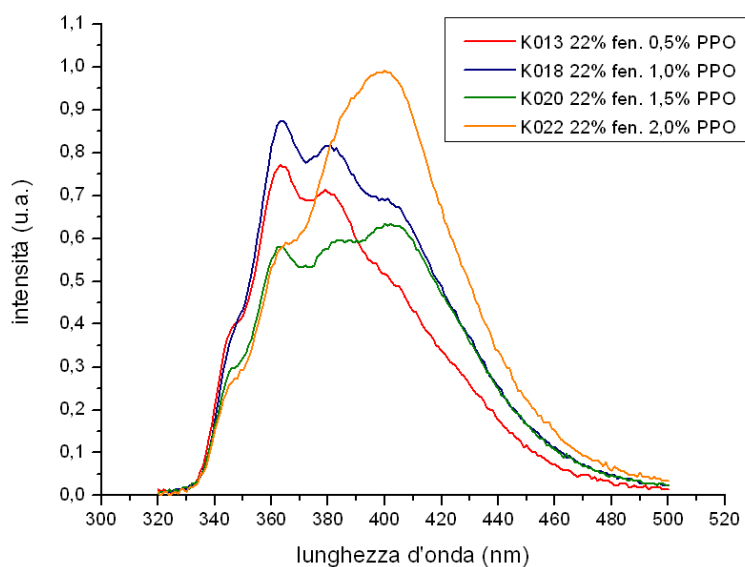


Figura 3.14: Spettri di emissione della matrice siliconica (22% fenile).

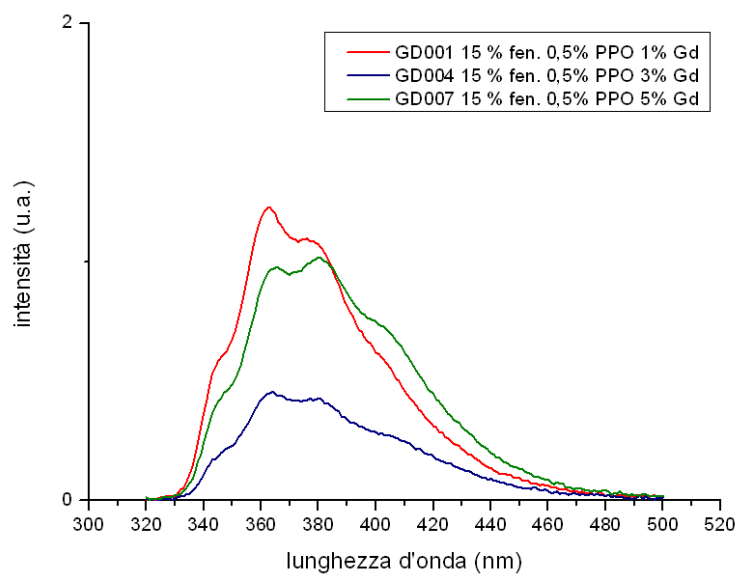


Figura 3.15: Spettri di emissione della matrice siliconica (22% fenile) contenente Gadolinio.

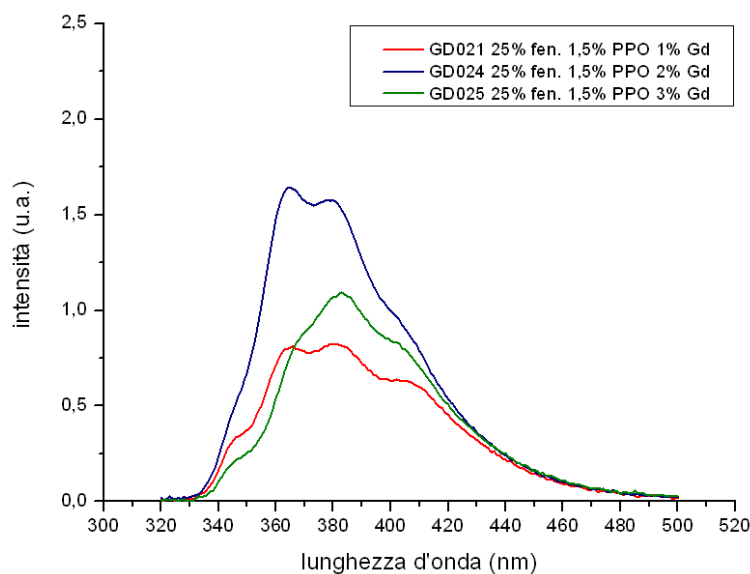


Figura 3.16: Spettri di emissione della matrice siliconica (22% fenile) contenente Gadolinio.

3.5 Misure di Resa di Luce

La parte preponderante di questo lavoro, almeno in termini di tempo impiegato, riguarda lo studio della resa di luce dei materiali quando irraggiati con sorgenti radioattive. Come riferimento si è scelto uno scintillatore commerciale molto comune: l'NE102. Questo materiale non è in grado di rivelare neutroni ma è un buon scintillatore per particelle cariche, per questo motivo si vorrebbero ottenere le stesse prestazioni in termini di resa di luce.

3.5.1 Apparato di misura

Le misure descritte sono state effettuate presso i Laboratori Nazionali di Legnaro. L'apparato utilizzato è abbastanza semplice, il rivelatore è composto da un fotomoltiplicatore Hamamatsu H6524 (appendice B) accoppiato direttamente al materiale scintillante; come si è detto in precedenza, non è necessario l'uso di guide di luce o grasso ottico perché le dimensioni del fototubo sono perfettamente compatibili con quelle dei campioni (fig. 3.17) e la loro natura siliconica permette un'ottima adesione delle superfici. Per schermare dalla luce esterna e bloccare il campione sul fototubo si è proceduto a fasciare ogni campione con teflon bianco (fig. 3.18). Si è poi utilizzata una piccola camera di scattering (fig. 3.19) per assicurare l'i-

solamento luminoso con l'esterno, fattore molto importante data l'elevata sensibilità del fotomoltiplicatore.

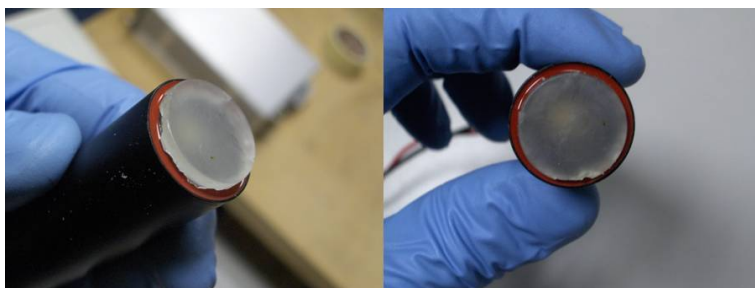


Figura 3.17: Accoppiamento fototubo - campione.

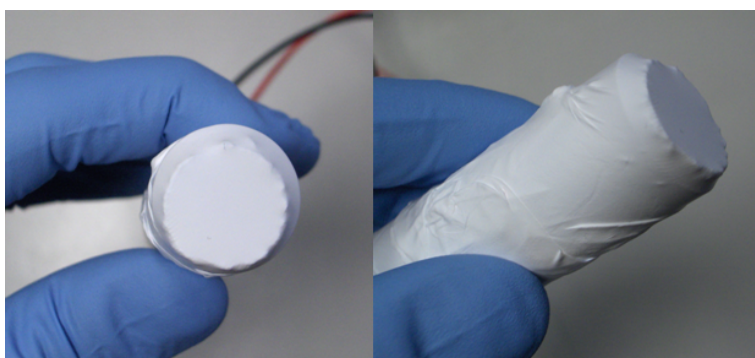


Figura 3.18: Campione fasciato con teflon.

Il fototubo è stato calibrato in passato e lavora ad una tensione negativa di -1450 V , per fornire questa alimentazione si è usato un alimentatore Hamamatsu C3830.

I segnali anodici in uscita dal PMT sono negativi. L'area che sottendono, ovvero la carica totale raccolta, è proporzionale alla luce emessa all'interno dello scintillatore, la quale a sua volta è legata all'energia depositata dalla particella incidente. I segnali prodotti vengono amplificati da uno *Spectroscopy Amplifier* (Canberra 2024 [27]) che forma un segnale gaussiano il cui valore di ampiezza rappresenta l'integrale del segnale in ingresso. A parità di energia, quindi uno scintillatore più efficiente in termini di resa di luce darà luogo a segnali più alti in uscita dall'amplificatore. Il tempo di integrazione è definito dallo *shaping time* dell'amplificatore ed il fattore di proporzionalità tra l'integrale in carica ed il valore di tensione in uscita è detto *guadagno*.

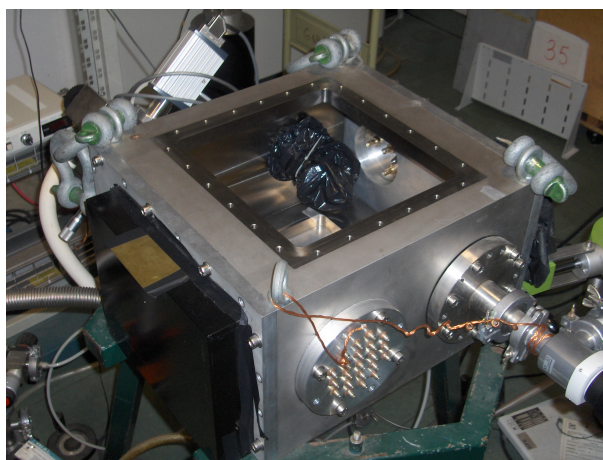


Figura 3.19: Camera di scattering.

In seguito ai primi test effettuati e siccome i segnali sono piuttosto rapidi, si è deciso di utilizzare uno shaping time di $0,25 \mu s$ ed un guadagno effettivo di 150. Questi valori sono stati mantenuti costanti in tutte le misure che andremo ad illustrare.

Il sistema descritto permette, quindi, di valutare la resa di luce dello scintillatore in termini di luce emessa in funzione del tipo di radiazione incidente e della sua energia.

3.5.2 Le Sorgenti

Generalmente i test sono stati eseguiti con due tipi di radiazione: α e γ . In tabella 3.7 sono riportate le caratteristiche delle sorgenti utilizzate:

Emissione	Sorgente	Attività	$t_{1/2}$	Energia di picco
α	^{241}Am	3 kBq	432 y	5,484 MeV
γ	^{60}Co	410 kBq	5,27 y	1,332 MeV e 1.173 MeV

Tabella 3.7: Sorgenti utilizzate per i test di resa di luce.

Dato che per velocizzare i numerosi test essi sono stati effettuati in aria, è stato necessario posizionare la sorgente α a diretto contatto con ogni campione da analizzare. Il range di tali particelle alle energie della sorgente (5 MeV), infatti, è molto limitato sia attraverso un materiale denso, come il teflon usato per la fasciatura (range pochi micrometri) che in aria (pochi centimetri). Alla luce di questo dato risulta chiaro che anche lo spessore del campione ef-

fettivamente sondato con questo tipo di radiazione è limitato a pochi micron. La sorgente γ , viceversa, permette di sondare il materiale lungo tutto il suo spessore, dato il tipo di interazione caratteristico di questo tipo radiazione.

3.5.3 Misure con sorgente α

Mostriamo ora i risultati delle misure di resa di luce. Consideriamo in primo luogo la risposta dei diversi campioni alle particelle α che, come precedentemente detto, forniscono in maniera intuitiva una valutazione dell'efficienza relativa per il materiale in esame ed il campione di riferimento (NE102). I tempi di misura sono stati tutti normalizzati a 100 s, anche nel caso di misure più lunghe, così da avere un'idea anche dell'intensità relativa tra le varie serie. Questo in realtà è un confronto influenzato da parametri che non possono essere sempre sotto controllo (differenze negli spessori, opacità causata da diversi metodi di produzione) e che si vanno a sommare alle caratteristiche più sostanziali dei diversi campioni come i rapporti matriciali e/o di concentrazione dei fluorofori.

Dato il range di pochi micron delle particelle α nel materiale scintillante, risulta che la perdita di energia e quindi l'assorbimento delle particelle stesse da parte del materiale sono massimi. Quindi ci si aspetta per ogni campione uno spettro con picco gaussiano il cui centroide è legato alla resa di luce del campione stesso, che può essere utilizzato direttamente come termine di paragone.

In figura 3.20 viene mostrato lo spettro di riferimento dell'NE102 ed il suo fit gaussiano. Per valutare la posizione del picco, infatti, sono stati calcolati il valor medio e la larghezza a metà altezza delle distribuzioni sperimentali, utilizzando come prototipo la funzione di Gauss. Come ci si può aspettare da un fenomeno statistico come il conteggio di un elevato numero di eventi teoricamente identici (l'energia ed il tipo di particella sono fissati), gli spettri analizzati si adattano bene a questo tipo di distribuzione.

La larghezza a metà altezza (FWHM) della caratteristica "campana" di Gauss viene utilizzata come stima della risoluzione dello scintillatore: valori tipici per materiali organici come l'NE102 sono dell'ordine del 30% rispetto al valore di picco. Tale valore di risoluzione tiene anche conto del contributo di *straggling* delle particelle alfa in aria (spessore attraversato dalla sorgente al campione ~ 5 mm).

Serie K Nella prima serie considerata le variabili principali sono la percentuale di PPO e quella dei gruppi fenile; in tabella 3.8 sono riassunti i risultati

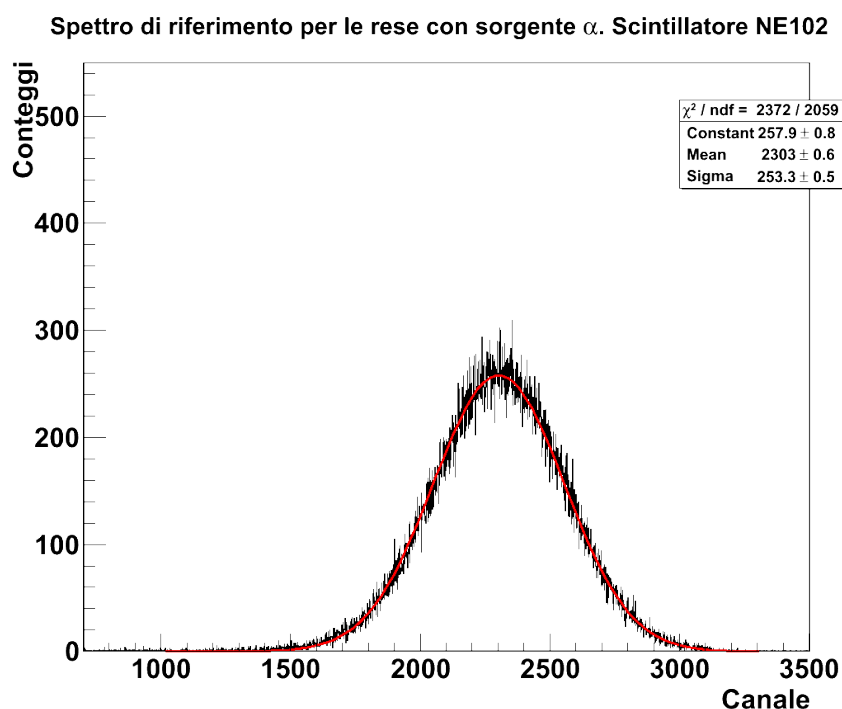


Figura 3.20: Spettro di riferimento con fit gaussiano. Si tratta di NE102 con sorgente di ^{241}Am .

dei fit gaussiani su tutti i campioni analizzati, mentre le figure 3.22 e 3.23 mostrano alcuni spettri significativi. Si notano immediatamente notevoli variazioni in resa di luce anche all'interno dei gruppi nominalmente simili. Si ritiene che tali variazioni siano legate anche alla difficoltà di controllo sugli spessori in questa serie, aspetto che è stato maggiormente curato nella produzione delle serie successive. Si nota comunque un andamento crescente al crescere della concentrazione di PPO e calante al crescere della percentuale di fenile introdotto nella soluzione. Come vedremo in seguito questo comportamento è anomalo in quanto ci si aspetterebbe che ad una maggiore concentrazione di centri luminescenti corrispondesse una maggiore resa di luce (si ricordi che la luminescenza ha luogo negli anelli benzenici dei gruppi fenile).

Nel grafico 3.21 i punti sono riportati per ogni tipologia di campione, accompagnati da una barra di errore che indica la semidispersione all'interno della serie di campioni uguali. Il valore medio di ogni tripletta di misura vuole fornire una stima del risultato che si può ottenere con quel campione, quando si vadano a produrre diverse copie dello stesso. Un valore elevato di

semidisersione significa che devono essere migliorate le tecniche produttive in quanto le oscillazioni all'interno dello stesso gruppo sono troppo evidenti. Altro discorso è la risoluzione intrinseca di ogni campione data dalla larghezza a metà altezza della gaussiana, legata esclusivamente alla natura stocastica del processo di assorbimento della radiazione alfa del materiale in esame. Dai grafici in figura 3.22 si vede come la risposta dei nostri campioni sia prevalentemente gaussiana con risoluzioni che variano dal 30% al 50%. Come si nota alcuni campioni della serie K mostrano rese di luce paragonabili a quelle del campione di riferimento NE102, sia come centroide che come risoluzione.

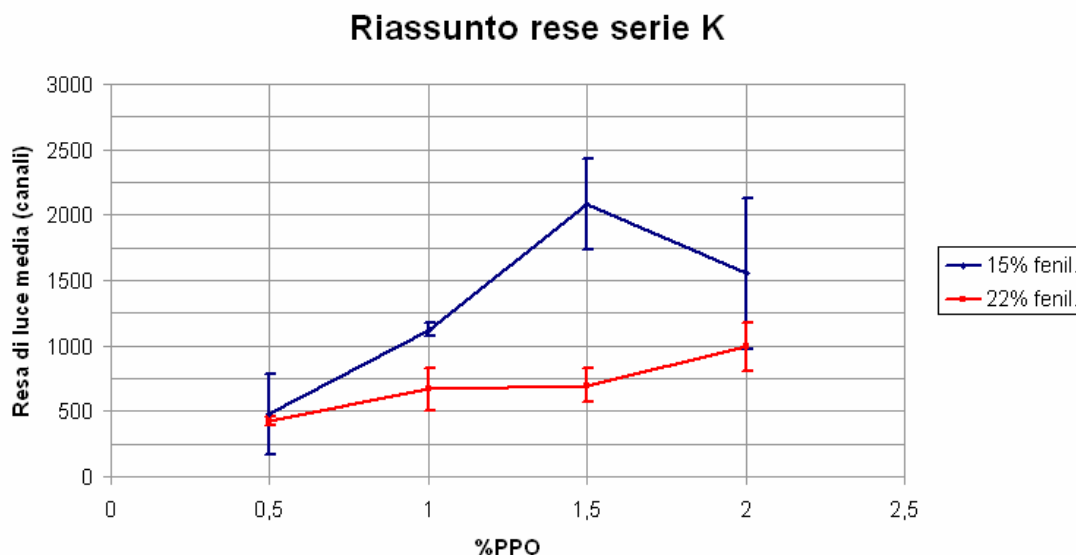


Figura 3.21: Riassunto delle misure effettuate sulla serie K.

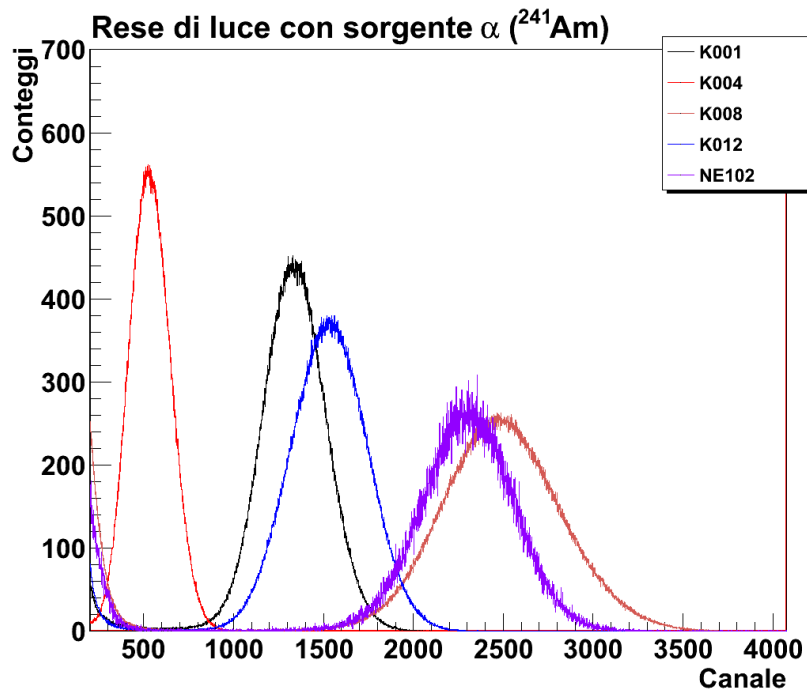


Figura 3.22: Gli spettri più significativi della serie K (15 % fenile).

