

ALMA MATER STUDIORUM · UNIVERSITÀ DI BOLOGNA

FACOLTÀ DI SCIENZE MATEMATICHE, FISICHE E NATURALI

Corso di Laurea Triennale in Fisica

**Rivelatori a scintillazione
per esperimenti di fisica nucleare**

Relatore:

Prof. Mauro Bruno

Candidato:

Tommaso Marchi

Correlatori:

Dott.sa Fabiana Gramegna

Prof. Alberto Quaranta

**Sessione II
Anno Accademico 2005/2006**

Ad Alberto.

Introduzione

Uno dei rivelatori più utilizzati negli apparati di rivelazione di particelle cariche in esperimenti di Fisica Nucleare è lo scintillatore CsI(Tl).

Diversi sono i motivi per cui l'utilizzo di questo rivelatore si è diffuso. Il primo consiste nella facilità con la quale è possibile ottenere dei cristalli con la forma voluta in modo da potersi adattare a qualunque geometria dell'apparato sperimentale. Il secondo motivo è che è possibile avere rivelatori di spessori tali da poter frenare i prodotti della reazione sia a bassa energia che alle energie più elevate per la Fisica Nucleare. Infine, e ciò non è trascurabile quando il numero di rivelatori comincia ad essere notevole, il loro costo è relativamente basso, molto più basso dei rivelatori al silicio. Rispetto a questi ultimi poi è anche molto minore il danneggiamento dovuto alle radiazioni incidenti. Rivelatori di questo tipo, scintillatori inorganici, presentano però un notevole svantaggio in quanto non sono lineari, cioè la loro risposta, che è una risposta in luce, non è proporzionale alla perdita di energia di particelle e frammenti nei rivelatori stessi.

È quindi necessaria una lunga procedura di calibrazione che permetta di costruire una relazione fra la luce raccolta e l'energia perduta dalle particelle in funzione di carica e massa dei prodotti di reazione. Sono state effettuate diverse misure di calibrazione ed ottenuti diversi risultati, che in generale dipendono dai cristalli utilizzati [1], [2].

Nell'ambito della collaborazione NUCLEX ¹ dell'INFN è iniziato un programma con lo scopo di affrontare il problema cercando di studiare a fondo i processi di scintillazione dei CsI(Tl). È nata recentemente una collaborazione internazionale (FAZIA) fra Italia, Francia, Spagna, Polonia e Romania per ricerca e sviluppo di rivelatori di nuova generazione che abbiano prestazioni di risoluzione ed identificazione delle particelle rivelate molto superiori a quelle degli apparati esistenti, in modo da poter essere utilizzati per esperimenti con fasci instabili, prodotti dagli

¹Collaborazione tra le sezioni INFN e le Università di Bologna, Firenze, Milano, Napoli, Trieste ed i Laboratori Nazionali di Legnaro.

acceleratori che sono in corso di progettazione e costruzione con FAIR presso il GSI di Darmstadt (Germania), Spiral II presso Ganil di Caen (Francia) e SPES presso i Laboratori Nazionali di Legnaro.

Il programma di ricerca, nell'ambito del quale è stato svolto questo lavoro di tesi, consiste nell'applicare diverse tecniche per studiare le concentrazioni di Tallio nel rivelatore, gli spettri ottici di emissione dei cristalli, la risoluzione energetica per particelle e frammenti pesanti ed infine la capacità di discriminazione ed identificazione delle particelle con tecnica di studio di forma dell'impulso (*pulse shape*). In questa tesi vengono in particolare riportati i risultati ottenuti con particolari tecniche IBA (*Ion Beam Analysis*).

Con il termine IBA si intendono tutte le tecniche nucleari che, rivelando ed analizzando i prodotti dell'interazione di un fascio di ioni con il campione da indagare, utilizzato come bersaglio, consentono di determinarne la composizione elementare. Le particelle sonda possono provenire da sorgenti radioattive, ma si fa generalmente uso di protoni o particelle alfa prodotti da acceleratori elettrostatici con energia massima tra i 2 ed i 6 MeV. La possibilità di definire e variare con precisione parametri quali l'energia, le dimensioni e l'intensità del fascio incidente, fa delle tecniche IBA uno degli strumenti più versatili nell'analisi della struttura dei materiali. I campi di applicazione, infatti, sono i più vasti: dall'analisi della composizione di particolato atmosferico, allo studio degli elementi presenti nelle pitture di opere d'arte.