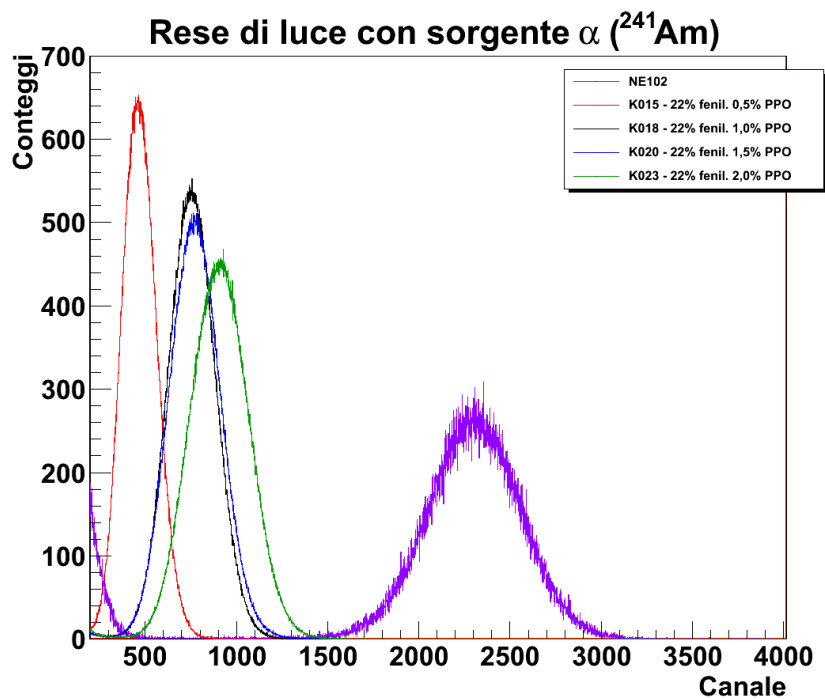


Figura 3.23: Gli spettri più significativi della serie K (22 % fenile).

camp.	picco	FWHM	%
K001	534	269	50 %
K002	426	236	55%
K003	-	-	-
K004	1340	405	30%
K005	723	322	45%
K006	1312	446	34%
K007	1982	526	26%
K008	2482	733	29%
K009	1785	515	29%
K010	986	329	33%
K011	2140	570	26%
K012	1530	496	32%
K013	400	218	54%
K014	408	219	53%
K015	465	220	47%
K016	592	249	42%
K017	654	267	41%
K018	756	301	40%
K019	643	261	41%
K020	772	324	42%
K021	670	322	48%
K022	1124	401	32%
K023	906	370	41%
K024	856	328	38%

Tabella 3.8: Serie K - rese di luce con sorgente ^{241}Am . Spettri normalizzati a 100 s di esposizione.

camp.	picco	FWHM	%
GD001	204	144	70 %
GD002	< 70	-	-
GD003	123	94	76%
GD004	145	109	75%
GD005	< 96	-	-
GD006	-	-	-
GD007	216	183	84%
GD008	-	-	-
GD009	186	-	-
GD010	270	-	-
GD011	560	239	42%
GD012	553	331	59%
GD013	143	122	85%
GD014	221	142	64%
GD015	204	161	78%
GD016	92	-	-
GD017	239	139	58%
GD018	150	142	94%
GD019	719	288	40%
GD020	653	290	44%
GD021	884	317	36%
GD022	400	233	58%
GD023	438	261	60%
GD024	350	346	99%
GD025	489	337	69%
GD026	682	270	40%
GD027	606	305	50%

Tabella 3.9: Serie GD - rese di luce con sorgente ^{241}Am . Spettri normalizzati a 100 s di esposizione.

Serie GD Per questa serie la procedura di sintesi è identica a quella della precedente, tuttavia si osserva una netta diminuzione della resa di luce. Questo fatto viene attribuito alla presenza del Gadolinio. Non tanto il Gadolinio in sè, quanto la molecola di gadolinio nitrato tributilsolfato utilizzata, sarebbe responsabile di un ingiallimento dei campioni visibile anche ad occhio. La colorazione del materiale causa un assorbimento della luce prodotta per scintillazione che si ripercuote nel quenching della resa luminosa. Dagli spettri

(figg. 3.24-3.26) si osserva, infatti, che questo fenomeno è diffuso su tutti i campioni in maniera proporzionale alla percentuale di Gadolinio presente. Si rispetta quindi l'andamento osservato per la serie K, ovvero la crescita della resa di luce con la percentuale di PPO, al quale si deve aggiungere l'effetto del Gadolinio.

Gli spettri mostrati sono suddivisi secondo la densità di Gadolinio presente, un confronto preciso dovrebbe tenere conto del fatto che si considerano campioni con differenti concentrazioni di fenile, tuttavia l'effetto di quenching rispetto alla serie K è evidente sia per i gruppi con 15% di fenile che per quelli con il 25%. Gli spettri seguenti mostrano il comportamento di alcuni campioni escludendo quelli in cui il picco gaussiano risulta ad un canale talmente piccolo da non essere risolvibile dal pedestallo (rumore di fondo della misura), lo stesso vale per le tabelle riassuntive ed il grafico 3.27 dove in corrispondenza di questi campioni non viene riportato alcun valore di picco.

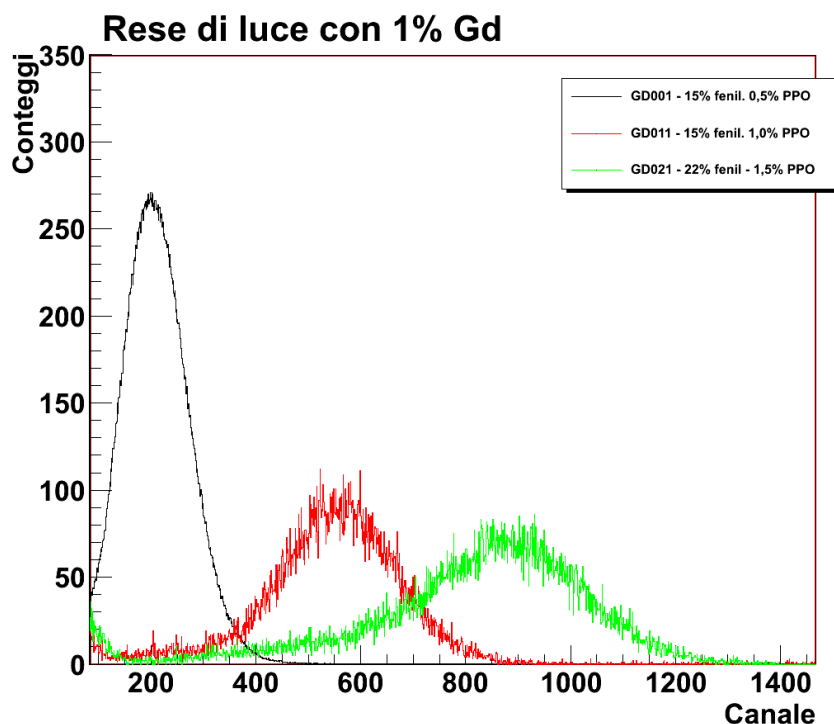


Figura 3.24: Serie GD, campioni con 1%, 3% e 5% di Gadolinio.

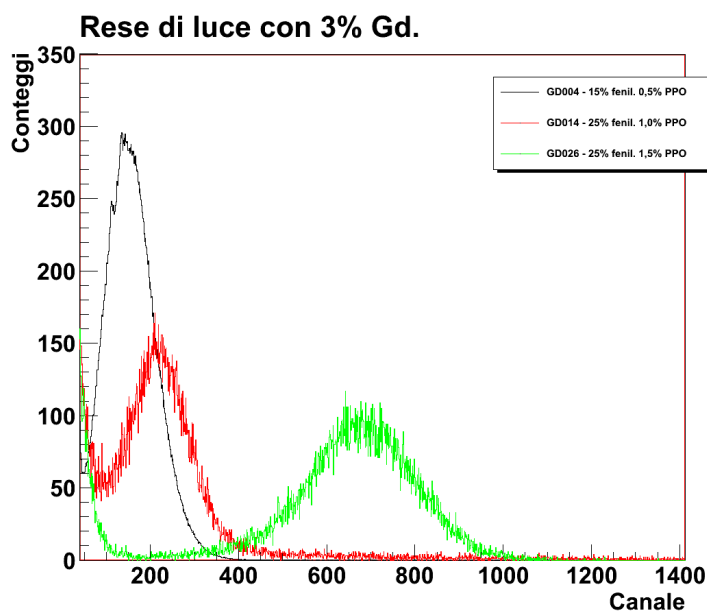


Figura 3.25: Serie GD, campioni con 1%, 3% e 5% di Gadolinio.

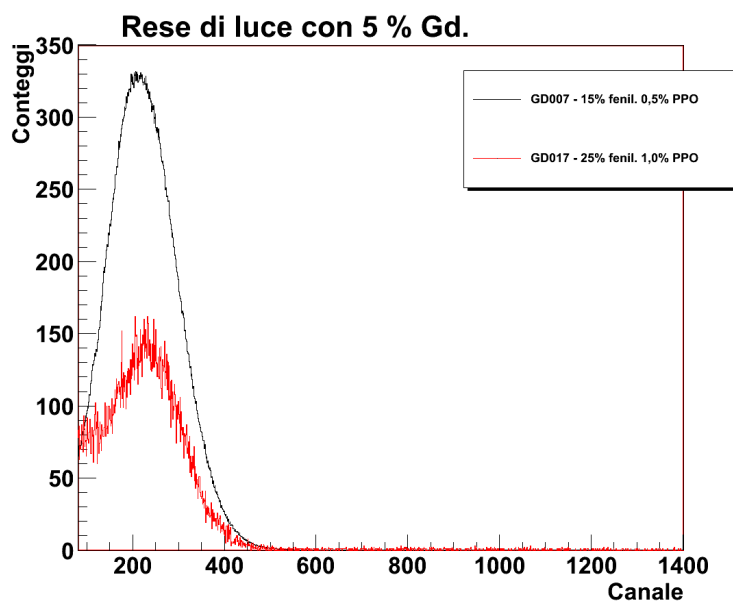


Figura 3.26: Serie GD, campioni con 1%, 3% e 5% di Gadolinio.

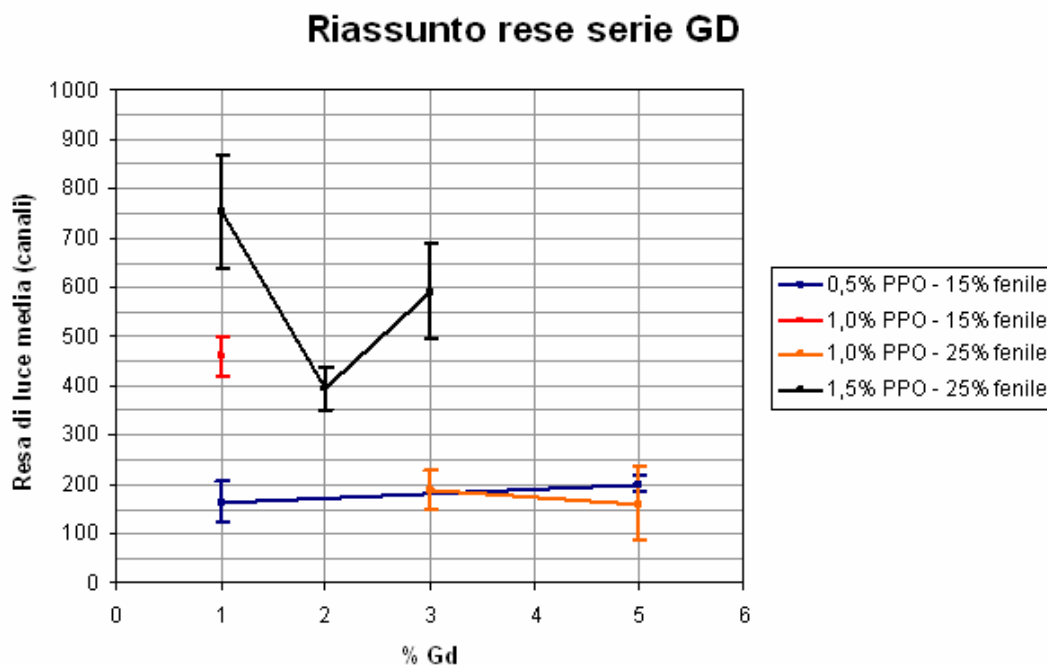


Figura 3.27: Riassunto delle misure effettuate sulla serie GD. La suddivisione in percentuale di PPO non tiene conto della concentrazione di fenile.

Serie MT Questa serie differisce dalle precedenti nel metodo di sintesi dei campioni. Il riscaldamento del PPO prima della miscelazione ha permesso di produrre dei campioni molto più trasparenti dei precedenti e dalla consistenza molto più resistente. Tuttavia queste proprietà di carattere macroscopico non si riflettono in un miglioramento della resa di luce: come si può vedere dagli spettri mostrati (fig. 3.28), la resa si è abbassata notevolmente rispetto al valore di riferimento e rispetto ai valori medi della serie K.

L'aspetto positivo è rappresentato da una migliorata riproducibilità dei campioni, che rispondono in modo più omogeneo all'interno dei gruppi nominalmente identici. Gli andamenti in figura 3.29 mostrano un miglioramento della resa di luce con il crescere della concentrazione di PPO, mentre il rapporto denominato "Si-H" tra la concentrazione delle resine B ed A sembra migliore a valori più piccoli.

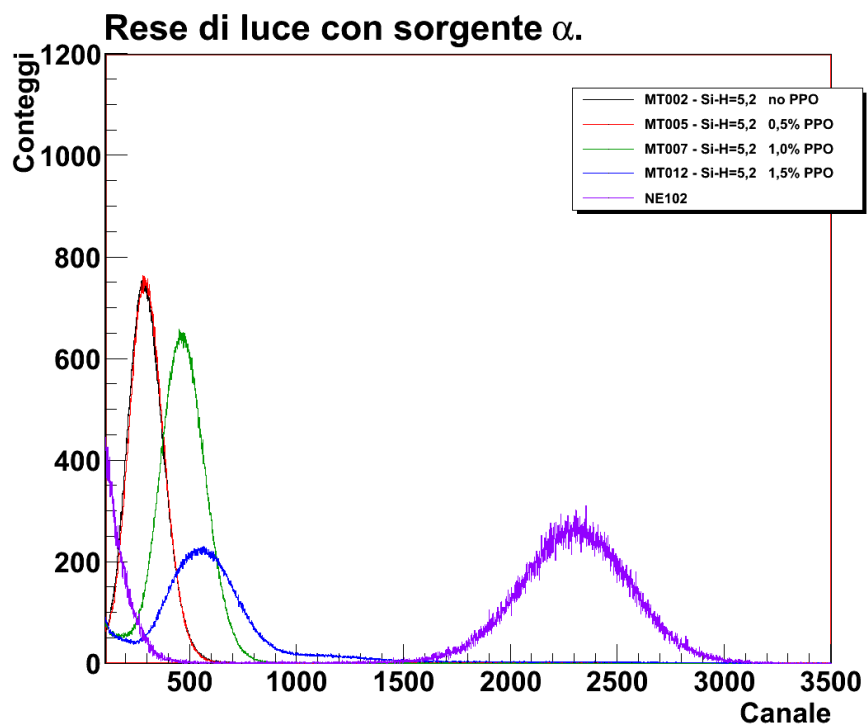
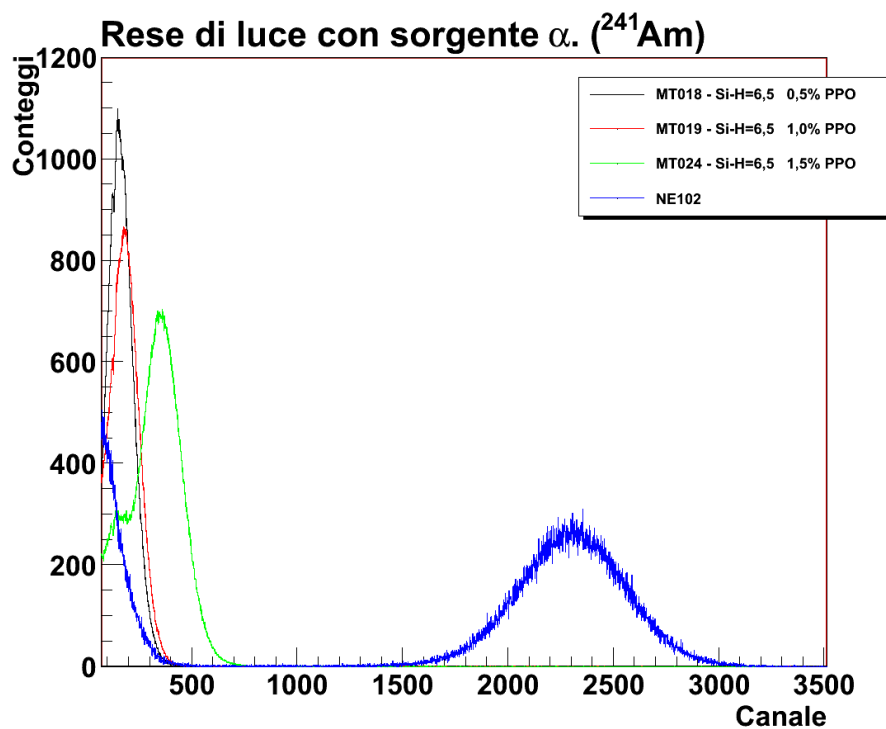


Figura 3.28: Gli spettri più significativi della serie MT.

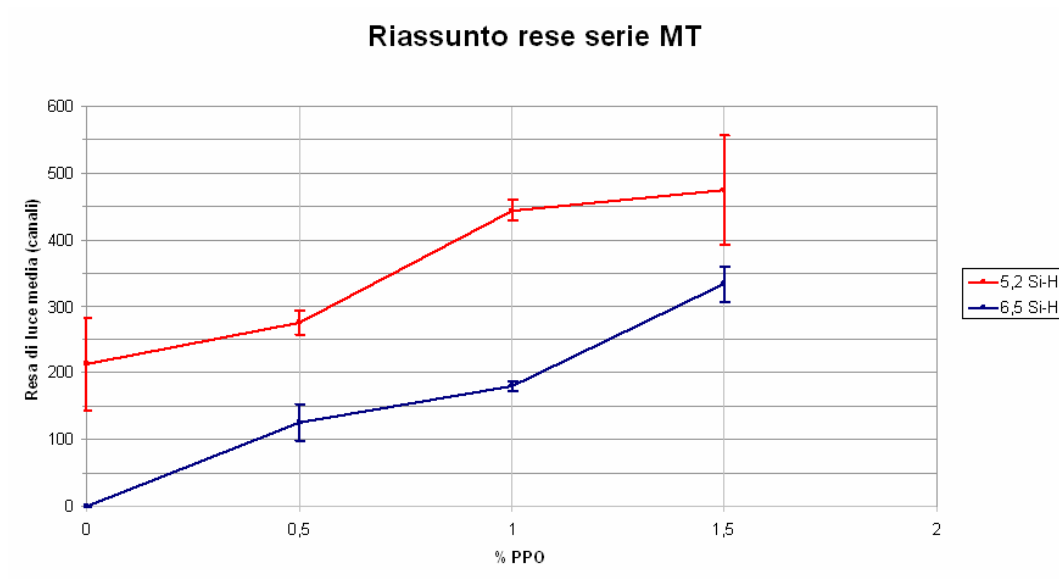


Figura 3.29: Riassunto delle misure effettuate sulla serie MT.

camp.	picco	FWHM	%
MT001	156	135	87 %
MT002	293	191	65%
MT003	189	168	88%
MT004	261	212	82%
MT005	296	183	62%
MT006	267	179	67%
MT007	469	240	51%
MT008	421	244	58%
MT009	443	250	56%
MT010	398	242	61%
MT011	461	234	51%
MT012	562	330	59%
MT013	-	-	-
MT014	-	-	-
MT015	< 96	-	-
MT016	112	108	96%
MT017	107	100	93%
MT018	160	138	86%
MT019	187	138	73%
MT020	173	140	81%
MT021	183	175	96%
MT022	333	241	72%
MT023	306	242	79%
MT024	359	174	48%

Tabella 3.10: Serie MT - rese di luce con sorgente ^{241}Am . Spettri normalizzati a 100 s di esposizione.

camp.	picco	FWHM	%
SB001	147	93	63%
SB002	162	97	60%
SB003	152	93	61%
SB004	236	154	65%
SB005	413	271	65%
SB006	335	201	60%
SB007	601	275	45%
SB008	646	266	41%
SB009	725	308	42%
SB010	696	468	67%
SB011	819	436	53%
SB012	764	378	49%
SB013	< 80	-	-
SB014	223	136	60%
SB015	833	385	46%
SB016	729	308	42%
SB017	766	322	42%
SB018	696	293	42%
SB019	840	344	40%
SB020	756	337	45%
SB021	-	-	-
SB024	377	193	51%
SB025	312	168	54%
SB026	856	316	37%
SB027	824	343	42%
SB028	280	161	58%
SB029	294	190	65%
SB030	-	-	-

Tabella 3.11: Serie SB - rese di luce con sorgente ^{241}Am . Spettri normalizzati a 100 s di esposizione.