Le tecniche IBA più diffuse sono: PIXE (*Particle Induced X-ray Emission*), PIGE (*Particle Induced Gamma-ray Emission*), RBS (*Rutherford Back Scattering*) e NRA (*Nuclear Reaction Analysis*). Le prime due sfruttano, come caratterizzante della composizione del bersaglio (campione) l'emissione di raggi X e gamma di energie caratteristiche della specie atomica o dell'isotopo su cui viene indotta l'emissione. L'NRA si basa, invece, sulla rivelazione delle particelle emesse a seguito di reazioni nucleari: sfruttando le risonanze delle sezioni d'urto di interazioni nucleari è possibile, selezionato un elemento, studiarne il profilo di concentrazione. Infine la RBS si serve della diffusione elastica all'indietro delle particelle stesse del fascio, solitamente alfa. Siccome la sezione d'urto dipende dall'angolo di deviazione e dalla massa dell'elemento urtato, è possibile dedurre quest'ultima misurando l'energia della particella dopo l'urto. Le analisi IBA sono quantitative: forniscono dettagli sulla composizione elementare del campione e rendono possibile la misura di concentrazioni relative degli elementi stessi. Le caratteristiche comuni, che contribuiscono a rendere queste tecniche così versatili sono:

- la non distruttività, la possibilità quindi di effettuare la misura senza rendere necessari prelievi di materiale o l'alterazione permanente del campione;

- la breve durata delle misure, che consente di studiare in tempi contenuti diverse zone del materiale in esame, fornendo quindi risultati medi o puntuali;
- l'elevata sensibilità per una vasta gamma di elementi, per cui con una singola misura è possibile riconoscere quasi sempre la totalità degli elementi presenti;
- la possibilità di effettuare misure in aria, che rende le manovre di posizionamento e movimentazione del campione molto più veloci e permette l'analisi di materiali isolanti che, scaldandosi localmente a causa del bombardamento, in vuoto potrebbero presentare problemi di dissipazione.

Una particolare tecnica IBA è rappresentata dalla IBIL (*Ion Beam Induced Luminescence*) che permette di analizzare lo spettro di emissione di materiali che emettono luce se sottoposti ad un fascio di ioni.

Indice

Introduzione	i
1 Rivelatori a scintillazione	1
1.1 Introduzione	1
1.2 Materiali scintillatori e meccanismi di scintillazione	2
1.2.1 Scintillatori Organici	2
1.2.2 Scintillatori Inorganici	5
1.2.3 Scintillazione dei CsI(Tl)	7
1.3 I rivelatori di GARFIELD	10
1.3.1 I cristalli	13
1.3.2 Risposta in luce dei rivelatori	16
2 Analisi IBIL di Cristalli CsI(Tl)	19
2.1 Introduzione	19
2.2 Apparato sperimentale	19
2.3 I cristalli	22
2.4 Calibrazione dello spettrometro	22
2.5 La misura	23
2.6 Analisi dati	26
2.6.1 Confronto in forma degli spettri	26
2.6.2 Studio delle differenze di forma	30
2.6.3 Analisi del degrado esponenziale	32
3 Analisi PIXE di Cristalli CsI(Tl)	35
3.1 La tecnica PIXE (<i>Particle Induced X-ray Emission</i>)	35
3.1.1 Emissione di raggi X da "Shell atomiche"	37
3.1.2 Analisi PIXE quantitativa	41
3.2 La misura	45
3.2.1 Il sistema di accelerazione	45

3.2.2	L'apparato di misura	46
3.2.3	Misure effettuate	50
3.3	Analisi dati	52
3.3.1	Analisi quantitativa con GUPIX	53
3.3.2	Riepilogo delle misure e risultati	55
Conclusioni		57
A Listati dei programmi utilizzati		59
A.1	Pulizia dal rumore di "fondo" elettronico	59
A.2	Correzione per la taratura dello spettrometro	61
A.3	Creazione di serie temporali	63
A.4	Normalizzazione	64
B Parametri GUPIX per l'analisi PIXE		67

Capitolo 1

Rivelatori a scintillazione

1.1 Introduzione

L'emissione di radiazione elettromagnetica da parte di un materiale non radioattivo è dovuta ad un processo di assorbimento di energia da parte della sostanza, che si porta in una configurazione eccitata non stabile. Per tornare nello stato di minima energia (cioè quello stabile) il materiale perde l'energia immagazzinata emettendo fotoni. La radiazione incidente può essere di varia natura: termica, cinetica, chimica o elettromagnetica. Sia che si tratti di un atomo, di una molecola, di un reticolo cristallino o di un'altra configurazione, si schematizza la struttura energetica dell'oggetto come un insieme di livelli discreti tra i quali ci si può muovere solo se l'energia assorbita o emessa è esattamente uguale alla differenza di energia tra i due livelli $\Delta E = E_f - E_i$.

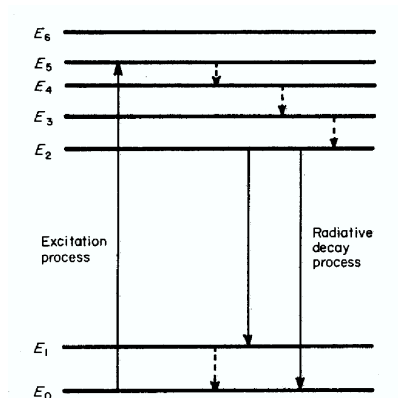


Figura 1.1: Transizioni tra livelli energetici discreti.

1.2 Materiali scintillatori e meccanismi di scintillazione

In esperimenti di fisica nucleare, in cui avvengono urti tra nuclei, è necessario misurare con precisione l'energia, la natura e la direzione dei prodotti della reazione. In particolare, in questo lavoro, facciamo riferimento alle esigenze dei rivelatori dell'apparato GARFIELD presso i Laboratori Nazionali di Legnaro utilizzato per lo studio di collisioni tra ioni pesanti ad energie di $10 \div 15$ A MeV.