Serie SB Anche se con rese inferiori al riferimento (spettri 3.31-3.34), questa serie dà risultati migliori della precedente. I parametri interessanti sono il tipo di catalizzatore utilizzato e la concentrazione di fenile: per entrambi non è possibile identificare una scelta esclusiva in quanto tenendo fisso un parametro non si riesce ad individuare un andamento dell'altro. A questo contribuiscono sicuramente le fluttuazioni all'interno delle serie, legate probabilmente a delle disomogeneità dei materiali. Le stesse si rispecchiano nella forma degli spettri che spesso si allontana dalla caratteristica forma gaussiana. Sono stati prodotti anche alcuni campioni di spessore maggiore con e senza Gadolinio. Nei campioni con Gadolinio si ha ancora una volta un notevole ingiallimento della matrice che causa un forte quenching. Anche negli altri casi, tuttavia, la luce emessa per scintillazione risulta fortemente assorbita, dando luogo a valori di resa molto bassi, che portano a concludere (fig. 3.30, tab. 3.11) che ancora non è stato raggiunto un buon rapporto produzione di luce/trasporto attraverso il materiale spesso.

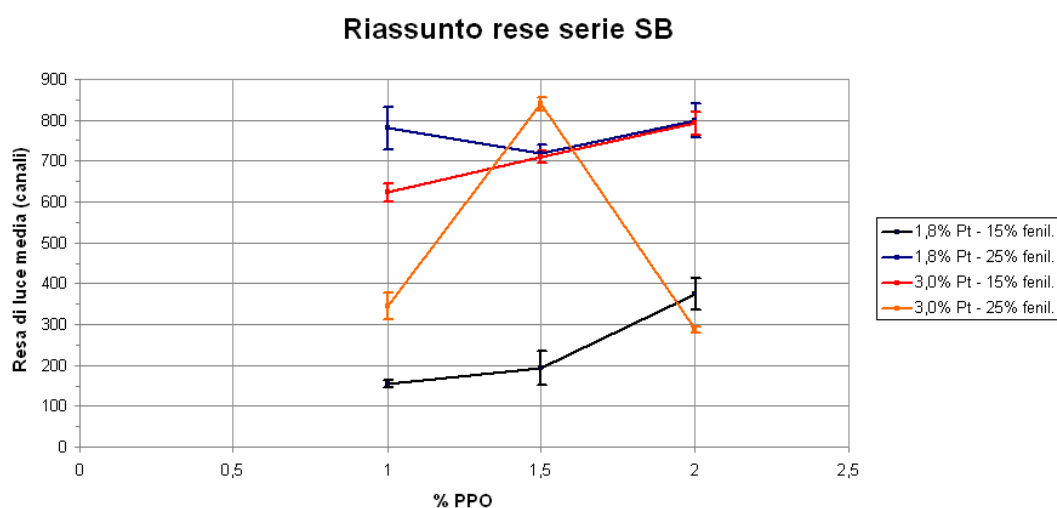


Figura 3.30: Riassunto delle misure effettuate sulla serie MT.

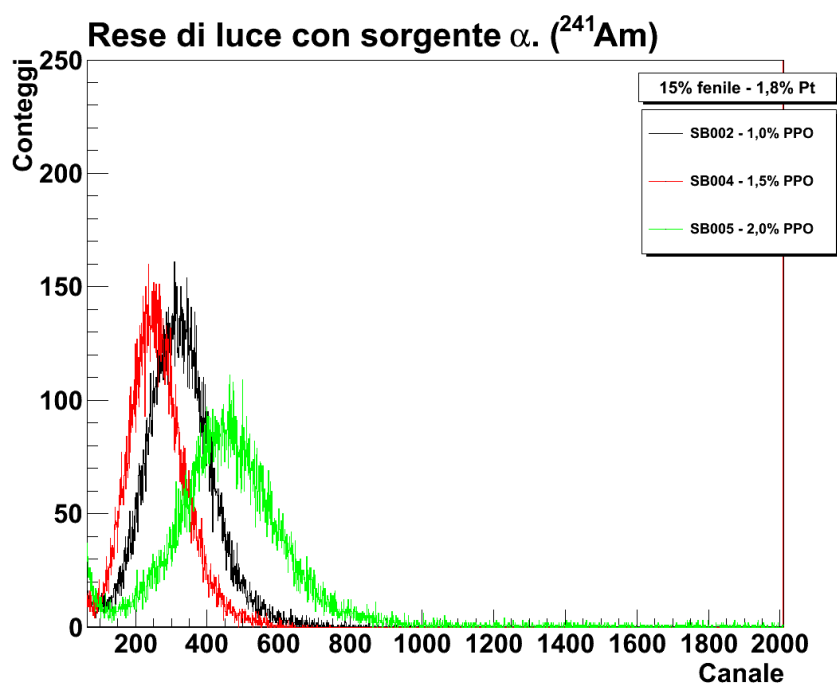


Figura 3.31: Gli spettri più significativi della serie SB.

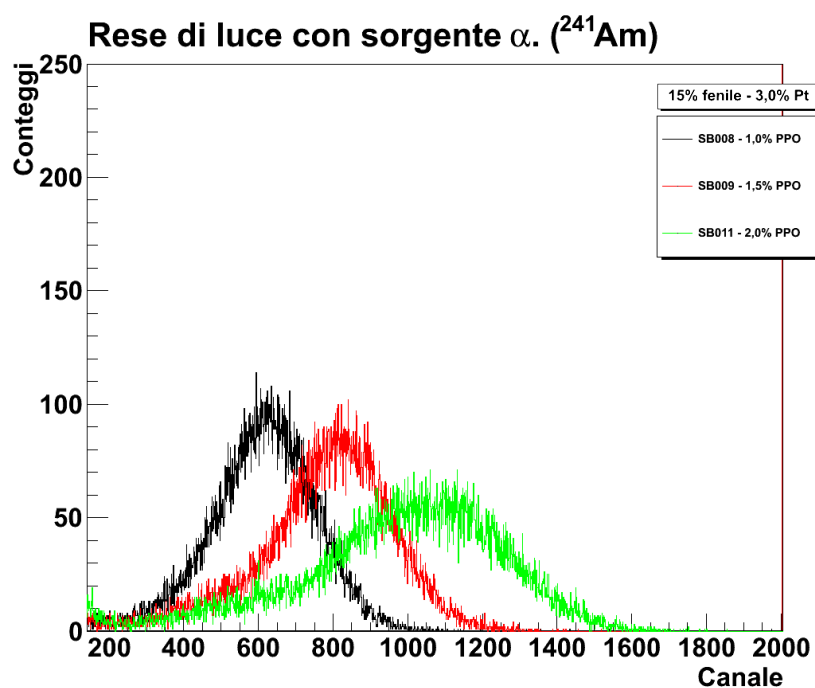


Figura 3.32: Gli spettri più significativi della serie SB.

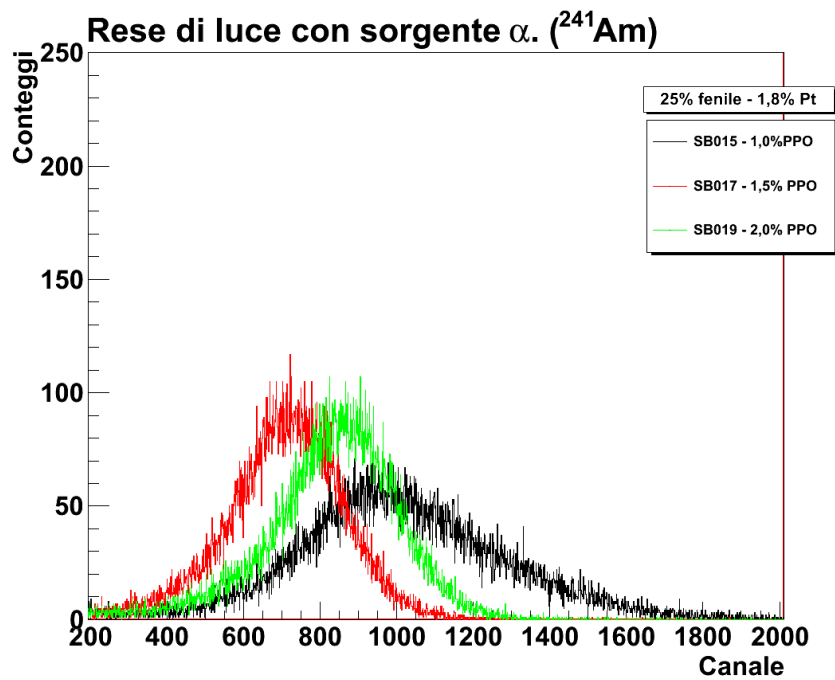


Figura 3.33: Alcuni spettri particolari della serie SB.

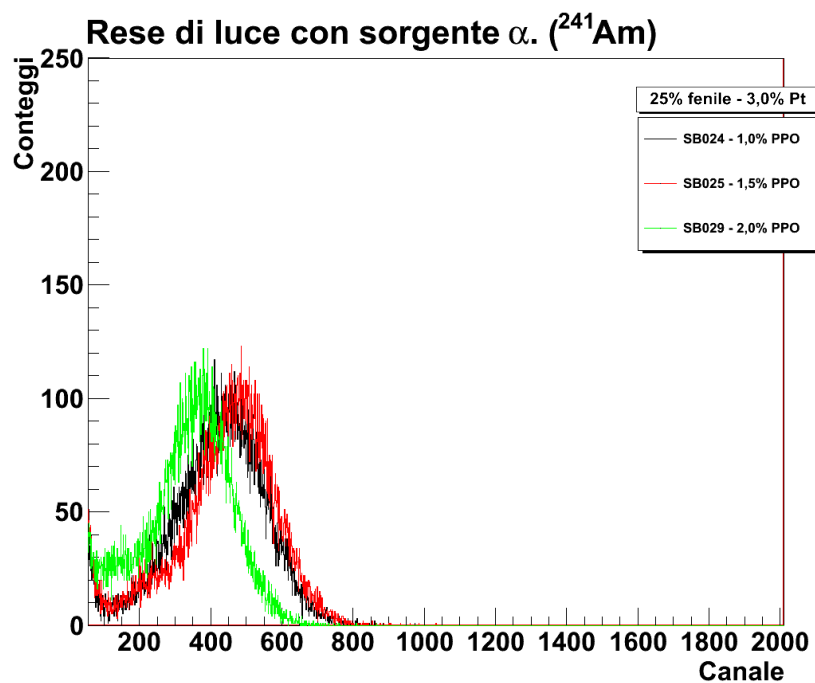


Figura 3.34: Alcuni spettri particolari della serie SB.

Serie BBOT Come la prima analizzata, anche questa serie presenta campioni con una resa di luce paragonabile a quella del riferimento. In questo caso la presenza del fluoroforo BBOT dovrebbe favorire l'emissione luminosa a lunghezze d'onda di circa $\sim 430 \text{ nm}$, in un intervallo in cui il fotomoltiplicatore è più sensibile rispetto al picco di emissione del solo PPO ($350 - 400 \text{ nm}$). Quanto detto è rispecchiato dai dati ottenuti (figure 3.35 e 3.35), dove si osserva anche che ad una maggiore concentrazione di fenile corrisponde una maggiore efficienza, in contrasto con quanto osservato nella serie K. Siccome è nella struttura energetica dei gruppi fenile che ha luogo la luminescenza, si pensa che questo risultato sia più ragionevole dei precedenti e che questa sia una buona configurazione su cui continuare a lavorare. L'aspetto principale da migliorare riguarda la forma degli spettri che, oltre a presentare quasi sempre delle strutture non gaussiane, a volte sono composti da due picchi adiacenti (particolarmente evidenti in figura 3.37). Si pensa di poter attribuire queste osservazioni a disomogeneità della struttura polimerica o a difetti superficiali dei campioni, aspetti che si cercherà di analizzare più dettagliatamente nelle misure future (anche con verifiche al microscopio).

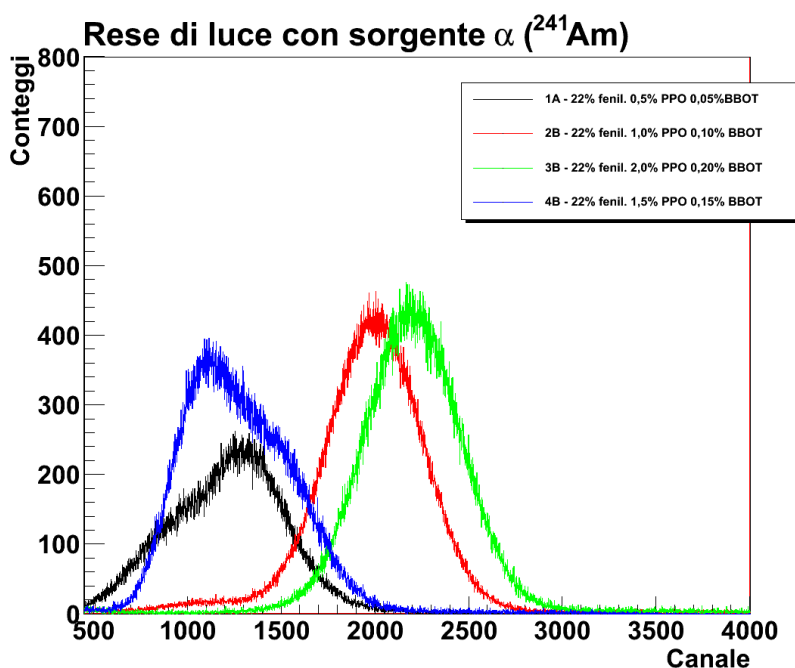


Figura 3.35: Gli spettri più significativi della serie BBOT (22 % fenile).

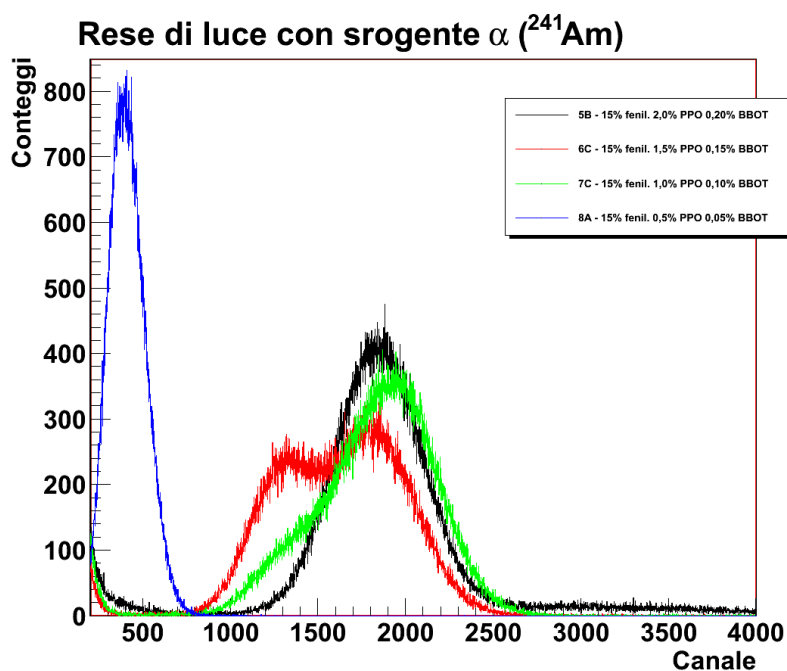


Figura 3.36: Gli spettri più significativi della serie BBOT (15 % fenile).

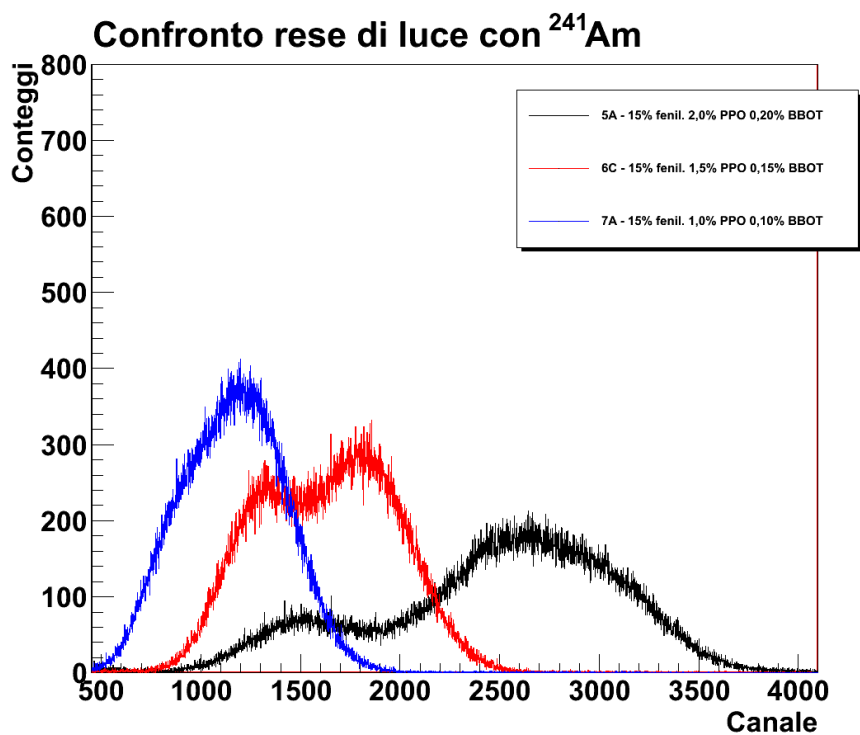


Figura 3.37: Alcuni spettri particolari della serie BBOT.

camp.	picco	FWHM	%
1A	1290	-	-
1B	905	599	66%
2A	770	366	48%
2B	2015	570	28%
3A	1915	670	35%
3B	2200	590	27%
4A	890	360	40%
4B	1200	-	-
5A	1474 - 2718	-	-
5B	1850	570	31%
5C	1950	492	25%
6A	1048	550	52%
6B	820	326	40%
6C	1322 - 1840	-	-
7A	1160	610	53%
7B	860	400	47%
7C	1967	450	23%
8A	409	248	60%
8B	356	206	58%

Tabella 3.12: Serie BBOT - rese di luce con sorgente ^{241}Am . Spettri normalizzati a 100 s di esposizione.

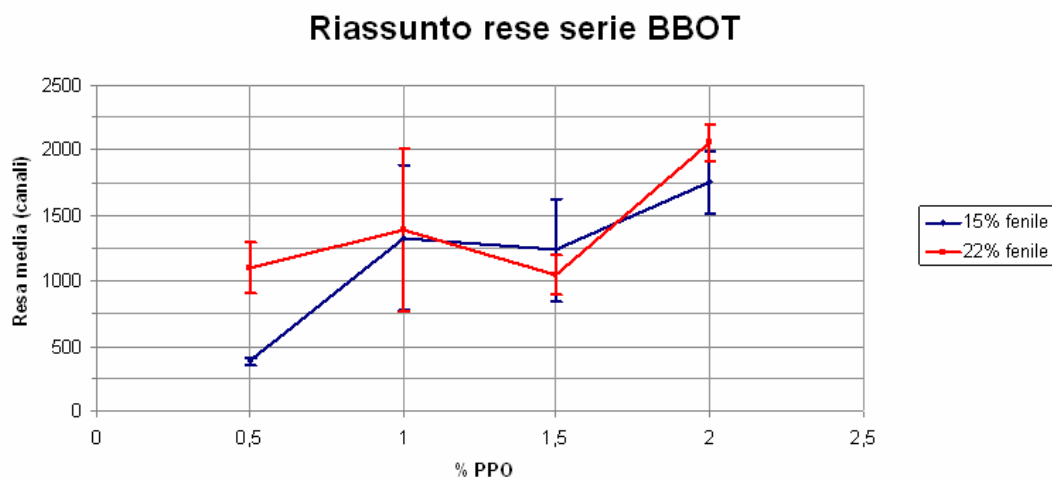


Figura 3.38: Riassunto delle misure effettuate sulla serie BBOT.

3.5.4 Misure con sorgenti γ

La resa di luce è stata anche valutata con sorgenti di raggi gamma ed X. Queste sonde, a differenza delle particelle alfa, sono molto più penetranti e forniscono informazioni su tutto lo spessore del campione. I processi principali di interazione con i materiali sono l'effetto fotoelettrico, l'effetto Compton e la produzione di coppie. La frazione di fotoni soggetti ad uno di questi processi nel passaggio attraverso uno scintillatore di spessore d , si può esprimere come:

$$f = 1 - e^{-\mu d} \quad (3.1)$$

dove μ è il coefficiente di attenuazione totale dato dalla somma dei tre coefficienti corrispondenti ai singoli processi. Ognuna di queste quantità dipende fortemente dall'energia della radiazione e dalla natura dell'assorbitore. Per questo motivo si definiscono i coefficienti di attenuazione di massa (μ/ρ , dove ρ è la densità dell'assorbitore) che, nel caso dell'effetto fotoelettrico dipende fortemente dallo Z del materiale assorbitore, mentre per l'effetto Compton dipende dal rapporto Z/A che è pari a $\sim 0,45$ per quasi tutti i materiali. In base a quanto detto, nel caso di scintillatori organici caratterizzati da basso numero atomico dei costituenti (C, H), si avrà che l'assorbimento fotoelettrico è pressoché insignificante per $E_\gamma > 50 \text{ keV}$ e la diffusione Compton è il processo di assorbimento principale fino ad $E_\gamma \sim 20 \text{ MeV}$ energia alla quale diviene apprezzabile la produzione di coppie [22]. Per questo motivo gli spettri osservati non presentano un picco definito ma la caratteristica curva Compton con una spalla (*Compton Edge*) proporzionale all'energia del fotone incidente.

Gli spettri seguenti (3.39-fig:gamma4) mostrano la risposta di vari campioni ai raggi gamma delle sorgenti di ^{241}Am e ^{60}Co .

Si nota che i rapporti tra le rese relative tra i diversi campioni sono costanti al variare del tipo sorgente, inoltre gli spettri con sorgente di Americio hanno un'estensione in canali molto più limitata dei corrispondenti spettri da Cobalto. Questo è coerente col fatto che i fotoni dell'Americio hanno un'energia molto inferiore di quelli del Cobalto ($\sim 60 \text{ keV}$ contro $\sim 1,2 \text{ MeV}$) e quindi l'energia trasferita in luce di scintillazione è molto inferiore. Il fatto di riuscire ad osservare gli spettri dell'Americio è sintomo di una sufficiente sensibilità dei materiali anche a 60 keV , tuttavia test con sorgenti X di energia inferiore hanno dato risultati negativi.

Confrontando i dati mostrati con le rese alfa dei paragrafi precedenti si osserva una buona consistenza dei dati: i campioni che presentavano una

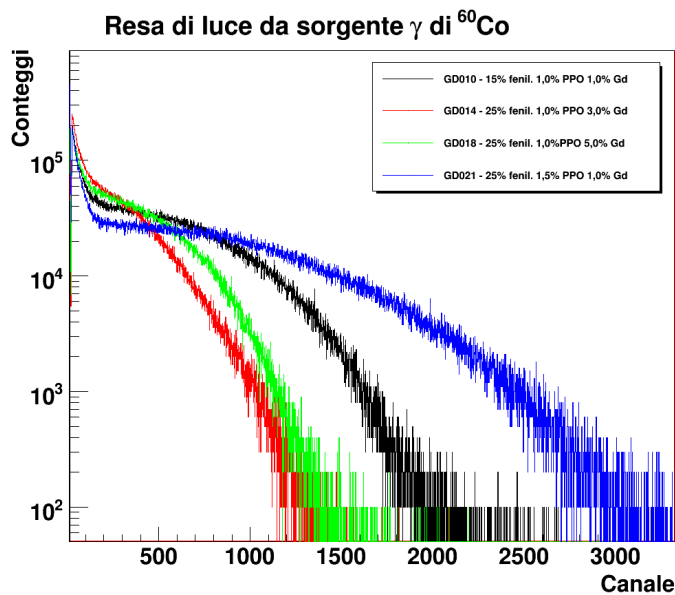


Figura 3.39: Resa di luce con sorgente γ di ^{60}Co per alcuni campioni della serie GD.

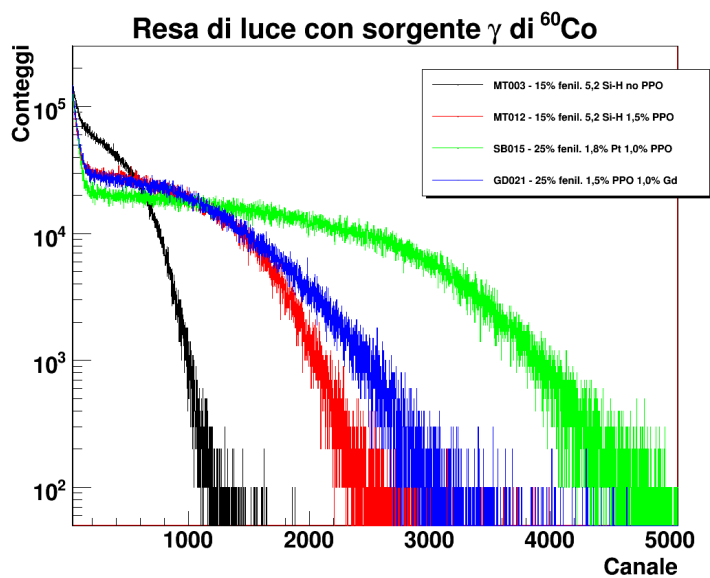


Figura 3.40: Resa di luce con sorgente γ di ^{60}Co per alcuni campioni delle serie MT, SB e GD.

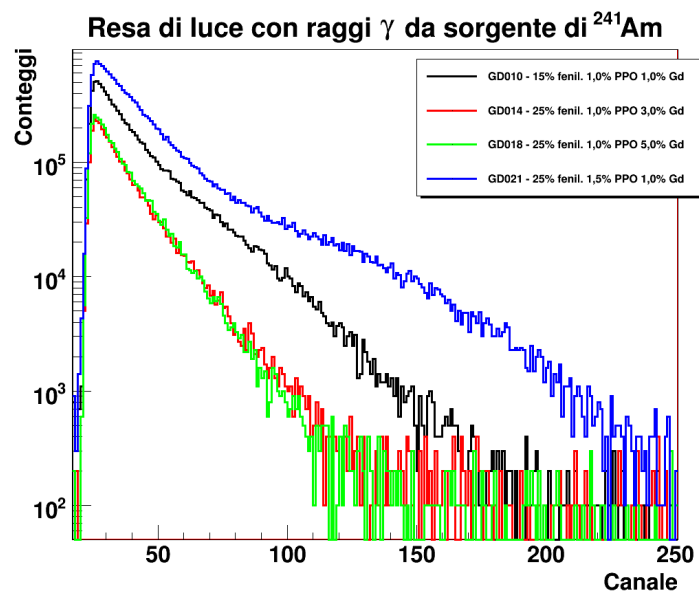


Figura 3.41: Resa di luce con sorgente γ di ^{241}Am per alcuni campioni della serie GD.

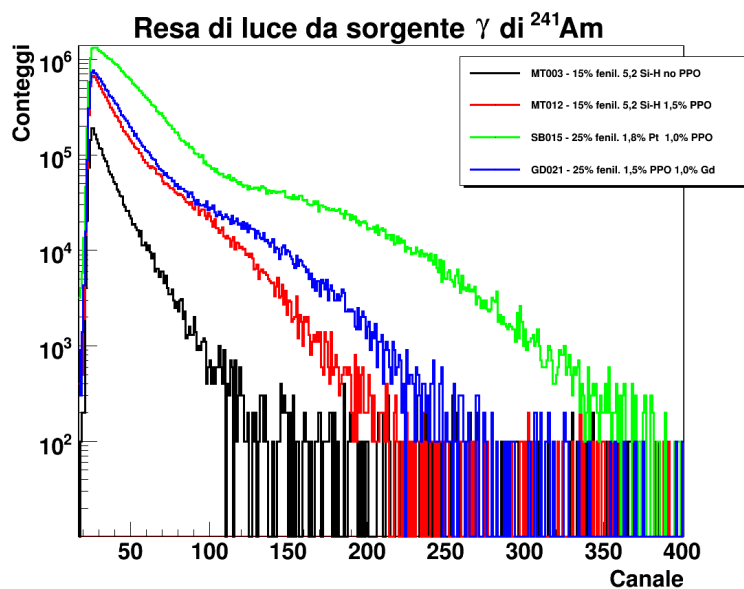


Figura 3.42: Resa di luce con sorgente γ di ^{241}Am per alcuni campioni delle serie MT, SB e GD.

migliore resa di luce con particelle alfa, mantengono questa proprietà anche per la radiazione gamma. Questo risultato non è scontato visti i differenti meccanismi di interazione delle due radiazioni con i materiali, e visto che con la radiazione gamma si va ad interessare l'intero scintillatore e non solo i suoi strati più superficiali. Come osservato precedentemente, i campioni più spessi della serie SB non hanno una buona uscita di luce.

Capitolo 4

Misure IBIL

Ci occupiamo ora dei risultati di una misura IBIL (*Ion Beam Induced Luminescence*) effettuata presso l'acceleratore CN dei Laboratori Nazionali di Legnaro il 3 *Febbraio 2009*. Questo tipo di analisi consiste nel bombardare i campioni con un fascio di ioni noti, misurando poi lo spettro di fluorescenza in funzione del tempo di esposizione. In questo caso sono stati misurati alcuni campioni della serie K e tutti quelli della serie BBOT con un fascio di particelle alfa. Per una descrizione più dettagliata sulle tecniche di *Ion Beam Analysis* si veda [28].

4.1 Apparato Sperimentale

L'acceleratore CN dei Laboratori Nazionali di Legnaro è un Van Der Graaf da 7 MV utilizzato principalmente per studi di fisica dei materiali, fisica applicata e fisica dei neutroni. La macchina può produrre fasci continui o pulsati di ioni ^1H , ^2H , ^3He , ^4He con carica singola o doppia, oppure ioni ^{15}N con carica doppia. L'energia massima dipende ovviamente dallo stato di carica e varia da 7 MeV per gli ioni a singola carica ai 14 MeV degli ioni a carica doppia. Per la misura in questione si è utilizzato un fascio continuo di $^4\text{He}^+$ ad un'energia di 4,5 MeV, con correnti molto stabili attorno ai 5 nA. Le dimensioni del fascio sono state misurate esponendo uno strato sottile di carta per alcuni minuti e sono risultare inferiori ad $1 \times 1 \text{ mm}$.

I campioni sono stati posizionati nella camera a vuoto di una delle linee sperimentali in cui è stato installato anche il sistema ottico per la misura. Si tratta di uno spettrometro a reticolo Acton SP300 sensibile alla luce visibile e al vicino infrarosso ($\lambda \simeq 200 \div 800 \text{ nm}$) con banda passante $\Delta\lambda = 15 \text{ nm}$. Questo

strumento, schematizzato in 4.1 e mostrato in figura 4.2, è equipaggiato con due tipi di sensori: un sensore CCD ed un “photon counter”.

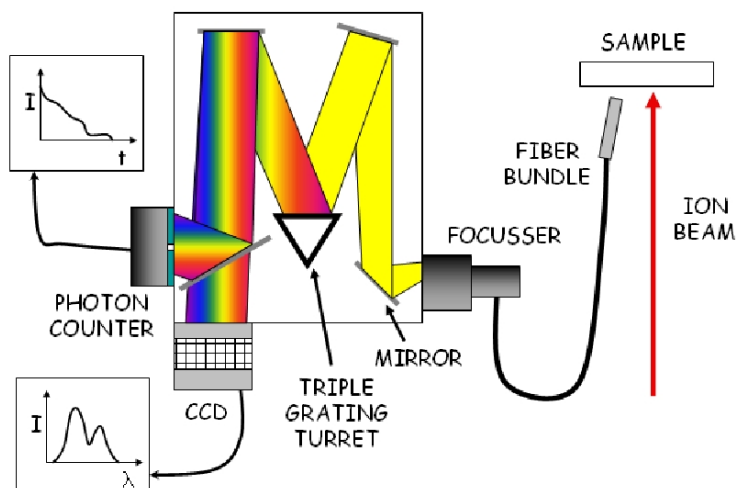


Figura 4.1: Schema dello spettrometro SP300.

Il flusso luminoso entra nello spettrometro attraverso una fenditura che permette di regolarne l'intensità, tramite un sistema di specchi viene poi deviato verso una torretta motorizzata che monta tre diversi reticoli di diffrazione. A seconda della precisione desiderata se ne seleziona uno, nella misura effettuata si è utilizzato quello da 150 *linee/mm*. A questo punto la luce emessa dallo scintillatore è separata nelle sue componenti cromatiche e può essere deviata, tramite uno specchio motorizzato verso uno dei due sensori. Il sensore CCD è composto da una matrice di 1340 x 100 pixels, ognuno di $20 \times 20 \mu m$ e viene utilizzato per “fotografare” lo spettro completo di fluorescenza. Per migliorare la sensibilità dello strumento, tale sensore viene mantenuto freddo alla temperatura dell'Azoto liquido. Tutti gli spettri sono stati acquisiti con tempi di esposizione di un secondo.

L'altro strumento di rivelazione di cui è equipaggiato lo spettrometro è un “photon counter”, il cui compito è contare il numero di fotoni che lo colpiscono con una energia fissata; in questo modo si ottiene l'andamento dell'intensità della luce emessa dallo scintillatore (alla lunghezza d'onda selezionata) in funzione del tempo. In pratica si riesce a valutare l'evoluzione dell'emissione luminosa al crescere del danneggiamento indotto dalla radiazione. Per questo tipo di misura si sono mantenuti tempi di esposizione di 100 secondi con $\Delta t = 1 s$, scegliendo come lunghezza d'onda quella del picco dello spettro di emissione. In questa configurazione lo spettrometro viene anche detto

monocromatore.

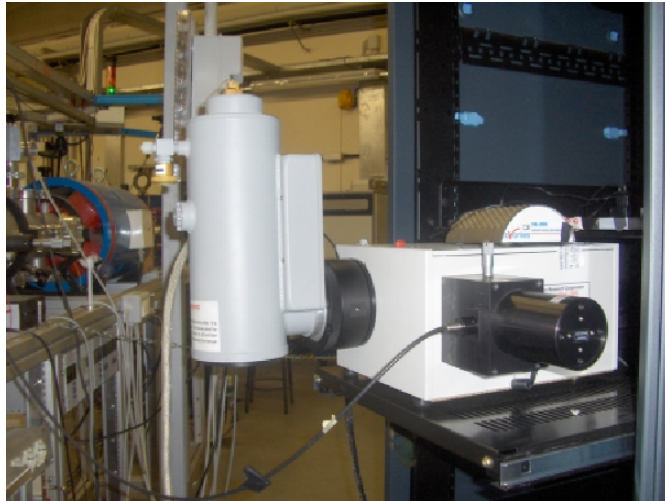


Figura 4.2: Lo spettrometro SP300.

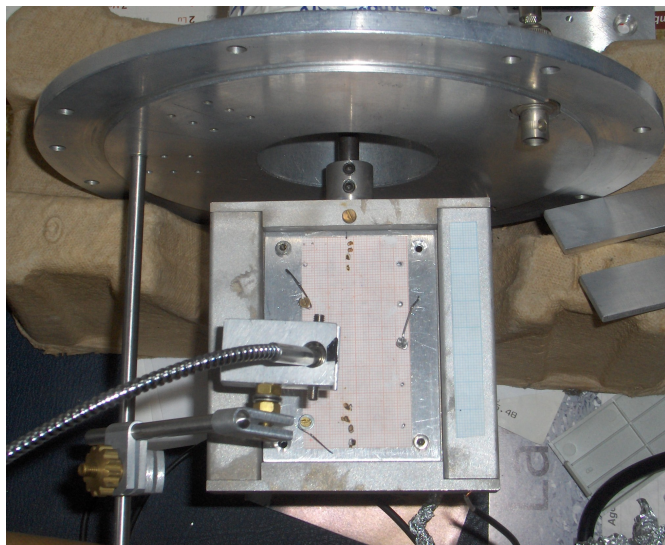


Figura 4.3: Il portacampioni.

L'acquisizione dei dati e la gestione dei controlli dello spettrometro (movimento reticolo e specchi) avvengono tramite un PC posizionato nella sala controllo dell'acceleratore. Ogni sensore viene gestito da un programma dedicato con il quale si interfaccia tramite apposite schede elettroniche.

Per raccogliere la carica depositata dal fascio, ogni campione è stato rivestito con carta alluminata. Questa è a contatto con la parte metallica del porta-campioni (fig. 4.3) che, a sua volta, è collegata ad un integratore di carica. In questo modo si evita il riscaldamento eccessivo del campione e si può misurare la quantità di ioni che sono effettivamente arrivati sulla superficie dello scintillatore in esame. Sulla carta è stata aperta una piccola finestra (circa $5mm$) ricoperta con una griglia metallica, questo consente di fare incidere il fascio sulla superficie del campione, controllandone l'intensità. Nello stesso porta-campioni viene installata la fibra ottica da vuoto che serve a raccogliere la luce emessa dallo scintillatore e a trasferirla verso lo spettrometro posto fuori dalla camera di scattering.

4.2 Analisi dati e risultati

I campioni analizzati sono:

- Serie K: K003, K004, K008, K011, K013, K016, K020, K023;
- Serie BBOT: 1A, 2A, 2B, 3B, 6C, 7C, 5B, 4B, 8A, 8A;

scelti tra quelli con migliore resa di luce nelle prove illustrate in precedenza.

La misura IBIL è importante perché si posiziona ad un livello intermedio tra la valutazione degli spettri di emissione fatti con lampade alogene ed i test di resa di luce con sorgenti. L'utilizzo di ioni carichi accelerati, infatti, equivale alle misure fatte con sorgente, ma con intensità molto maggiori e con una definizione molto precisa della posizione di incidenza. Utilizzando lo spettrometro, inoltre, si acquisiscono molte più informazioni di quelle ottenibili con un singolo fotomoltiplicatore circa la forma dello spettro di emissione, come se si operasse con uno spettrofotometro.

Nell'utilizzo di questi materiali come rivelatori in esperimenti di fisica nucleare, non saranno più necessarie informazioni così dettagliate e la lettura di un singolo segnale dal fotomoltiplicatore sarà sufficiente. Tuttavia questo sarà possibile soltanto se il materiale sarà stato ben caratterizzato e si conoscerà la sua risposta luminosa in funzione del tipo di radiazione incidente e della sua energia.

L'elevato flusso di carica incidente sul campione consente anche di esporre i materiali ad una dose di radiazione molto maggiore di quella a cui sono esposti a regime quando utilizzati come rivelatori: osservando l'evoluzione dell'intensità luminosa nel tempo ad una lunghezza d'onda fissata, è possibile fare valutazioni sul danneggiamento da radiazione dei materiali.

4.2.1 Spettri di emissione

Per controllare le variazioni del fondo degli strumenti sono stati acquisiti numerosi spettri di fondo il cui valore medio è stato poi sottratto agli spettri sperimentali. Questi ultimi sono anche stati corretti secondo i valori di calibrazione dello spettrometro per tenere conto della risposta dello strumento alle differenti lunghezze d'onda. Nel seguito consideriamo i risultati normalizzati al picco di emissione, questo permette di fare confronti di forma e valutare le lunghezze d'onda particolarmente interessanti alle quali il fotomoltiplicatore raccoglierà la maggior parte della luce. Nelle figure seguenti (4.4 -4.9) si riporta una panoramica degli spettri di luminescenza misurati prima e dopo l'esposizione prolungata alla radiazione.

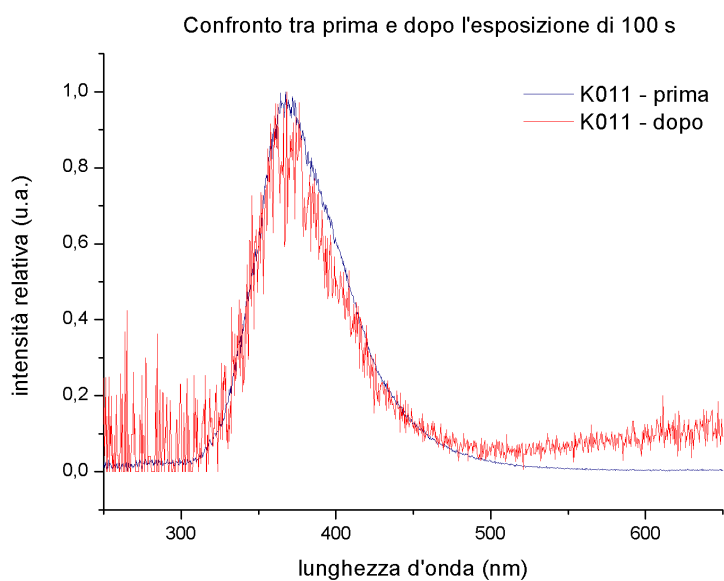


Figura 4.4: Spettri IBIL del campione K011 prima e dopo l'esposizione a 100 s di fascio.