Una delle tecniche utilizzate per la rivelazione di radiazioni ionizzanti consiste nell'accoppiare un materiale scintillatore ed un fotomoltiplicatore o un fotodiodo, ottenendo un *rivelatore a scintillazione*. Quando la radiazione attraversa lo scintillatore causa l'emissione di un impulso luminoso visibile, che viene rivelato dal fotodiodo o dal fotomoltiplicatore e trasformato in un impulso elettrico, che può essere memorizzato ed analizzato. Introduciamo ora brevemente la teoria della scintillazione nei materiali.

1.2.1 Scintillatori Organici

La distinzione tra rivelatori organici ed inorganici è principalmente dovuta ad un diverso meccanismo di scintillazione legato alla sostanziale differenza nella struttura dei livelli energetici dei materiali che li costituiscono [3]. Questo lavoro è interamente dedicato allo studio delle proprietà di scintillazione di cristalli CsI(Tl), quindi di materiali inorganici. L'utilizzo di scintillatori organici, tuttavia, è molto diffuso e ad essi è dedicata buona parte della ricerca in campo applicativo e di fisica dei materiali. Si studia anche la possibilità di utilizzare scintillatori plastici come rivelatori di particelle e ioni pesanti in esperimenti di fisica nucleare. Per questo si vuole fornire una breve introduzione sui meccanismi di emissione da parte di questi materiali.

Il processo di fluorescenza dei materiali organici avviene per transizioni energetiche nella struttura molecolare, indipendentemente dallo stato fisico in cui si trovano. Questo permette di osservare fluorescenza in solidi organici, vapori e soluzioni a molte componenti, mentre per materiali inorganici è richiesta una precisa struttura cristallina. La maggior parte degli scintillatori organici si basa su molecole che, per particolari ragioni di simmetria, danno luogo a legami π . La struttura dei livelli energetici che coinvolgono legami π è illustrata in figura 1.2.

L'assorbimento di energia da parte della molecola avviene eccitando un elettrone, facendolo passare ad un livello superiore. Nell'esempio si osservano una serie di stati di singoletto (spin 0) denotati come S_0, S_1, S_2, \dots e un analogo insieme di stati

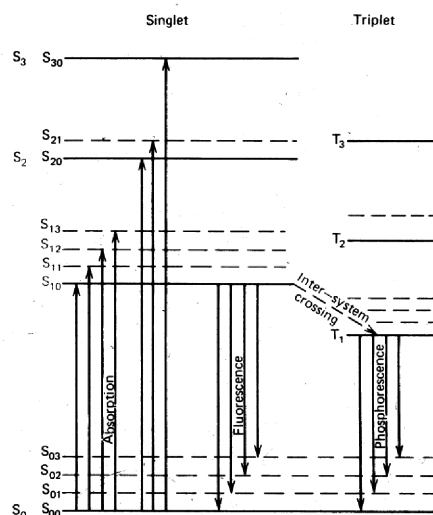


Figura 1.2: Livelli energetici di una molecola organica con legami π .

di tripletto (spin 1) T_0, T_1, T_2, \dots . La separazione tipica tra livelli di questo tipo è dell'ordine di 3 o 4 eV. Ognuna di queste configurazioni elettroniche può essere suddivisa in una serie di sottolivelli energetici legati ai gradi di libertà vibrazionali delle molecole; qui le differenze energetiche tipiche sono molto più piccole: dell'ordine di 0.15 eV. I sottolivelli vengono indicati dal secondo pedice, ad esempio lo stato S_0 si divide in $S_{00}, S_{01}, S_{02}, \dots$

Se vengono eccitati, gli stati di singoletto più elevati decadono in pochi picosecondi nel livello S_1 e l'energia liberata non produce radiazione. Anche gli stati $S_{11}, S_{12}, S_{13}, \dots$ non sono in equilibrio termico con i livelli vicini e cedono energia vibrazionale molto velocemente portandosi sempre nella configurazione S_{10} . Da qui ha origine il processo principale di scintillazione: la cosiddetta *fluorescenza istantanea* è la transizione da S_{10} ad uno qualunque dei livelli S_0 (che comporta l'emissione del fotone osservato). Se τ è il tempo di decadimento per il livello S_{10} , l'intensità della fluorescenza istantanea osservata ad un tempo t sarà:

$$I = I_0 e^{-t/\tau} \quad (1.1)$$

Tipicamente τ è dell'ordine di qualche nanosecondo, quindi l'emissione è piuttosto rapida. Il tempo di vita dello stato di tripletto T_1 è generalmente più lungo. Tramite meccanismi di trasferimento interno di energia può accadere che stati di singoletto si trasformino in tripletto (intersystem crossing) e, da qui, si produca radiazione luminosa. In questo caso i tempi caratteristici sono molto più lunghi

($\sim 10^{-3}s$), quindi la radiazione osservata è una fluorescenza più lenta, nota anche come *fosforescenza*. Siccome il livello T_1 è meno energetico di qualunque S_1 , lo spettro di fosforescenza avrà lunghezze d'onda più grandi di quello di fluorescenza.