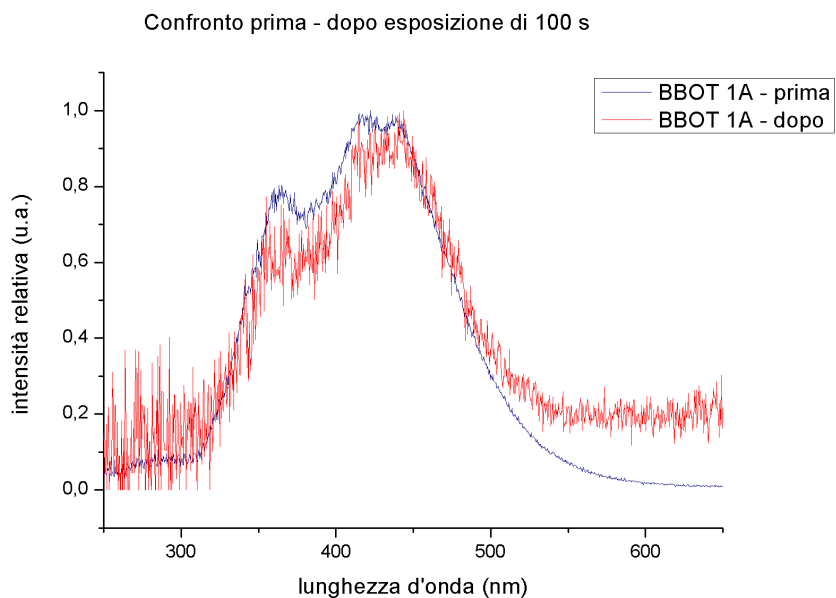


Figura 4.5: Spettri IBIL del campione 1A prima e dopo l'esposizione a 100 s di fascio.

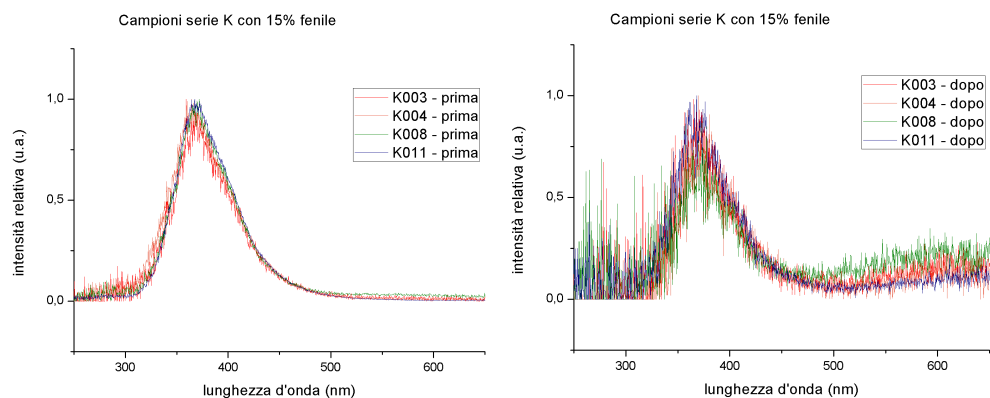


Figura 4.6: Campioni K con 15% di fenile a differenti concentrazioni di PPO; spettri prima (sinistra) e dopo (destra) l'esposizione di 100 s.

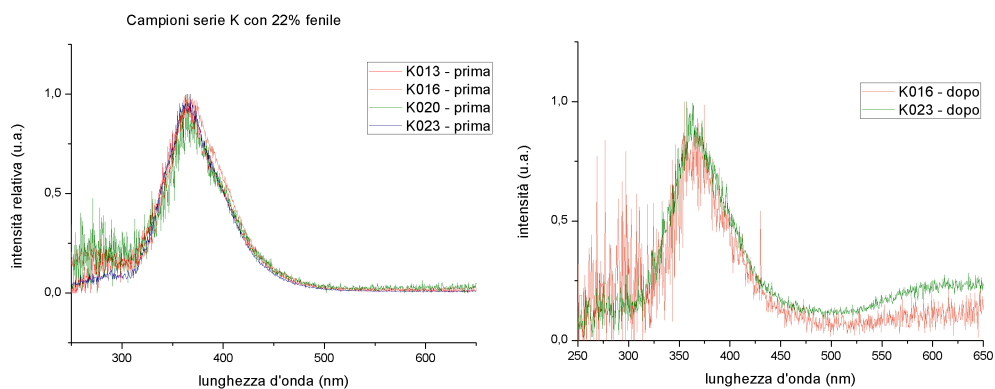


Figura 4.7: Campioni K con 22% di fenile a differenti concentrazioni di PPO; spettri prima (sinistra) e dopo (destra) l'esposizione di 100 s.

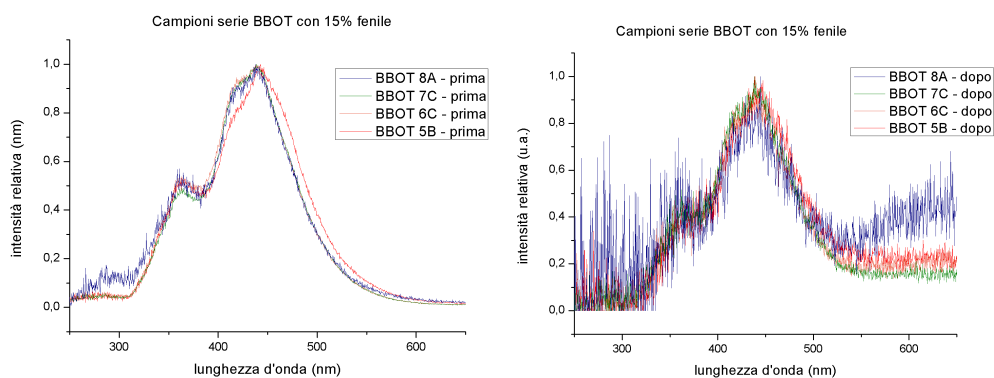


Figura 4.8: Campioni BBOT con 15% di fenile a differenti concentrazioni di PPO e BBOT; spettri prima (sinistra) e dopo (destra) l'esposizione di 100 s.

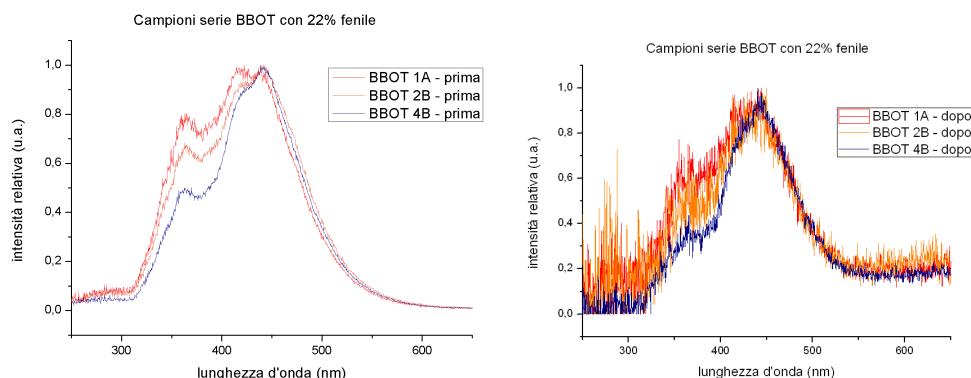


Figura 4.9: Campioni BBT con 22% di fenile a differenti concentrazioni di PPO e BBT; spettri prima (sinistra) e dopo (destra) l'esposizione di 100 s.

Nei grafici mostrati è possibile osservare i picchi di emissione del PPO e del BBT: mentre il primo sembra costituito da un unico massimo di emissione, il BBT presenta almeno due strutture differenti a 350 nm e 450 nm. In entrambi i casi, comunque, si nota una buona omogeneità nelle forme degli spettri al variare dei parametri principali di concentrazione.

Anche il degrado sembra agire in modo uniforme sulle varie lunghezze d'onda, per cui non si osservano spostamenti macroscopici del picco di emissione; solo nel caso dei campioni con BBT sembra predominare un danneggiamento delle componenti a più bassa lunghezza d'onda, non sufficiente comunque a nascondere il picco secondario.

4.2.2 Degrado da esposizione

I grafici seguenti (4.10 -4.13) mostrano l'andamento dell'intensità luminosa emessa dai campioni in funzione del tempo di esposizione. Il danneggiamento dovuto alla radiazione incidente causa un degrado esponenziale dell'emissione, fatto che viene ben evidenziato nelle serie temporali. Le lunghezze d'onda selezionate corrispondono al massimo di emissione dello spettro acquisito, quindi a seconda dei casi, al picco di emissione del PPO o del BBT. L'evoluzione delle curve analizzate non presenta particolari anomalie e appare difficile identificare degli andamenti in funzione del tipo di matrice o di fluoroforo presenti nel campione. Dal confronto dei vari spettri con l'andamento dell'NE102 sembra che solo il campione BBT-3B abbia una resistenza paragonabile a quella del riferimento, tutti gli altri subiscono un danneggiamento maggiore.

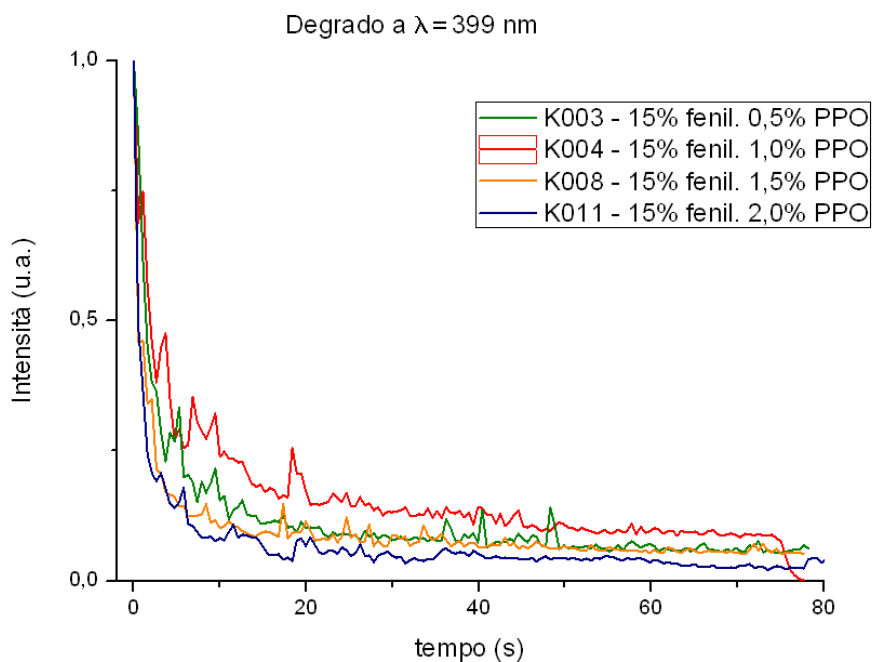


Figura 4.10: Degrado campioni serie K con 15% di fenile.

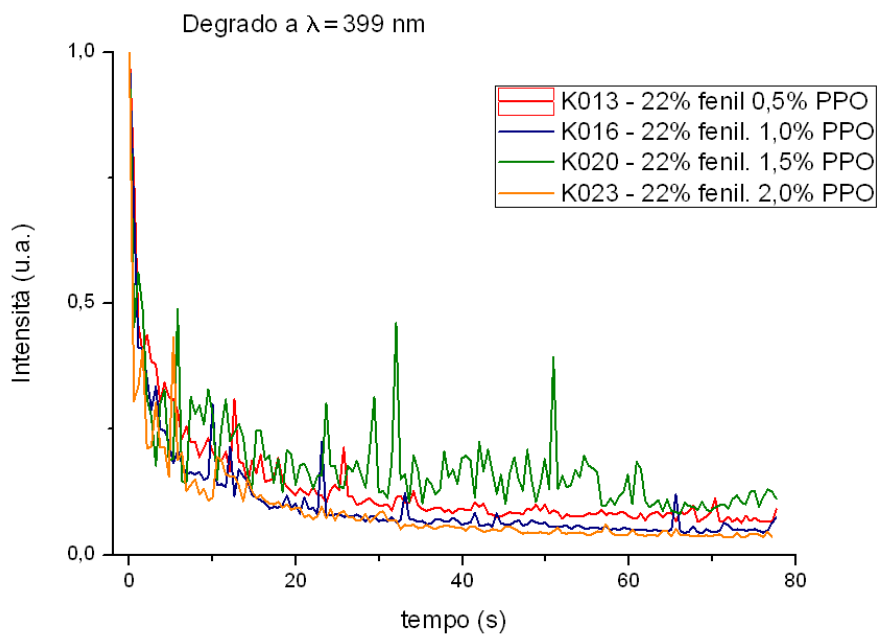


Figura 4.11: Degrado campioni serie K con 22% di fenile.

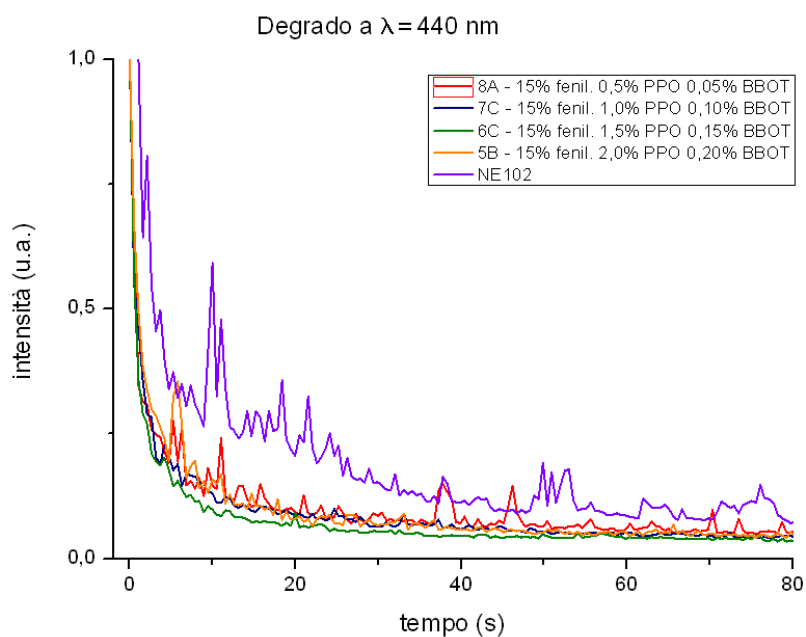


Figura 4.12: Degrado campioni serie BBOT con 15% di fenile e confronto con NE102.

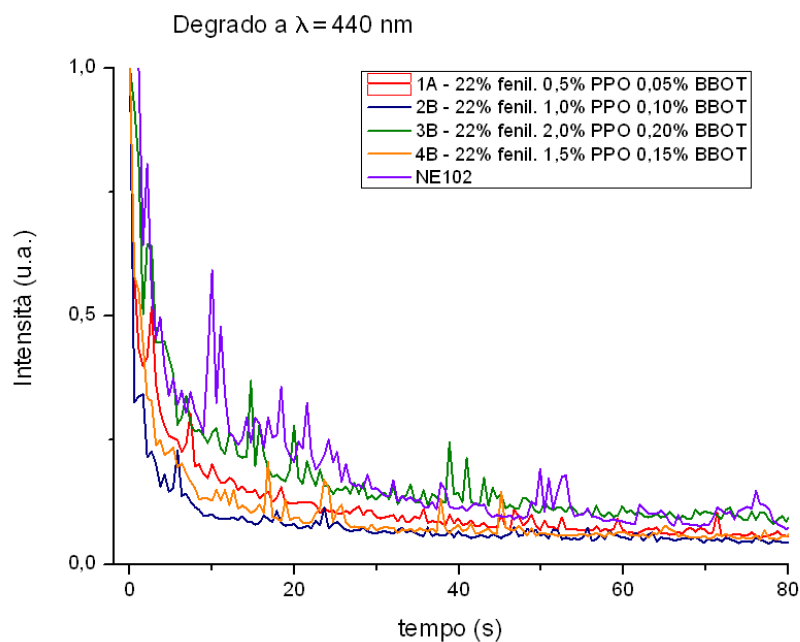


Figura 4.13: Degrado campioni serie BBOT con 22% di fenile e confronto con NE102.

Capitolo 5

Misure con sorgenti di neutroni

Una volta individuato un composto dalle caratteristiche soddisfacenti a livello di emissione di luminescenza, ci occupiamo di verificare il funzionamento dei passaggi intermedi che dovrebbero portare alla rivelazione dei neutroni. In questo capitolo mostriamo il risultato di alcune misure necessarie per la caratterizzazione di materiali scintillanti esposti a neutroni.

5.1 Misure di raggi X dai campioni della serie Gd

Come già detto, per i campioni drogati con Gadolinio, il processo di rivelazione dei neutroni veloci passa attraverso due stadi principali:

1. la cattura dei neutroni da parte del Gadolinio e la successiva emissione di raggi X;
2. l'assorbimento dei fotoni X emessi e la loro conversione in luce da parte dello scintillatore.

Dal momento che i raggi X vengono prodotti all'interno dello stesso materiale scintillante, il processo di riassorbimento e conversione in luce dovrebbe essere ad alta efficienza. Tuttavia si è osservato che la resa di luce dei campioni con Gadolinio disponibili è bassa, inoltre dalle misure di spessore si vede come le dimensioni dei cilindretti siano paragonabili se non inferiori al libero cammino medio dei raggi X prodotti al loro interno ($\lambda \simeq 3 \text{ cm}$ [29]). Ci si aspetta quindi che una parte di questa radiazione X fuoriesca dal materiale. Per testare questa ipotesi e dimostrare quindi il funzionamento del primo stadio di rivelazione, si è proceduto alla misura dei raggi X emessi dal campione

con un rivelatore apposito al Cadmio-Tellurio.

Subito dopo la cattura di un neutrone moderato da parte del ^{157}Gd (che è quello con sezione d'urto maggiore) si avrà un'emissione di raggi gamma in cascata dal nucleo eccitato. Alla fine di questa cascata possono essere emessi o un fotone da 80 keV di energia o un elettrone di conversione con energia cinetica di 30 keV (80 keV meno 50 keV di energia di legame). Nel secondo caso l'atomo si riporta nella configurazione stabile emettendo raggi X da 42 keV o 8 keV

5.1.1 L'apparato di misura

Per questo tipo di test si è utilizzata la sorgente di neutroni di *AmBe* illustrata in 1.2 opportunamente moderata con alcuni centimetri di HDPE. Lo figura 5.1 illustra le condizioni sperimentali.

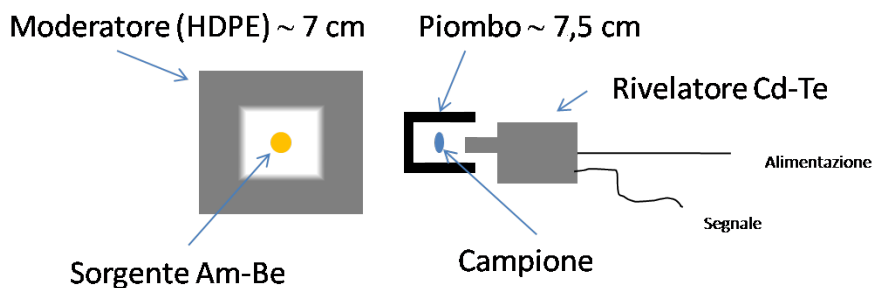


Figura 5.1: Illustrazione schematica dell'apparato di misura.

Il rivelatore XR-100T

Il rivelatore XR-100T è un dispositivo a semiconduttore per la rivelazione di raggi X in un ampio intervallo di energie (da pochi keV fino ad alcune centinaia di keV).

I raggi X (o gamma) interagiscono con gli atomi del Cd-Te (materiale di cui è composta tutta l'area sensibile del rivelatore) creando in media una coppia elettrone-lacuna ogni 4,43 eV di energia persa. A seconda dell'energia della radiazione incidente l'interazione sarà dominata dall'effetto fotoelettrico o dallo scattering Compton. La probabilità di fermare i fotoni incidenti (ovvero l'efficienza di rivelazione) cresce con lo spessore del Cd-Te. Per facilitare il processo di raccolta delle coppie elettrone-lacuna, viene applicata una differenza di potenziale di + 500 V. Per evitare che questo valore induca il



Figura 5.2: Il rivelatore Cd-Te utilizzato.

passaggio di correnti parassite elevate che porterebbero ad un surriscaldamento del rivelatore, la parte sensibile di Cd-Te e l'elettronica associata vengono raffreddate, per cui è possibile utilizzare questo rivelatore a temperatura ambiente.

Emissione di raggi X da shell atomiche

Illustriamo brevemente la nomenclatura spettroscopica per le shell atomiche e per i raggi X corrispondenti. Abitualmente si considera uguale a zero l'energia dell'elettrone libero e negativa quella degli elettroni legati. Quindi tanto più un elettrone si muove in prossimità del nucleo, tanto più negativa sarà la sua energia. La shell più interna (numero quantico principale $n=1$) viene detta K e corrisponde agli elettroni più legati in assoluto. Per $n=2,3,\dots$ (shell L, M,...) si osserva lo sviluppo della struttura fine, ovvero la presenza dei sottolivelli dovuti all'accoppiamento spin-orbita. Per la shell L, ad esempio, si avranno i sottolivelli L_1, L_2, L_3 che corrispondono rispettivamente agli stati dai numeri quantici: $l=0, j=1/2$; $l=1, j=1/2$; $l=1, j=3/2$. Quando un elettrone di una shell interna viene espulso, per esempio a causa di meccanismi di conversione interna o come elettrone Auger, lascia una lacuna che viene colmata da uno degli elettroni dei livelli energetici superiori. Non tutte le transizioni sono consentite: le regole di selezione della meccanica quantistica, stabiliscono quali transizioni sono possibili e con quale probabilità. La transizione prende il nome della shell che viene riempita, di conseguenza si parlerà di righe K, L, M per indicare che un elettrone è sceso, emettendo raggi X, nella shell K, L, M. La provenienza dell'elettrone è indicata dal pe-

dice α , β , ... o I, II, III nel caso si tratti di una transizione dal livello superiore o dai livelli successivi. La figura 5.3 mostra schematicamente quanto detto.

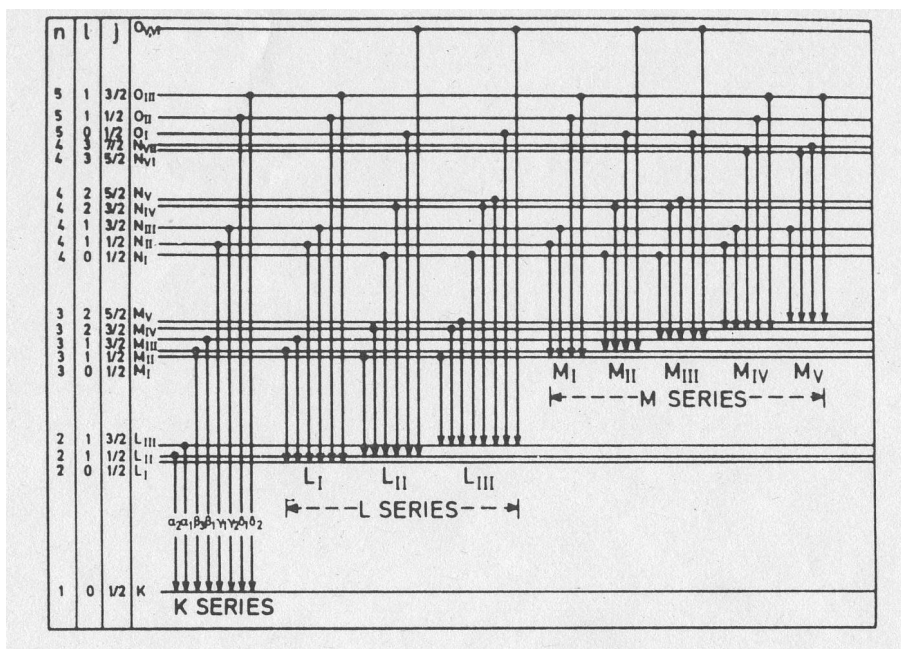


Figura 5.3: Transizioni X da shell atomiche.

5.1.2 Calibrazione del rivelatore

Il rivelatore utilizzato offre una buona risoluzione e un buon intervallo di sensibilità. Per poter valutare in modo quantitativo l'energia dei raggi X misurati, si è deciso di procedere alla sua calibrazione utilizzando due sorgenti note. La prima è di ^{57}Co , la seconda di ^{241}Am . Nelle tabelle 5.1-5.4, sono riportate le energie delle righe a maggiore intensità utilizzate per la calibrazione [30] [31]. Le sorgenti utilizzate emettono sia raggi X da shell atomiche che raggi gamma da shell nucleari. La nomenclatura introdotta nel paragrafo precedente può essere estesa al caso nucleare dove, tuttavia, sono i nucleoni a compiere il salto quantico che dà luogo alla radiazione. Data la linearità della risposta del rivelatore, associando ai picchi riconosciuti delle sorgenti utilizzate l'energia appropriata, si ottiene come funzione di calibrazione la seguente retta:

$$E = 0,298 \pm 0,019 \times Ch \quad (5.1)$$

En. (keV)	Int. (%)
26,344	2,400
32,183	0,017
33,196	0,126
42,735	0,005
43,423	0,074
59,541	35,9

Tabella 5.1: Principali transizioni γ da ^{241}Am .

En. (keV)	Int. (%)
13,761	1,07
13,946	9,6
16,816	2,5
17,061	1,5
17,751	5,7
17,992	1,37

Tabella 5.2: Principali transizioni X da ^{241}Am .

En. (keV)	Int. (%)
14,41	9,16
122,06	85,60

Tabella 5.3: Principali transizioni γ da ^{57}Co .

En. (keV)	Int. (%)
6,391	16,48
6,404	32,6
7,058	5,78

Tabella 5.4: Principali transizioni X da ^{57}Co .

Nelle figure 5.4 e 5.5 sono riportati rispettivamente gli spettri di calibrazione di ^{241}Am e ^{57}Co .

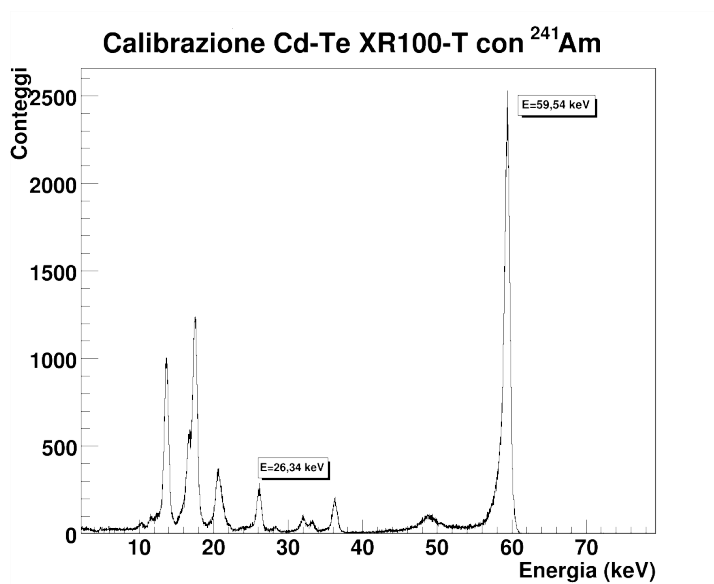


Figura 5.4: Spettro di calibrazione con sorgente di ^{241}Am .

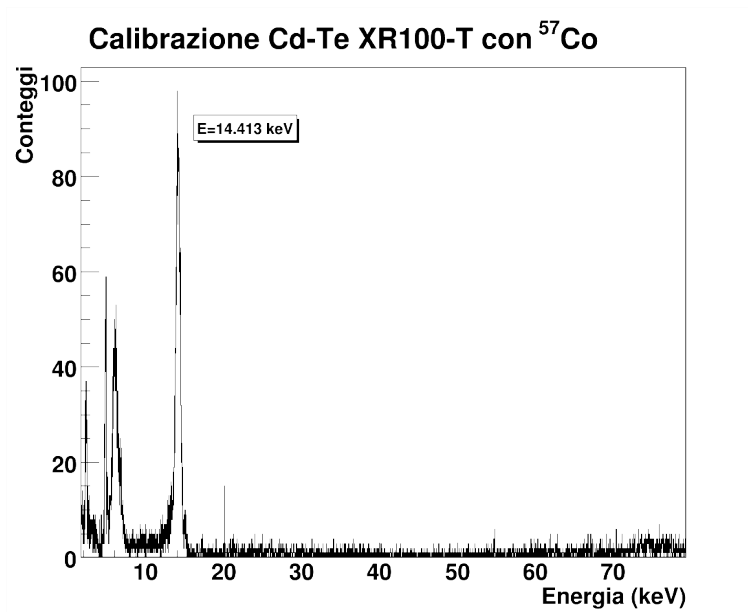


Figura 5.5: Spettro di calibrazione con sorgente di ^{57}Co .

5.1.3 Emissione di raggi X da cattura neutronica

Gli spettri 5.6-5.9 mostrano la risposta del Cd-Te quando fra la sorgente di neutroni ed il rivelatore vengono interposti di volta in volta diversi campioni: in particolare sono stati misurati i campioni GD010, GD014, GD018 con concentrazione di Gadolinio rispettivamente dell'1%, 3% e 5%. Per confronto è stato anche interposto il campione MT003 che non contiene Gadolinio. Si nota che all'aumentare della concentrazione di Gadolinio cresce il picco posizionato all'energia di 42 keV (K_{α} del Gd). Nella regione di interesse ($50 - 60\text{ keV}$) sono presenti anche altre emissioni che, se in presenza di Gadolinio potrebbero essere associate alle transizioni K_{β} di questo elemento ($49 - 50\text{ keV}$). Tuttavia essendo presente una struttura, se pur di diversa forma, anche con il campione MT003, si ritiene di poter trarre conclusioni solo in relazione al picco a 42 keV che cresce in maniera evidente.

La prova effettuata dimostra l'effettiva cattura di neutroni da parte del Gadolinio, pur con efficienza molto bassa anche dovuta alle piccole dimensioni dei campioni in analisi. Associando questi risultati alle considerazioni fatte in precedenza (capitolo 3), si conclude che la produzione di rivelatori drogati con Gadolinio soffre di difficoltà nell'ottenere campioni di grosse dimensioni che siano sufficientemente trasparenti da permettere l'osservazione della luce di scintillazione indotta dai raggi X di cattura. Per questo motivo si dovrà

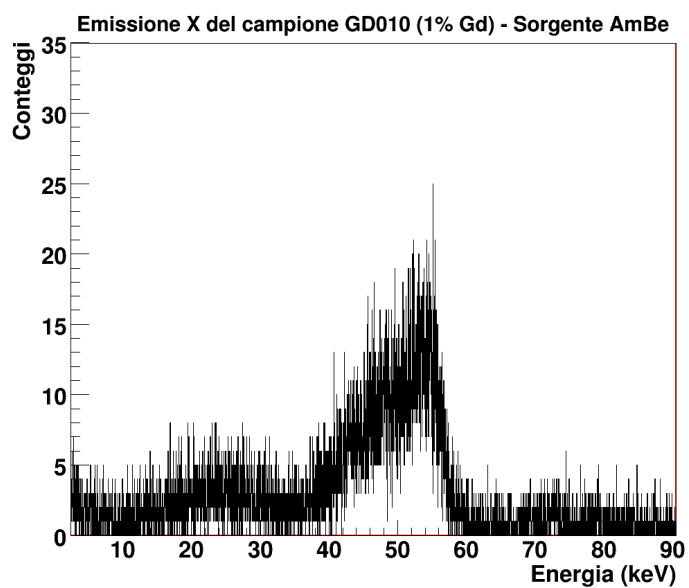


Figura 5.6: Spettro di emissione X del campione GD010 con sorgente di AmBe moderata.

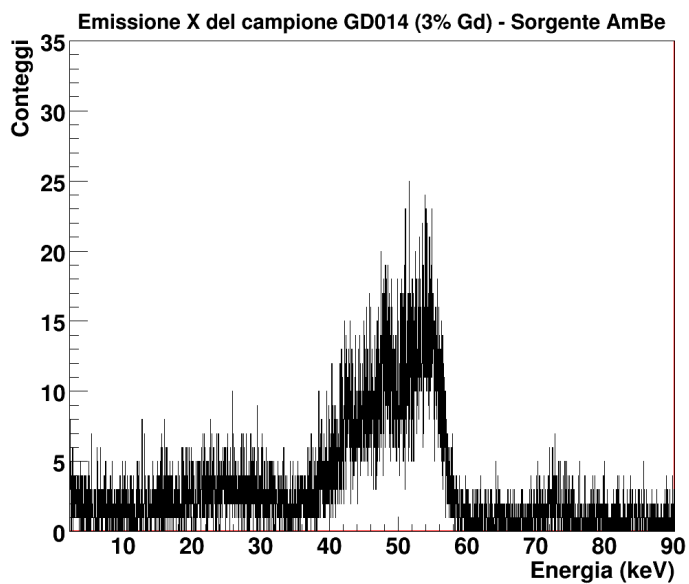


Figura 5.7: Spettro di emissione X del campione GD014 con sorgente di AmBe moderata.

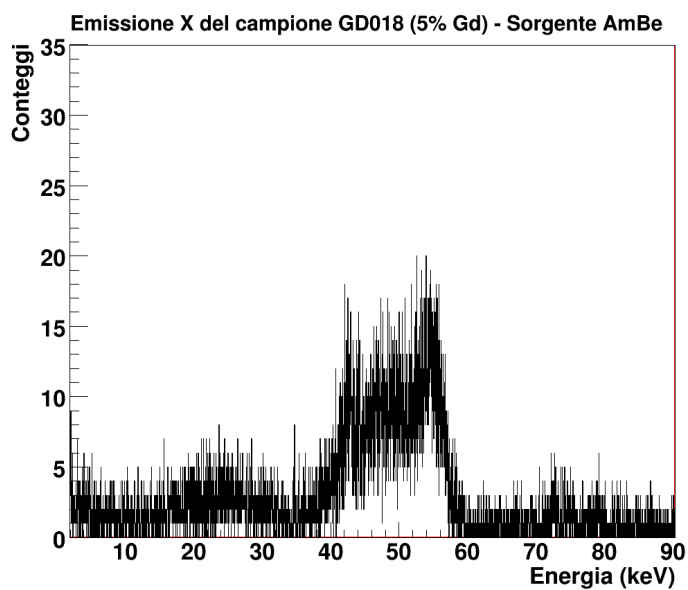


Figura 5.8: Spettro di emissione X del campione GD018 con sorgente di AmBe moderata.

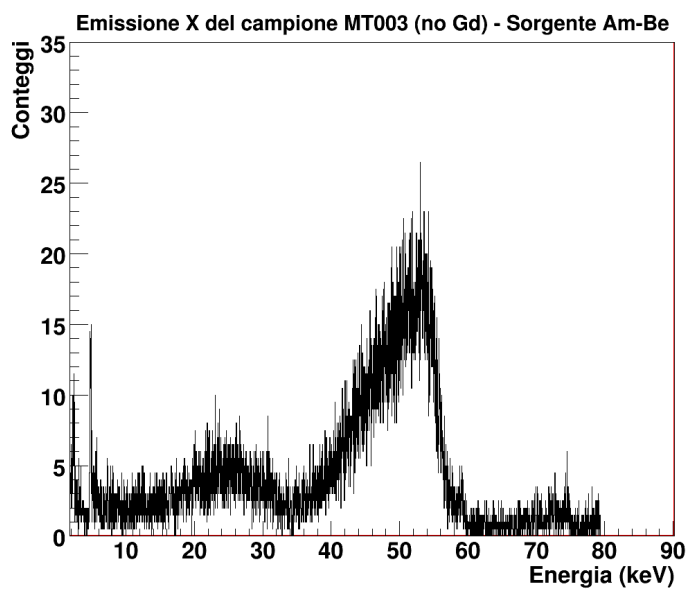


Figura 5.9: Spettro di emissione X del campione MT003 con sorgente di AmBe moderata.

probabilmente sacrificare l'ottima sezione d'urto di cattura neutronica del Gadolinio, a favore di materiali contenenti Boro.

5.2 Misure di neutroni con fotomoltiplicatore

L'ultimo passaggio da fare riguarda l'utilizzo dell'apparato nella sua configurazione standard (materiale scintillante + fotomoltiplicatore) per la rivelazione dei neutroni, utilizzando i campioni più spessi a disposizione. Per questioni geometriche e di sezioni d'urto non è pensabile di utilizzare i campioni sottili dei test precedenti per rivelare i neutroni.

Sono stati quindi effettuati dei test nella stessa configurazione dei paragrafi precedenti, sostituendo il rivelatore di Cd-Te con il sistema scintillatore spesso letto da fotomoltiplicatore. I campioni SB013 ed SB030 (spessi e contenenti Gd rispettivamente al 3% ed al 5%) avevano mostrato una cattiva resa luminosa già per le particelle alfa, questo è stato confermato anche sotto irraggiamento con la sorgente di AmBe moderata. La motivazione principale sembra proprio legata al forte quenching nella resa di luce che viene introdotto proprio con l'inserimento del Gadolinio, effetto che si era osservato anche nei campioni più sottili. Come già detto si osserva anche un deterioramento nel tempo che vede aumentare l'ingiallimento dei campioni di scintillatore. L'utilizzo del Gadolinio come drogante impone quindi di ricercare ancora un migliore accoppiamento matrice-dye-drogante che minimizzi l'effetto di opacizzazione osservato nei campioni studiati.

5.2.1 Primi test con campioni contenenti Boro

Nelle ultimissime fasi di questo lavoro si sono resi disponibili due campioni drogati con Boro sufficientemente spessi da poter essere utilizzati in test con neutroni. Questi verranno chiamati B01 e B03. Il campione B01 è spesso meno di 1 *cm* e risulta di colore bianco molto opaco; il B03 è alto circa 2,5 *cm* ed è evidentemente più trasparente del precedente. Nonostante le impressioni sull'opacità, la figura 5.10 mostra che la resa di luce con particelle alfa è migliore per il campione B01 che per il B03 (canale 200 contro canale 150). Si è comunque scelto di effettuare il primo test con la sorgente di Americio-Berillio con il campione più spesso, che dal punto di vista geometrico risulta più favorevole (maggiore volume). A questo punto, per massimizzare la resa di luce che si sarebbe potuta ottenere con le particelle alfa da cattura neutronica sul Boro, si è deciso di aumentare la tensione di alimentazione del fotomoltiplicatore in modo da riportare la risposta alle alfa dell'Americio

ad un valore paragonabile a quello del primo campione (fig. 5.11). Tale aumento di tensione non può essere eccessivo perché si rischia di avvicinarsi al regime di scarica del fotomoltiplicatore, che avrebbe reso tutto il sistema instabile e rumoroso.

La figura 5.12 mostra che il campione B03 ha una buona risposta anche con sorgente gamma di ^{60}Co , che significa che il processo di scintillazione nel campione studiato ha caratteristiche simili in superficie come lungo tutto il rivelatore. A questo punto sono state effettuate due misure di lunga durata (circa 7000 secondi l'una): la prima con sorgente di Americio-Berillio, l'altra senza sorgente, per misurare lo spettro di fondo. Dalla figura 5.13 appare evidente la differenza nel numero di conteggi a favore dello spettro con sorgente e questo fa ragionevolmente pensare a dei segnali da neutroni. Come detto in precedenza, il setup sperimentale non è stato variato dalle misure con Cd-Te e ciò significa che il rivelatore è schermato dai fotoni con circa 7,5 cm di Piombo. Il sistema di moderazione della sorgente assieme alla schermatura dello scintillatore fa concludere che la grossa parte dei conteggi a bassi canali sia dovuta essenzialmente ai neutroni e non a gamma di bassa energia. La figura 5.15 mostra il risultato della sottrazione dei due spettri dove si osserva chiaramente la presenza di un picco attorno al canale 70. Se si considera che le particelle alfa emesse dalla reazione del neutrone con il nucleo di Boro hanno un'energia di circa 1,8 MeV, la posizione del picco osservato è consistente con la misura di resa di luce fatta in precedenza con la sorgente di ^{241}Am , dove l'energia delle particelle è di circa 5 MeV. In figura 5.14 mostriamo per confronto il risultato ottenuto in un a situazione sperimentale analoga con il campione SB030 (spettro pulito con sottrazione del fondo). Si nota come in questo caso non ci sia alcun picco a bassi canali, infatti, l'uscita di luce relativa ai raggi X del Gadolinio è sotto soglia. I risultati di questi primi test fanno pensare che, pur rinunciando all'elevata sezione d'urto di cattura neutronica del Gadolinio, la strada che va verso lo sviluppo di rivelatori drogati con Boro possa essere molto più favorevole e soddisfacente.

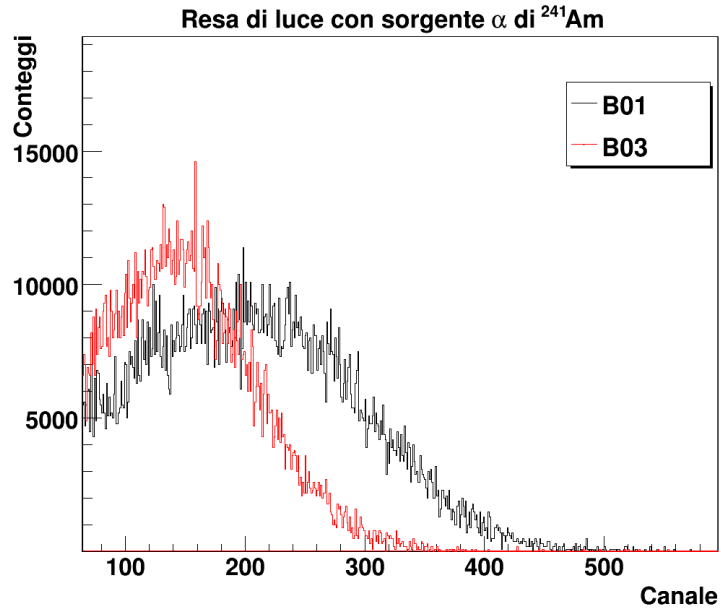


Figura 5.10: Resa di luce con sorgente alfa di ^{241}Am per i due campioni B01 e B03 contenenti 5% di Boro (15% fenile, 1,0% PPO).