Un terzo effetto si può avere se dallo stato T_1 alcuni elettroni eccitati termicamente riescono a tornare nello stato S_1 , dando origine questa volta alla cosiddetta *fluorescenza ritardata*.

Osservando la figura 1.2 si può intuire il motivo per cui molti scintillatori organici siano trasparenti alla loro stessa radiazione. La componente assorbita è quella alle energie rappresentate dalle frecce verso l'alto: ad un ΔE elevato corrispondono lunghezze d'onda piccole ($\Delta E = h\nu$). I fotoni emessi invece avranno lunghezze d'onda più grandi (ΔE minori). Questo fa sì che la sovrapposizione di energie tra emissione e assorbimento sia piccola (fig. 1.3) e che quindi il materiale sia trasparente alla sua stessa luce. Questo meccanismo di assorbimento e riemissione di radiazione elettromagnetica con uno spostamento laterale dello spettro energetico prende il nome di "Stokes shift" e verrà illustrato più avanti.

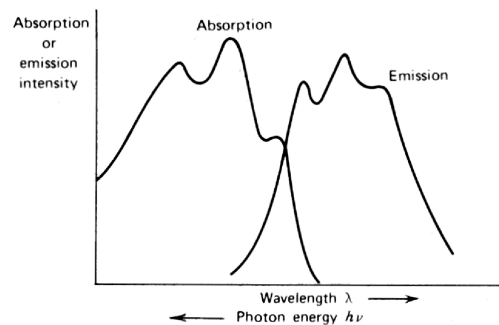


Figura 1.3: Spettri di assorbimento e di emissione. Minore è la sovrapposizione, minore è l'autoassorbimento della radiazione emessa.

Un concetto importante, che prescinde dalla natura del materiale, è quello dell'*efficienza di scintillazione*. Il termine indica la frazione di energia incidente che viene trasformata in luce visibile; uno scintillatore ideale dovrebbe avere una efficienza del 100%, ma questo non è possibile a causa di numerosi fenomeni di diseccitazione non radiativa, indicati generalmente con il termine *quenching*. Principalmente si tratta di trasferimenti termici che, favoriti dalla presenza di difetti nel materiale, fanno sì che l'energia assorbita venga rilasciata sotto forma di calore.

Nella maggior parte dei materiali organici l'energia di eccitazione viene trasferita tra varie molecole prima che abbia luogo il processo radiativo, questo meccanismo

è di particolare importanza per una vasta categoria di scintillatori che coinvolgono più specie molecolari. Spesso si utilizza un solvente, in grado di catturare la maggior parte dell'energia incidente, nel quale è disciolta una piccola quantità di un materiale scintillatore molto efficiente, in modo da ottimizzare la resa del rivelatore. A volte si introduce una terza componente: si tratta di un altro materiale scintillatore in grado di assorbire la luce del primo e di riemetterla a lunghezze d'onda diverse (*Waveshifter*), così si possono ottenere frequenze luminose ben rilevabili da un fotomoltiplicatore o da un fotodiode.

Il vantaggio nell'utilizzo di scintillatori organici risiede sicuramente nella flessibilità di questi materiali: si possono avere cristalli organici ma anche soluzioni liquide o materiali plastici. Gli ultimi due sono molto utili in esperimenti in cui sia necessario riempire grandi volumi a costi contenuti. Per la produzione, l'installazione e la gestione, i materiali plastici o liquidi di grande volume sono sicuramente più semplici e meno costosi dei cristalli inorganici.

1.2.2 Scintillatori Inorganici

Negli scintillatori inorganici il meccanismo di emissione è strettamente legato alla struttura cristallina del materiale: i livelli energetici disponibili per gli elettroni sono determinati dalla tipica struttura a bande discrete di energia. Isolanti e semiconduttori presentano un gap di energie proibite tra la banda di conduzione e quella di valenza: nella banda di valenza si trovano gli elettroni più legati all'atomo, mentre nella banda di conduzione troviamo quegli elettroni che hanno energia sufficiente da poter essere considerati liberi di muoversi all'interno del cristallo. Se il cristallo è puro, nella banda proibita non si osservano elettroni.

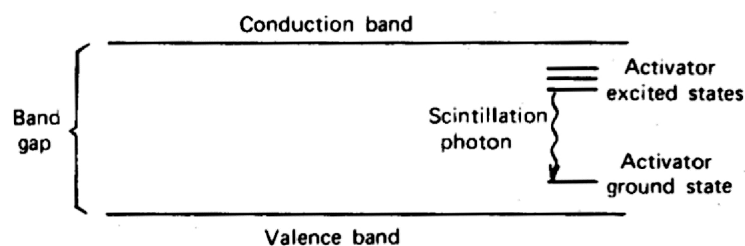


Figura 1.4: Bande di energia in un materiale inorganico puro e loro modifica ad opera di un elemento attivatore.

L'assorbimento di energia può causare il passaggio di un elettrone dalla banda

di valenza alla banda di conduzione e la conseguente creazione di una lacuna nella banda di valenza. Nei cristalli puri il ritorno dell'elettrone nella banda di valenza con l'emissione di un fotone non è un meccanismo efficiente, inoltre la differenza energetica tra i livelli è talmente alta che nella maggior parte dei casi il fotone emesso sarebbe troppo energetico per risultare nel visibile. Questo meccanismo, detto *luminescenza intrinseca*, deve quindi essere scartato ai fini dell'utilizzo dei cristalli come scintillatori. Risulta quindi indispensabile inserire elementi droganti all'interno del reticolo cristallino: queste impurità creano siti nel reticolo in cui la struttura energetica è modificata e si rende possibile la popolazione della banda proibita, consentendo transizioni ottiche; le zone del reticolo in cui la struttura è così modificata vengono dette *centri di luminescenza* o *centri di ricombinazione* e sono responsabili dello spettro di emissione dello scintillatore. È necessario che i livelli energetici fondamentale ed eccitato dell'attivatore stiano all'interno della banda proibita del cristallo (fig. 1.4), tipici attivatori sono Tl, Eu, Ag. In figura 1.5 si possono confrontare gli spettri di emissione di vari materiali.

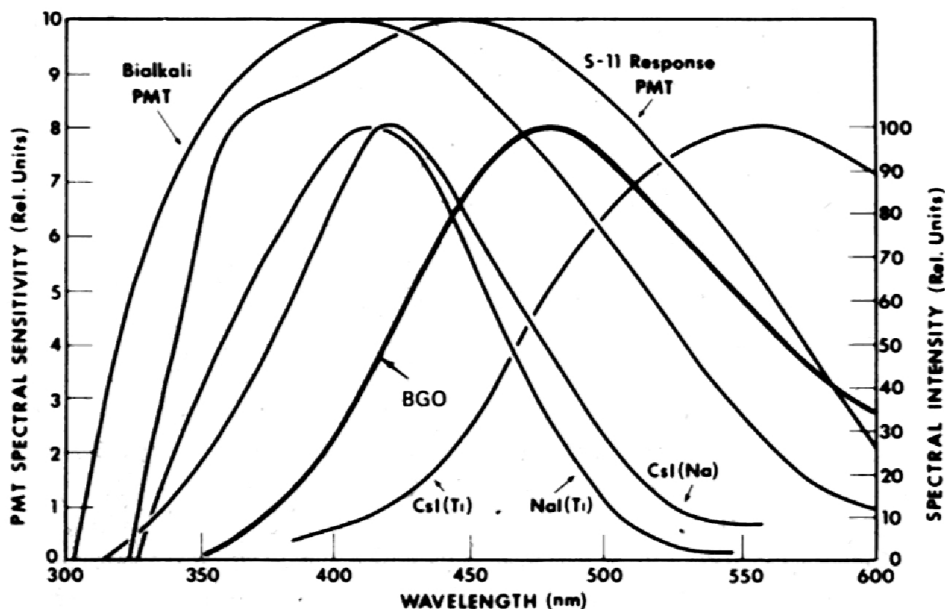


Figura 1.5: Spettri di emissione di diversi materiali scintillatori.

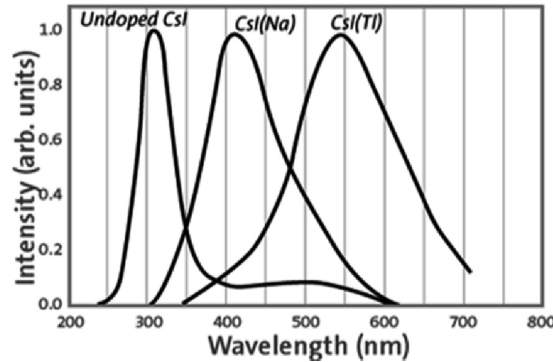


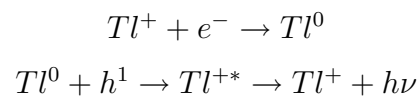
Figura 1.6: Emissioni da CsI con differenti elementi attivatori.

1.2.3 Scintillazione dei CsI(Tl)

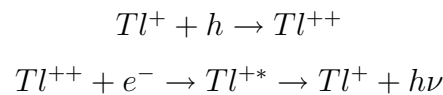
Esponiamo ora i meccanismi di scintillazione tipici dei cristalli che ci interessano: i CsI(Tl). Quando una particella carica attraversa il rivelatore si formano una grande quantità di coppie elettrone-lacuna (ionizzazione primaria).

Le lacune - di carica positiva - si spostano rapidamente verso la zona in cui sono presenti dei centri di ricombinazione, mentre gli elettroni sono liberi di muoversi nel cristallo (banda di conduzione) fino a quando anche loro incontrano un sito di diseccitazione. A questo punto l'emissione luminosa può avvenire in diversi modi:

1. Cattura di un elettrone da parte di un centro Tl^+ , che diventa un Tl^0 , seguito dalla cattura di una lacuna che porta lo ione monovalente Tl^{+*} ad uno stato eccitato.