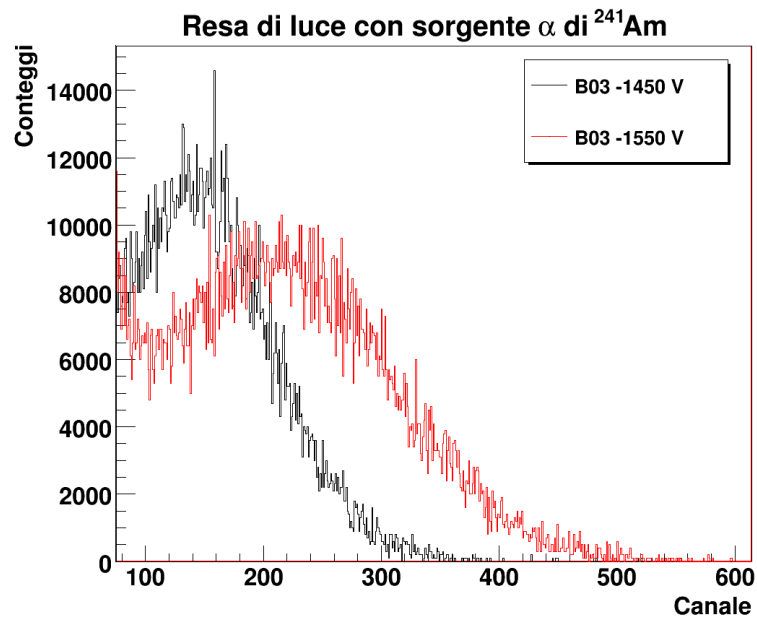


Figura 5.11: Confronto della resa di luce al variare della tensione di alimentazione del fotomoltiplicatore per il campione B03.

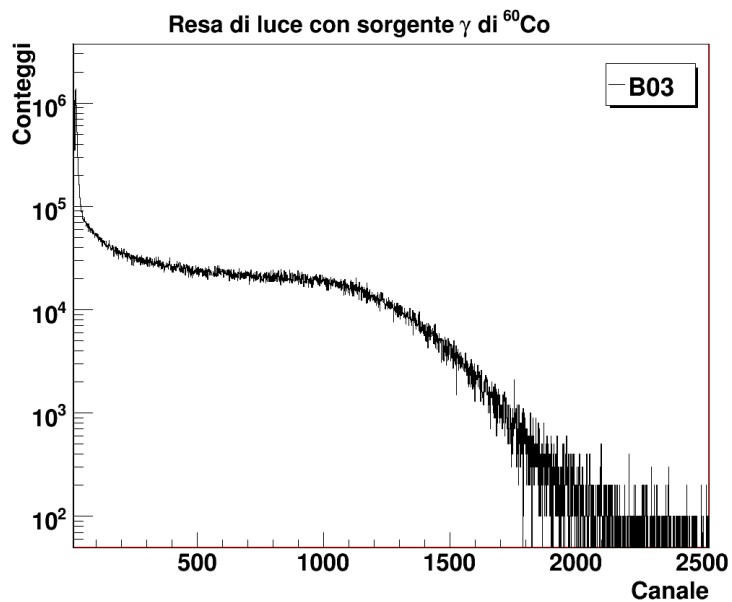


Figura 5.12: Resa di luce del campione B03 con sorgente gamma di ^{60}Co .

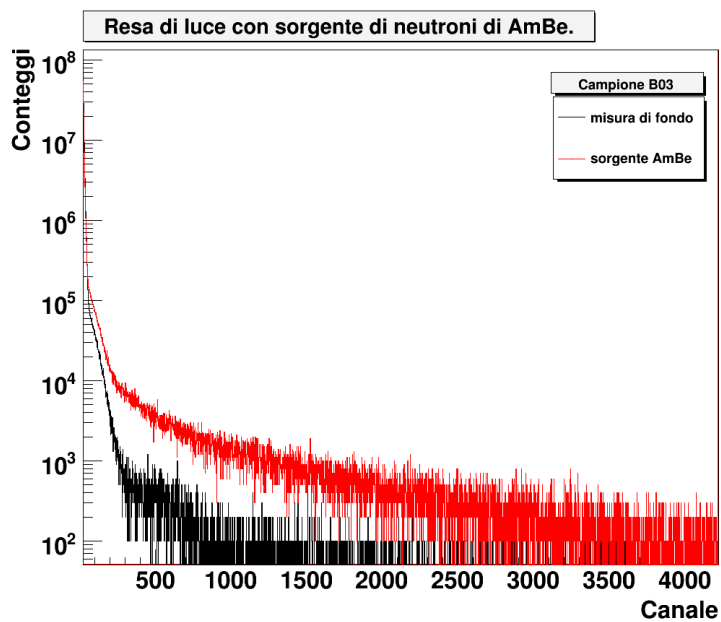


Figura 5.13: Resa di luce del campione B03 con sorgente di AmBe moderata e confronto con lo spettro di fondo.

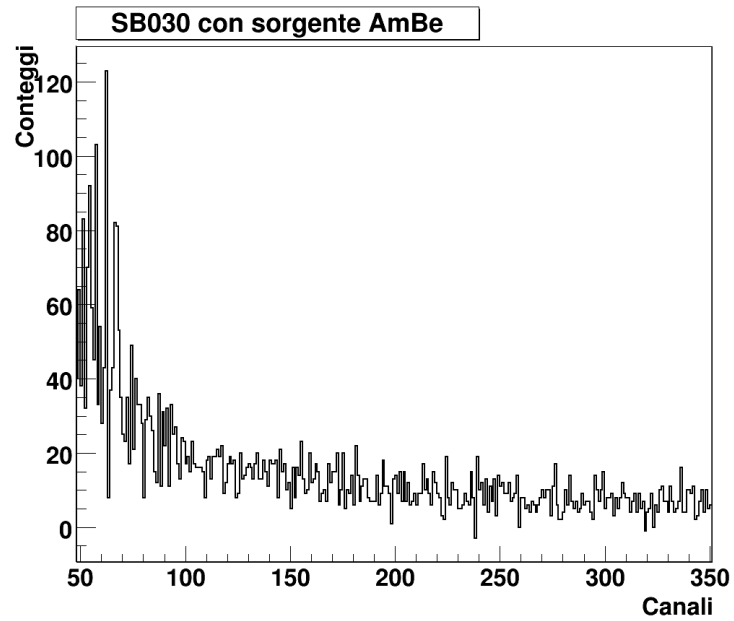


Figura 5.14: Resa di luce del campione SB030 (contenente 5% Gd) con sorgente di AmBe moderata.

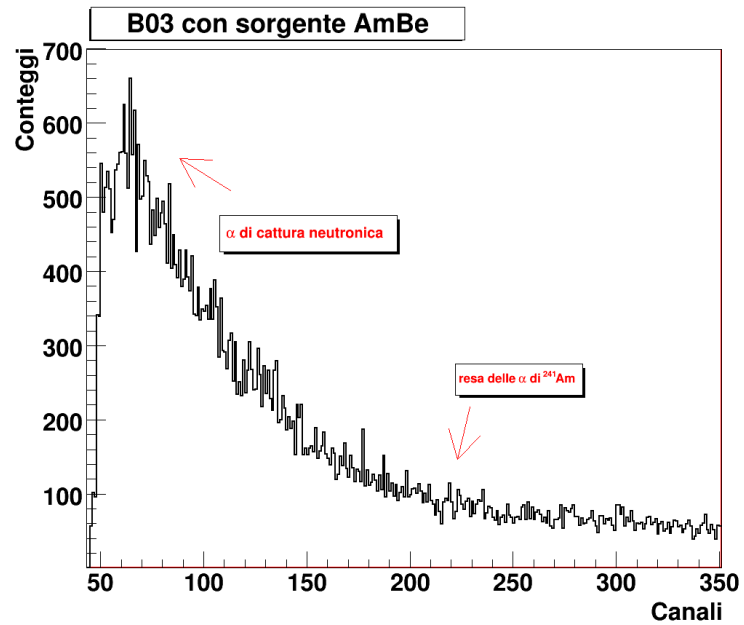


Figura 5.15: Resa di luce del campione B03 (contenente 5% Gd) con sorgente di AmBe moderata.

Conclusioni

In questo lavoro di tesi ci siamo occupati dello studio delle caratteristiche di materiali organici (gomme siliconiche) da utilizzare in scintillatori per radiazione carica e neutra. Come mostrato nel primo capitolo, la rivelazione dei neutroni richiede l'uso di accorgimenti particolari a causa della loro bassa sezione d'urto di interazione con i materiali. Essendo particelle neutre non subiscono interazione coulombiana, quindi l'unica possibilità che un fascio di neutroni rilasci energia attraversando uno spessore di materiale si ha tramite interazione nucleare. Questo rende i neutroni particelle particolarmente "elusivo" e la loro rivelazione rimane un argomento piuttosto delicato. L'interesse, però, è elevato in vari campi della fisica: sia in esperimenti di Fisica Nucleare con fasci stabili che nei nuovi contesti di lavoro con fasci radioattivi (RIBs) risulta molto interessante la possibilità di realizzare apparati di misura sensibili contemporaneamente alla radiazione carica e ai neutroni. La misura delle molteplicità neutroniche e dell'energia di queste particelle può fornire una grossa quantità di informazioni, che acquisisce maggiore interesse se combinata con i risultati ottenuti per particelle cariche. Anche la crescita di nuovi centri per lo studio della fisica con fasci di neutroni guarda con notevole interesse lo sviluppo di nuovi rivelatori dalle prestazioni migliori di quelli esistenti e dai costi più contenuti.

Dalle necessità esposte nasce l'idea di sviluppare materiali siliconici arricchiti con fluorofori che ne favoriscano la scintillazione e drogati con elementi ad elevata sezione d'urto di cattura neutronica, da utilizzare come scintillatori sia per radiazione carica che per neutroni.

Lo sviluppo di tali materiali deve passare attraverso numerose fasi di test perché, come mostrato nel secondo capitolo di questo lavoro, le possibili inefficienze di scintillatori organici di questo tipo sono molte ed è necessario ottimizzare ogni singolo passaggio per ottenere dei risultati validi. In particolare i processi in gioco riguardano:

1. la scintillazione della matrice siliconica al passaggio di radiazione carica e di neutroni veloci,

2. la cattura dei neutroni termici da parte dei droganti con emissione di particelle o raggi X che trasferiscono la loro energia alla matrice stessa,
3. l'assorbimento dell'energia luminosa emessa dalla matrice da parte di un fluoroforo che la riemette a lunghezze d'onda maggiori.

In alcuni casi è previsto un secondo spostamento della lunghezza d'onda in uscita da parte di un *wavelengthshifter* per migliorare l'accoppiamento con il fotomoltiplicatore, il quale raccoglie la luce e la trasforma in un segnale elettrico.

Scopo delle misure mostrate nei capitoli tre, quattro e cinque di questo lavoro è caratterizzare i materiali in oggetto, focalizzando l'attenzione sui singoli passaggi dei processi appena illustrati.

Per prima cosa (paragrafo 3.4) sono state eseguite misure di fotoluminescenza per verificare le caratteristiche dello spettro di emissione e controllare l'accoppiamento con il fotomoltiplicatore usato. Assodato questo si è passato a valutazioni con sorgente sulla resa di luce di questi scintillatori al variare delle concentrazioni dei vari costituenti del materiale. La misura con sorgenti alfa (par. 3.5.3) permette di osservare un picco la cui posizione nello spettro è proporzionale alla resa di luce del materiale. Delle numerose serie prodotte, due sono risultate migliori delle altre e con risultati paragonabili a quelli di uno scintillatore organico di riferimento (NE102), si tratta delle serie denominate K e BBOT dove si è anche evidenziata la crescita dell'uscita di luce all'aumentare della concentrazione di PPO. Nei campioni della serie BBOT è presente un secondo fluoroforo oltre al PPO (il BBOT, appunto) che emette ad una lunghezza d'onda più vicina al picco di sensibilità del fotomoltiplicatore utilizzato. Visti alcuni problemi di carattere meccanico legati alla fragilità dei campioni della serie K si pensa di proseguire lo sviluppo a partire dai risultati della serie BBOT che, pur presentando rese leggermente inferiori, è preferibile in quanto a trasparenza alla luce emessa per scintillazione e robustezza dei campioni. Si è notato anche che la presenza di Gadolinio all'interno dei campioni della serie GD (elemento necessario per la rivelazione di neutroni termici) causa un forte ingiallimento del materiale con conseguente autoassorbimento della radiazione luminosa. Questo fattore è da tenere presente nella fabbricazione di nuovi materiali per cercare di identificare composti che emettano a lunghezze d'onda alle quali la colorazione dovuta al Gadolinio risulti trasparente (si veda il paragrafo 3.5.3).

La larghezza delle curve gaussiane ottenute con sorgenti alfa fornisce una stima della risoluzione degli scintillatori. Si deve tenere presente tuttavia che le misure sono state effettuate a pressione atmosferica per cui interviene anche una componente di straggling della particelle prima dell'arrivo sul campione

da analizzare. Valori tipici di risoluzione variano dal 30% al 60%.

Successivamente sono stati mostrati alcuni risultati ottenuti con sorgenti gamma e X. Anche in questo caso sono state confrontate le rese per i diversi tipi di campione e si è visto che, in generale, anche per gli spettri Compton ottenuti valgono rapporti di ampiezza simili a quelli ottenuti con le particelle alfa. Questo sta ad indicare che anche la parte bulk dello scintillatore che viene interessata dalla radiazione gamma risponde in maniera conforme a quella più superficiale "ispezionata" tramite le sonde cariche. Per quanto riguarda la radiazione X, il test si proponeva di evidenziare la risposta degli scintillatori a radiazione simile a quella emessa dagli atomi di gadolinio eccitati dopo la cattura del neutrone termalizzato. Si è in questo caso evidenziato come i risultati sono soddisfacenti solo per alcuni campioni. Nel quarto capitolo sono stati mostrati i risultati di una misura IBIL sui campioni delle serie K e BBOT. Questo tipo di analisi ha permesso di misurare lo spettro di emissione dei campioni quando irraggiati con un fascio intenso di particelle alfa. Si è potuto identificare la lunghezza d'onda in cui l'emissione è massima e osservare le differenze di forma tra i campioni con solo PPO e quelli con anche BBOT. L'intensità del fascio permette di valutare anche il danno da radiazione: è possibile esporre in pochi minuti una zona definita dello scintillatore ad una dose ben più elevata di quella a cui sarebbe sottoposto nel normale funzionamento come rivelatore. La cosiddetta *radiation-hardness* di questi materiali è risultata confrontabile con quella dell'NE102. In realtà le differenze fra i vari campioni non sono notevoli e soprattutto non è evidente una dipendenza univoca né dal tipo di matrice, né dalla concentrazione del dye.

Nel quinto capitolo ci siamo occupati della rivelazione dei neutroni con Gadolinio e Boro. Avendo a disposizione campioni con Gadolinio di spessore limitato si è deciso di verificare l'emissione di raggi X che fuoriescono dal campione sottile con un rivelatore al Cd-Te in seguito alla cattura neutronica. Questo è stato fatto moderando i neutroni in uscita da una sorgente di Americio-Berillio e misurando i raggi X emessi dal campione con un rivelatore al Cd-Te. Gli spettri mostrati dimostrano come al crescere della concentrazione di Gd nel campione, cresca anche una riga nello spettro X ad energie di circa 42 keV, corrispondente alla diseccitazione dell'atomo di Gd dopo cattura neutronica. Avendo dimostrato che i campioni scintillano al passaggio di radiazione carica ed elettromagnetica e che il Gadolinio emette raggi X da cattura, non rimane che testare il rivelatore con sorgenti di neutroni. Questo è stato fatto per i campioni della serie GD ed SB, ma i risultati sono ancora insufficienti, perché le inefficienze dei singoli passaggi si sommano dando luogo a segnali troppo piccoli per essere distinti dal rumore elettronico. Il

lavoro futuro dovrà quindi essere rivolto a migliorare l'efficienza complessiva, specialmente risolvendo il problema dell'ingiallimento dei campioni a causa della presenza di Gd.

Nelle ultime fasi di stesura del presente lavoro si sono resi disponibili dei nuovi campioni, piuttosto spessi, contenenti Boro anziché Gadolinio. Le misure di resa di luce con particelle alfa e raggi gamma danno risultati sicuramente migliori rispetto ad analoghi campioni con Gd, anche se ancora non ottimali. Anche la risposta ai neutroni è risultata migliore. Questi ultimissimi risultati mostrati alla fine dell'ultimo capitolo lasciano quindi intravedere possibili sviluppi positivi.

Fra le altre attività previste per il futuro c'è uno studio legato alla forma dell'impulso in uscita al fotomoltiplicatore: dovrebbe essere possibile discriminare particelle cariche, fotoni e segnali indotti da neutroni andando a studiare le differenze nella forma degli impulsi. Queste sono dovute a differenze nei processi di eccitazione e di trasferimento di energia indotti dalle diverse tipologie di particelle ovvero ai diversi meccanismi di interazione radiazione-materia.

Appendice A

Grandezze rilevanti in dosimetria

Introduciamo brevemente alcuni concetti di grande importanza per quantificare gli effetti della radiazione sui materiali irraggiati. **L'attività** (o forza) di una sorgente radioattiva è definita come il numero di processi di decadimento al secondo che avvengono al suo interno. Questa grandezza è estensiva, cioè dipende dalla quantità di materia presente: maggiore è l'estensione del campione, maggiore sarà la probabilità di emissione radioattiva, per cui si avrà una maggiore attività. Inoltre va notato che l'attività di una sorgente non è necessariamente sinonimo di radiazione emessa dal campione: esistono nuclei radioattivi che decadono in altri nuclei instabili, i quali decadono a loro volta dopo un certo tempo. Questa radiazione secondaria sarà sempre emessa dallo stesso campione ma non comparirà nella stima dell'attività della sorgente stessa. La relazione tra radiazione emessa e attività radioattiva dipende quindi dallo schema di decadimento della singola sorgente.

Tradizionalmente l'Unità di Misura dell'Attività è il *Curie* (Ci), definito come *l'attività di un grammo purissimo di ^{226}Ra* . Oggi viene maggiormente utilizzato il *Becquerel* (Bq) che equivale ad una disintegrazione al secondo. Il fattore di conversione tra le due grandezze vale:

$$1 \text{ Curie (Ci)} = 3,7 \times 10^{10} \text{ disintegrazioni/s} \quad (\text{A.1})$$

Le grandezze introdotte danno informazioni solo sul numero di eventi prodotti, ma sono completamente indipendenti da valutazioni energetiche. A questo proposito è bene introdurre i concetti di **esposizione** e **dose assorbita**.

Il concetto di esposizione nasce per raggi X o γ , ma può essere esteso a qualsiasi tipo di radiazione ionizzante: è la misura della ionizzazione prodotta dalla radiazione nell'attraversare un materiale, valutata numericamente come dQ/dm . L'Unità di misura fondamentale nel S.I. è il C/Kg , ma si utilizza spesso il Röntgen che è definito come l'esposizione prodotta da una unità

elettrostatica ¹ che attraversa 1cm^3 di aria in condizioni STP. Questa genera circa $2,0810^9$ coppie di ioni, che si traducono in una carica di $0,3310^9\text{C}$, che significa:

$$1 \text{ Röntgen } (R) = 2,58 \times 10^{-4} \text{ C/kg} \quad (\text{A.2})$$

L'esposizione è quindi definita in termini dell'effetto di un flusso di raggi gamma o X sul materiale, tuttavia la misura sperimentale di questa grandezza non è banale perché la ionizzazione prodotta può liberare elettroni secondari all'interno del materiale stesso e correggere le misure per questi effetti è tutt'altro che semplice. Assumendo, però, di conoscere con precisione la resa di raggi X o gamma per disintegrazione nella sorgente e che:

1. la sorgente sia sufficientemente piccola per poter utilizzare una geometria sferica;
2. non ci sia assorbimento da parte dei materiali circostanti;
3. solo i fotoni che passano direttamente dalla sorgente al punto di misura contribuiscano all'esposizione (fotoni diffusi nel materiale devono essere scartati);

è possibile definire il *tasso di esposizione* come:

$$\dot{X} = \Gamma_{\delta} \frac{\alpha}{d^2} \quad (\text{A.3})$$

dove α è l'attività della sorgente, Γ_{δ} è la *costante di esposizione* per lo specifico radioisotopo di interesse e d la distanza tra il materiale assorbitore e la sorgente stessa. Il pedice δ sta ad indicare che solo la radiazione ad energie maggiori di una certa soglia contribuisce è in grado di contribuire efficacemente all'interno di uno spessore di materiale. In tabella A.1 sono riportati alcuni valori di Γ per varie sorgenti.