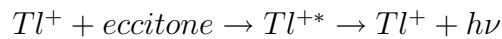
2. Cattura di una lacuna da parte di un centro Tl^+ , che diventa Tl^{++} seguito poi dalla cattura di un elettrone con formazione di ioni Tl^{+*} .



3. Cattura simultanea da parte di un centro Tl^+ di una coppia elettrone lacuna legati tra loro a formare una pseudo-particella detta *eccitone*. Si tratta di

¹h = hole, lacuna.

uno stato metastabile ad energia più bassa di quella necessaria per ottenere scintillazione intrinseca, ma sufficientemente alta da favorire l'emissione ottica in presenza dell'attivatore. L'elettrone e la lacuna rimangono associati e possono muoversi liberamente all'interno del cristallo finché trovano un centro di diseccitazione:



Tutti gli stati eccitati decadono in $50 \div 500 \text{ ns}$ e lo spettro emesso è caratteristico del materiale attivatore.

In realtà esistono numerosi altri processi che competono con la diseccitazione ottica e sono responsabili di quenching o di alterazioni dello spettro di emissione:

1. L'elettrone che arriva al sito di ricombinazione si può trovare ad energia corrispondente ad uno stato semi-eccitato la cui transizione allo stato fondamentale sia proibita. È necessario l'apporto di ulteriore energia per portare l'elettrone in un livello energetico più alto, da dove sia permessa la transizione finale. Un sorgente per l'energia richiesta potrebbe essere l'eccitazione termica, che richiede tempi lunghi e l'emissione luminosa ritardata imputabile a questo processo viene detta *fosforescenza*.
2. I difetti reticolari possono comportarsi da centri attivatori, creando configurazioni energetiche diverse che ammettano comunque transizioni ottiche.
3. Quando un elettrone arriva in un sito attivatore, potrebbero avvenire transizioni non radiative tra stati eccitati più bassi e lo stato fondamentale, l'energia viene così dispersa sotto forma di calore e non sono emessi fotoni.
4. I difetti reticolari possono causare situazioni particolari in cui l'energia di eccitazione viene trasferita al reticolo cristallino in maniera non radiativa.

È importante notare che, se un atomo libero presenta uno stato fondamentale ed uno eccitato, posto all'interno di un reticolo cristallino subisce l'influenza di tutti gli ioni circostanti e manifesta la suddivisione sia del livello fondamentale che di quello eccitato in più sotto-livelli. Inoltre, la vibrazione del reticolo cristallino causa un allargamento di questi sottolivelli: si tratta dei gradi di libertà vibrazionali degli ioni del reticolo, che possono essere trattati come oscillatori armonici quantizzati. In figura 1.7 sono mostrati la separazione dei livelli energetici e la configurazione energetica totale di ogni stato.

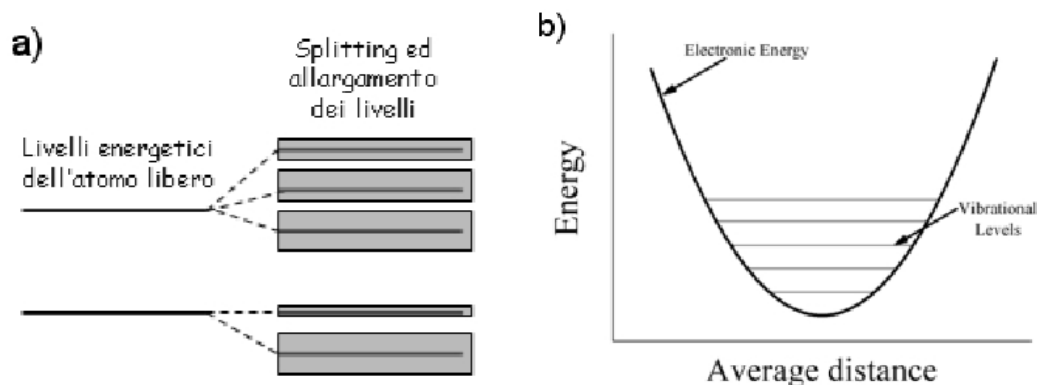


Figura 1.7: Separazione ed allargamento dei livelli energetici per un atomo inserito in un reticolo cristallino.

I sottolivelli energetici, dovuti alla presenza di attivatori, di difetti reticolari o ai gradi di libertà vibrazionali, causano un effetto a cui si era accennato parlando degli scintillatori organici: lo *Stokes Shift*. Questo modello spiega come sia possibile per una sostanza assorbire energia ad una certa frequenza e riemetterla a frequenze differenti. Il meccanismo è mostrato in figura 1.8. Il cristallo assorbe i fotoni incidenti permessi dalla sua struttura energetica, portando gli elettroni nello stato eccitato in tempi brevissimi ($10^{-15}s$), la popolazione dei sottolivelli energetici dello stato eccitato determina così lo *spettro di assorbimento*. In tempi altrettanto brevi ($10^{-12}s$), però, i sottolivelli si spopolano in maniera non radiativa (ad esempio fornendo energia termica al reticolo) e si portano nel livello più basso dello stato eccitato, l'unico da cui è possibile il salto quantico verso lo stato fondamentale: lo *spettro di emissione* sarà quindi caratterizzato da tutti i ΔE possibili tra questi due stati. Gli elettroni che non cadono direttamente nel livello di minima energia disperdono di nuovo l'eccesso energetico in maniera non radiativa (emissione di fononi, quanti di energia vibrazionale). Una conseguenza fondamentale del meccanismo di shift energetico, per quanto riguarda l'applicazione ai rivelatori a scintillazione, è di rendere trasparente il materiale alla sua stessa radiazione. In cristalli puri, infatti, l'energia emessa ed assorbita hanno la stessa frequenza e questo può causare l'autoassorbimento del fotone emesso. Il materiale risulterebbe opaco alla sua stessa radiazione, compromettendo in maniera sensibile l'efficienza del rivelatore.

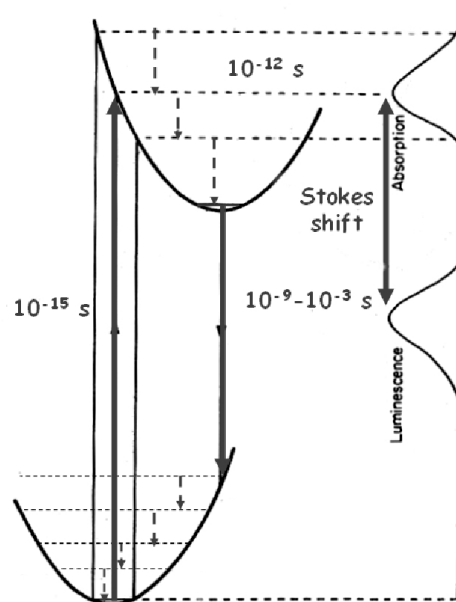


Figura 1.8: Stokes Shift.

1.3 I rivelatori di GARFIELD

Per essere utilizzato in un rivelatore, un materiale scintillatore deve soddisfare determinate caratteristiche:

1. deve convertire l'energia della particella incidente in luce con elevata efficienza, la conversione deve essere lineare e l'emissione luminosa deve essere il più possibile proporzionale all'energia depositata;
2. il mezzo deve essere il più possibile trasparente alla radiazione emessa, in modo da permettere la trasmissione della luce fino al punto di raccolta (fotomoltiplicatore o fotodiodo);
3. il tempo di decadimento della luminescenza indotta deve essere il più breve possibile, in modo da permettere la generazione di impulsi veloci;
4. il materiale deve essere della giusta qualità ottica e delle dimensioni adatte alle necessità pratiche dell'apparato;
5. il suo indice di rifrazione deve essere compatibile con quello dei materiali che compongono l'apparecchio fotosensibile, in modo da evitare alterazioni della lunghezza d'onda originale per rifrazione.

Ovviamente non tutti gli scintillatori soddisfano a pieno queste richieste, quindi è necessario trovare il giusto compromesso tra qualità e costi e valutare le singole situazioni. Nonostante i CsI non abbiano un'ottima risoluzione energetica, presentano numerosi vantaggi: non sono eccessivamente costosi; sono duttili per lavorazioni meccaniche; non hanno alcun limite di forma geometrica; non subiscono forti danneggiamenti da radiazioni e l'elevato potere frenante ($\rho = 4,51g/cm^2$ per i CsI(Tl)) permette di rivelare particelle leggere di elevata energia. Per questo sono stati scelti come parte integrante della strumentazione di misura nell'apparato di GARFIELD. L'inconveniente principale è che l'uscita di luce dipende in maniera non lineare dall'energia depositata e, a parità di energia, cambia con il tipo di ione. C'è quindi una forte dipendenza della risposta del rivelatore sia dall'energia incidente che dal numero atomico della particella incidente. La calibrazione di un CsI(Tl) risulta quindi molto complessa in quanto richiede di disporre di fasci di ioni differenti a diverse energie e di cercare relazioni analitiche tra l'uscita in luce e il tipo di particella rivelato; il processo è costoso ed impegnativo ed evidenzia che ogni singolo cristallo presenta caratteristiche proprie.

L'obiettivo ultimo del programma di studio sistematico sulle proprietà dei cristalli CsI, in cui si inserisce questo lavoro, è quello di costruire una curva di calibrazione "universale" che consenta di semplificare la procedura di calibrazione (ad esempio diminuendo il numero di ioni necessari) e, se possibile, aumenti il numero di informazioni ottenibili in una singola misura.

Si vuole anche capire se una conoscenza approfondita delle proprietà di emissione di questi materiali possa consentire di migliorare la prestazione di apparati già installati e funzionanti.

Sono in corso studi sulla risposta in luce di cristalli scintillatori al variare della percentuale di drogaggio ed in relazione allo stato della superficie del cristallo stesso; si è già detto che i difetti reticolari possono agire da centri attivatori o da trappole elettroniche ed è nota una certa igroscopicità delle superfici dei CsI: con tecniche IBA (vedi introduzione) si cerca di rendere quantitative queste conoscenze.