Quanto detto fino ad ora, tuttavia, non tiene conto del tipo di materiale assorbitore. Due sostanze diverse, esposte alla stessa radiazione, assorbiranno tipicamente due quantità diverse di radiazioni. Questo aspetto è quantificato dalla dose assorbita che viene definita come: *l'energia proveniente da un qualsiasi tipo di radiazione assorbita per unità di massa di materiale*. L'Unità

¹Unità del sistema CGS elettrostatico, detta anche franklin, definita come la carica che, concentrata in un punto nel vuoto, respinge una carica uguale posta alla distanza di 1 cm, con la forza di 1 dina ($1 \text{ dyn} = 10^{-5} \text{ N}$)

Nuclide	Γ
^{124}Sb	9,8
^{137}Cs	3,3
^{57}Co	0,9
^{60}Co	13,2
^{131}I	2,2
^{226}Ra	8,25
^{24}Na	18,4

Tabella A.1: Costante di esposizione per diverse sorgenti gamma.

di Misura storica della dose è il *rad* corrispondente a 100 erg/grammo. Oggi si utilizza il *gray* (Gy), definito come 1 J/kg, di conseguenza:

$$1 \text{ Gy} = 100 \text{ rad} \quad (\text{A.4})$$

La dose assorbita dovrebbe fornire una stima ragionevole degli effetti fisici e chimici causati dalla radiazione incidente sul materiale assorbitore. Tuttavia, per valutare l'effetto della radiazione sugli organismi viventi (**RBE - Radiation Biological Effects**), è necessario introdurre principalmente due fattori: il tipo di radiazione incidente ed il tipo di organo irradiato. Infatti il danno biologico causato dal passaggio di radiazioni ionizzanti è valutabile dalle alterazioni chimiche che induce nel materiale. La permanenza nel tempo di queste alterazioni e la loro entità può variare molto, a parità di energia totale depositata, a seconda che il danno sia indotto da particelle cariche pesanti o da elettroni, proprio a causa del modo con cui questi interagiscono con il materiale stesso.

A questo proposito vengono introdotte due quantità dette **dose equivalente** e **dose effettiva**.

La prima si ricava pesando la dose assorbita da un singolo organo "T" ($D_{T,R}$) con un fattore opportuno che tenga conto del tipo di radiazione assorbita (w_R):

$$H_{T,R} = w_R \cdot D_{T,R} \quad (\text{A.5})$$

Valori tipici di w_R sono mostrati in tabella A.2. Se poi si vuole valutare l'effetto complessivo su una serie di organi basta sommare i singoli contributi:

$$H_T = \sum H_{T,R} = \sum w_R \cdot D_{T,R} \quad (\text{A.6})$$

Tipo di radiazione	Energia	w_R
Fotoni	tutte le energie	1
Elettroni e muoni	tutte le energie	1
Neutroni	$< 10 \text{ keV}$	5
Neutroni	$10 - 100 \text{ keV}$	10
Neutroni	$100 \text{ keV} - 2 \text{ MeV}$	20
Neutroni	$2 \text{ MeV} - 20 \text{ MeV}$	10
Neutroni	$> 20 \text{ MeV}$	5
Protoni non di rinculo	$> 2 \text{ MeV}$	5
α , framm. di fissione, nuclei pesanti		20

Tabella A.2: Valori tipici di w_R .

La dose effettiva (E), partendo dalla dose equivalente, aggiunge il fattore peso w_T determinato dal tipo di organo o di tessuto irraggiato:

$$E = \sum w_T H_T \quad (\text{A.7})$$

Le unità di misura della dose equivalente e della dose effettiva hanno le stesse dimensioni di quelle per la dose assorbita perché i fattori peso sono adimensionali. Tuttavia, per sottolineare il fatto che ci si vuole riferire ad un effetto biologico si utilizzano delle unità apposite: se la dose è misurata in gray, si definisce il *Sievert* (Sv); se invece la dose è misurata in rad si definisce il *rem*:

$$\begin{aligned} 1 \text{ sievert (Sv)} &= (\text{RBE}) \times 1 \text{ gray (Gy)} \\ 1 \text{ rem} &= (\text{RBE}) \times 1 \text{ rad} \end{aligned}$$

Appendice B

Caratteristiche del fotomoltiplicatore Hamamatsu H6524

HAMAMATSU

PHOTOMULTIPLIER TUBE
R1450

**Fast Time Response (Especially Low TTS)
For Positron CT and High Energy Physics
19mm (3/4 Inch) Diameter, 10-stage, Bialkali Photocathode, Head-On**

GENERAL

Parameter	Description/Value	Unit
Spectral Response	300 to 650	nm
Wavelength of Maximum Response	420	nm
Photocathode	Material	Bialkali
	Minimum Useful Size	15 mm dia.
Window Material	Borosilicate glass	—
Dynode	Structure	Linear focused
	Number of Stage	10
Base	12-pin glass base	—

MAXIMUM RATINGS (Absolute Maximum Values)

Parameter	Value	Unit
Supply Voltage	Between Anode and Cathode	1800 Vdc
	Between Anode and Last Dynode	350 Vdc
Average Anode Current	0.1	mA
Ambient Temperature	-80 to +50	°C

CHARACTERISTICS (at 25°C)

	Parameter	Min.	Typ.	Max.	Unit
Cathode Sensitivity	Luminous (2856K)	70	115	—	μA/lm
	Radiant at 420nm	—	88	—	mA/W
	Blue (CS-5-58 filter)	—	11.0	—	μA/lm-b
Anode Sensitivity	Luminous (2856K)	100	200	—	A/lm
Gain		—	1.7×10^6	—	—
Anode Dark Current (after 30min. storage in darkness)		—	3	50	nA
Time Response	Anode Pulse Rise Time	—	1.8	—	ns
	Electron Transit Time	—	19	—	ns
	Transit Time Spread (FWHM)	—	0.76	—	ns
	Coincident Resolving Time/Scintillator	—	0.6/CsF	—	ns
Typical Pulse Height Resolution		—	7.8	—	%
Pulse Linearity	±2% Deviation	—	4	—	mA
	±5% Deviation	—	8	—	mA

NOTE: Anode characteristics are measured with the voltage distribution ratio shown below.

Figure 1: Typical Spectral Response

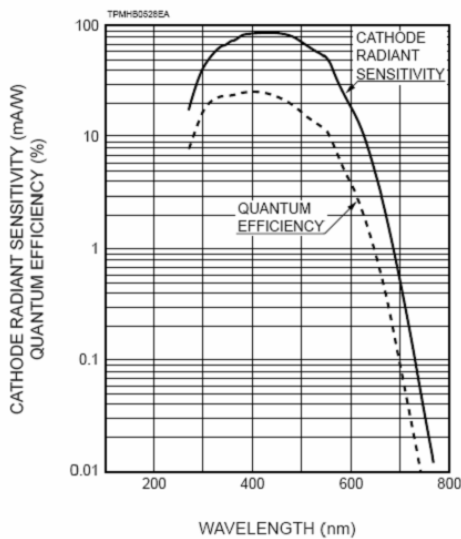


Figure 2: Typical Gain Characteristics

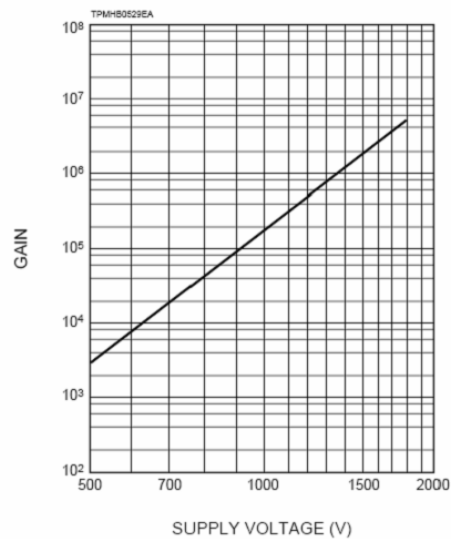


Figure : Typical Output Waveform

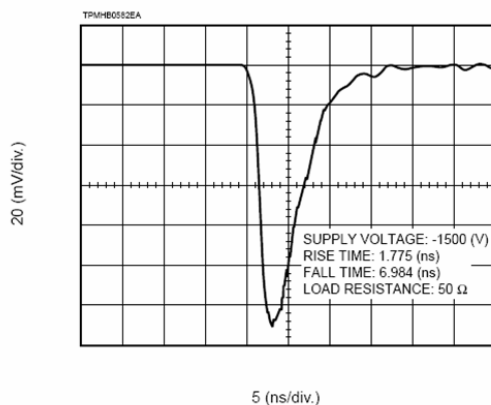


Figure 4: Typical Pulse Height Resolution

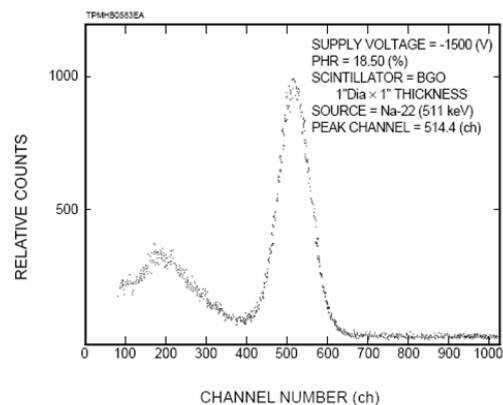


Figure 6: Dimensional Outline and Basing Diagram (Unit: mm)

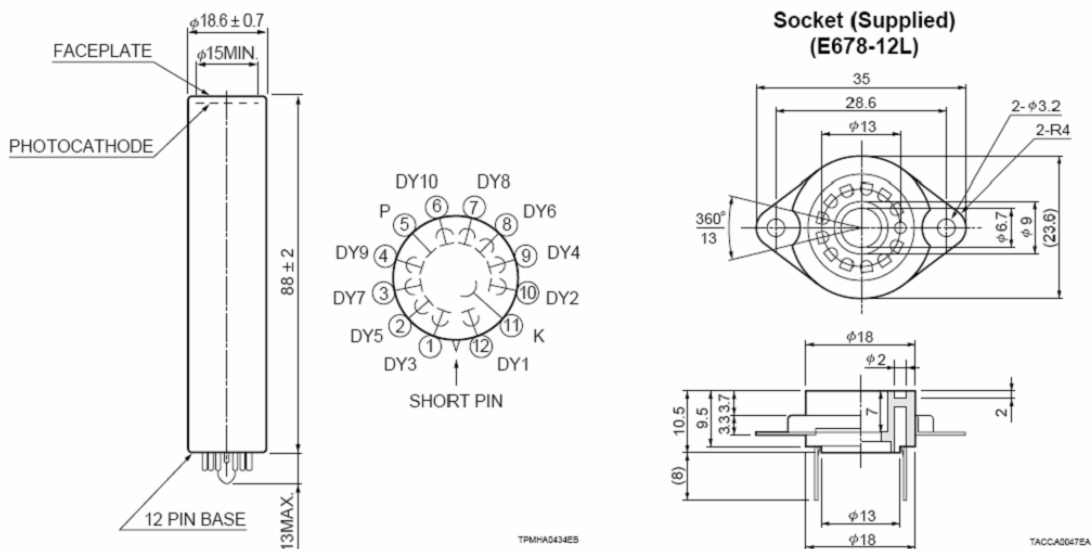
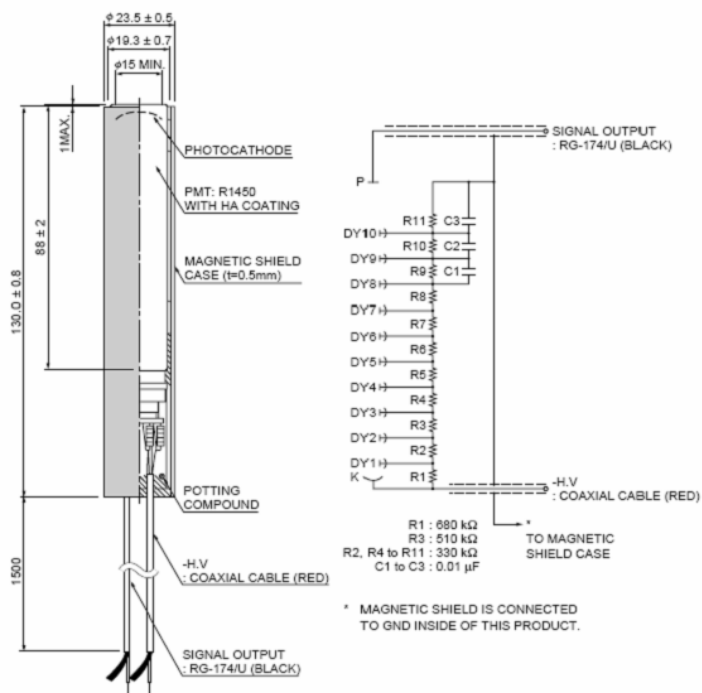


Figure 7: Dimensional Outline and Circuit Diagram of Hybrid Assembly H6524



TFMHA0313EA

Bibliografia

- [1] Chiaveri et al. Cern n_tof facility: Performance report. Technical report, CERN, 2003.
- [2] A. Covello G. Prete. Spes (selective production of exotic species) technical design report. Technical report, INFN-LNL, 2008.
- [3] M. A. Tuve, N. P. Heydenburg, and L. R. Hafstad. The scattering of protons by protons. *Phys. Rev.*, 50(9):806–825, Nov 1936.
- [4] Steven Weinberg. *La scoperta delle particelle elementari*. Zanichelli, 1986.
- [5] C. Amsler et al. Review of particle physics. *Physics Letters B*, 667(1-5):1 – 6, 2008. Review of Particle Physics.
- [6] AEA website. <http://www.aeat.co.uk/cms/>.
- [7] H. Kluge and K. Weise. The Neutron Energy Spectrum of a ^{241}Am -Be(α ,n) Source and Resulting Mean Fluence to Dose Equivalent Conversion Factors. *Radiat Prot Dosimetry*, 2(2):85–93, 1982.
- [8] Edgar A. Lorch. Neutron spectra of $^{214}\text{Am}/\text{b}$, $^{241}\text{Am}/\text{be}$, $^{241}\text{Am}/\text{f}$, $^{242}\text{Cm}/\text{be}$, $^{238}\text{Pu}/^{13}\text{C}$ and ^{252}Cf isotopic neutron sources. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 24(10):585 – 591, 1973.
- [9] IRFU Institut de Recherches sur les lois Fondamentales de l'Univers website. <http://irfu.cea.fr/>.
- [10] Kenneth S. Krane. *Introductory Nuclear Physics*. John Wiley & Sons, Inc, 1988.
- [11] Carlo Comparini. Misure di tempi di cattura di neutroni termici per il sensore di explodet (explosive detection). Master's thesis, Università degli studi di Torvergata, 1999.

- [12] Glenn F. Knoll. *Radiation Detection and Measurement, 3rd edition*. John Wiley & Sons, Inc, 1999.
- [13] St. Gobain Detectors website. <http://www.detectors.saint-gobain.com/>, 2009.
- [14] Franco Bocci. *Un telescopio a rinculo di protoni per la spettroscopia neutronica*. PhD thesis, Università degli studi di Pavia, 2007.
- [15] D. J. Hinde, D. Hilscher, H. Rossner, B. Gebauer, M. Lehmann, and M. Wilpert. Neutron emission as a probe of fusion-fission and quasifission dynamics. *Phys. Rev. C*, 45(3):1229–1259, Mar 1992.
- [16] J. Cabrera, Th. Keutgen, Y. El Masri, Ch. Dufauquez, V. Roberfroid, I. Tilquin, J. Van Mol, R. Régimbart, R. J. Charity, J. B. Natowitz, K. Hagel, R. Wada, and D. J. Hinde. Fusion-fission and fusion-evaporation processes in $^{20}\text{Ne} + ^{159}\text{Tb}$ and $^{20}\text{Ne} + ^{169}\text{Tm}$ interactions between $e/a = 8$ and 16 mev. *Phys. Rev. C*, 68(3):034613, Sep 2003.
- [17] S. Barlini *et al.* Entrance channel mass-asymmetry dependence of preequilibrium light charge particles emission in $\alpha\alpha$ nucleus. To be published.
- [18] LNS website. <http://www.lns.infn.it/>.
- [19] J. Esposito, P. Colautti, A. Pisent, L. De Nardo, V. Conte, D. Moro, S. Agosteo, G. Jori, R. Tinti, and G. Rosi. Progress on the accelerator based spes-bnct project at infn legnaro. *AIP Conference Proceedings*, 884(1):13–23, 2007.
- [20] P.F. Mastinu, G. Martín Hernández, and J. Praena. A method to obtain a maxwell-boltzmann neutron spectrum at $kT=30$ kev for nuclear astrophysics studies. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, In Press, Corrected Proof:–, 2009.
- [21] The Free Enciclopedia Wikipedia. <http://it.wikipedia.org/>, 2008.
- [22] J. B. Birks. *The Theory and Practice of Scintillation Counting*. Pergamon Press, 1964.
- [23] M. A. MacMahan. The response of scintillators to heavy ions - plastics. *IEEE Transactions on nuclear science*, 36:42–46, 1988.
- [24] Hamamastu website. <http://www.hamamatsu.com>.

- [25] R. A. Fuh H. Du, J. Li, A. Corkan, and J. S. Lindsey. Photochemcad: A computer-aided design and research tool in photochemistry. *Photochemistry and Photobiology*, 68:141 – 142, 1998.
- [26] G. Túry, R. Vabrik, I. Kása, K. Papp, I. Rusznák, G.T. Szabó, A. Víg, and E. Kálmán. Enhancement of fluorescent stability of 2,5-bis-2-(5-tert-butyl)-benzoxazolyl-thiophene (bbot) containing Idpe films. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 114(1):51 – 58, 1998.
- [27] Measurement Solutions for Nuclear Safety CANBERRA and Security. <http://www.canberra.com/>, 2009.
- [28] Tommaso Marchi. Rivelatori a scintillazione per esperimenti di fisica nucleare. Master's thesis, Università degli studi di Bologna, 2006.
- [29] Zane W. Bell. Gadolinium-loaded plastic and rubber scintillators. Oak Ridge National Laboratory.
- [30] L.P. Ekstrom R.B. Firestone. Www table of radioactive isotopes. <http://ie.lbl.gov/toi/>, 2004.
- [31] National Physical Laboratory website. http://www.kayelaby.npl.co.uk/atomic_and_nuclear_physics/, 2009.

Ringraziamenti

Mi sembra doveroso ringraziare le numerose persone che hanno contribuito alla riuscita di questo lavoro.

In primo luogo il professor Mauro Bruno e la professoressa Michela D'Agostino per il loro lavoro di supervisione e perché in questi anni si sono preoccupati della mia formazione, lasciandomi sempre libero di seguire ed inseguire i percorsi che ho ritenuto più vicini alle mie attitudini.

Un grazie particolare alla dott.sa Fabiana Gramegna che ha seguito ogni passo del mio percorso di tesi, guidandomi giorno per giorno alla scoperta del magico mondo della fisica sperimentale, sicuramente devo a lei molte delle conoscenze acquisite negli ultimi mesi. Grazie per il tempo speso ad insegnarmi qualsiasi cosa servisse, per aver allargato i miei orizzonti in tanti campi e per averlo fatto sempre con gentilezza e disponibilità uniche.

Nei miei soggiorni legnanesi ho avuto il piacere di collaborare con tante persone, in particolare vorrei ringraziare Vladimir Kravchuk, Marco Cinausero, Carlo Scian e Meltem Degerlier con i quali ho trascorso piacevoli giornate e che non mi hanno mai fatto mancare il loro supporto concreto.

Un contributo scientifico importante mi è stato fornito dal prof. Alberto Quaranta e dalla dott.sa Sara Carturan, ringrazio entrambi per il supporto e la pazienza con cui hanno risposto alle mie numerose domande.

Mi sembra doveroso citare anche i membri fiorentini della collaborazione NUCL-EX che mi hanno offerto un sostegno informatico costante, in particolare Luigi Bardelli, Maurizio Bini e Gabriele Pasquali.

Un grazie particolare anche a Giorgio e Davide con i quali ho condiviso questi anni di Università e che non mi hanno mai fatto mancare il loro supporto e la loro stima.

Infine mi si permetta dedicare questo lavoro a Daniela che da sempre il-

lumina le mie giornate con la sua allegria. Non esistono parole per descrivere l'importanza della sua presenza nella mia vita, senza di lei nulla avrebbe significato.

Grazie per questi anni passati insieme e per avermi lasciato libero di inseguire i miei sogni.