Per ora, i CsI(Tl) vengono utilizzati per misure di energia e di carica, da cui si cerca di risalire alla massa dello ione incidente. Nell'apparato GARFIELD gli scintillatori sono posti in modo da essere raggiunti dalle particelle emesse in una reazione nucleare, dopo che le stesse hanno attraversato uno spessore di gas di una camera a ionizzazione. Ciò consente la misura della perdita di energia in gas: da questa misura di ΔE , insieme alla misura dell'energia residua ceduta completamente al cristallo, è possibile risalire alla carica dello ione con il metodo $\Delta E - E$ che consiste

nell'applicazione della formula di Bethe-Bloch a particelle non relativistiche:

$$\frac{dE}{dx} = C_1 \frac{mz^2}{E} \ln C_2 \frac{E}{m} \quad (1.2)$$

dove C_1 e C_2 sono delle costanti. Se si considera il prodotto $E(\frac{dE}{dx})$ si ottiene un risultato che dipende debolmente dall'energia della particella ma fortemente sensibile a mz^2 che è proprio la quantità che si vuole trovare. Per particelle leggere, il metodo $\Delta E - E$ non è applicabile perché la perdita di energia nella camera a deriva è troppo piccola per essere risolta in maniera accettabile. Si è notato, però, che l'emissione luminosa dei CsI(Tl) è caratterizzata da una combinazione di due esponenziali con costanti di tempo differenti:

$$L(t) = L_1 e^{-\frac{t}{\tau_1}} + L_2 e^{-\frac{t}{\tau_2}} \quad (1.3)$$

dove $L(t)$ è l'ampiezza del segnale fornito dal fotodiodo al tempo t e L_1, L_2 sono le ampiezze delle componenti veloce ($0,4 \leq \tau_1 \leq 0,7 \mu s$) e lenta ($\tau_2 \sim 3,2 \mu s$) del segnale. Queste due componenti dipendono in modo diverso dalla densità di ionizzazione, quindi da massa, energia e carica della particella incidente. Questa proprietà consente di distinguere la massa degli ioni da un'analisi di forma dell'impulso elettrico osservato. Esistono vari metodi basati sull'integrazione di parti differenti dell'impulso e sul loro rapporto, ne illustriamo uno.

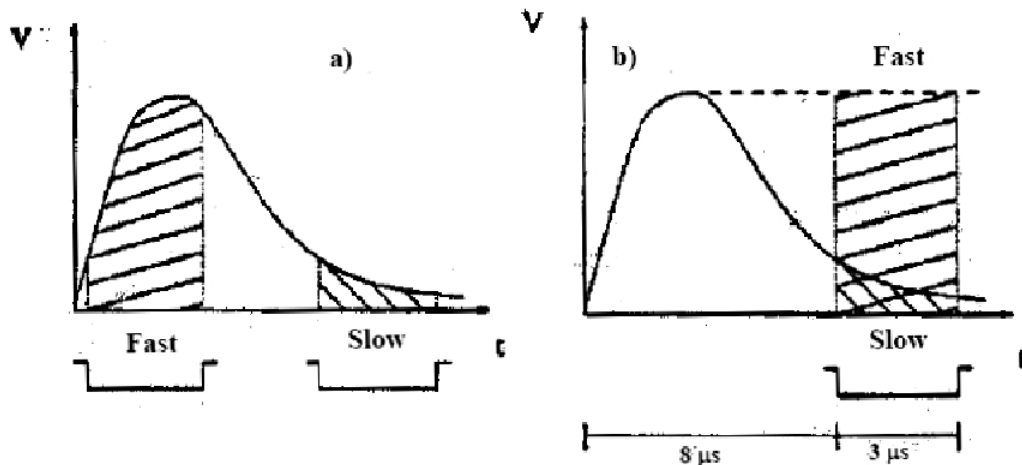


Figura 1.9: Integrazione del segnale per componenti "fast" e "slow".

Se l'ampiezza luminosa integrata dal fotodiodo ($L(t)$) viene amplificata con costanti di tempo di $1 \div 2 \mu s$, l'informazione relativa alla componente veloce L_1 non

viene variata, mentre si taglia l'informazione dovuta alla componente lenta che contribuirà maggiormente alla coda del segnale. Integrando due parti differenti del segnale prodotto dall'amplificatore del CsI(Tl), è possibile ottenere due impulsi proporzionali alle componenti veloce e lenta originali (fig 1.9). Graficando le due componenti una in funzione dell'altra si osserva una buona distinzione isotopica per particelle cariche con $Z \leq 3$, mentre già per $Z = 4, 5$ la dipendenza dalla massa non è più osservabile. Per $Z \geq 6$ la dipendenza dei segnali dei CsI(Tl) dalla densità di ionizzazione satura e la discriminazione non è più possibile [4], [5], [6], [7], [8], [9]. In figura 1.10 è mostrato un esempio in cui si osservano distintamente le discriminazioni isotopiche per $Z=1, 2$ e 3 .

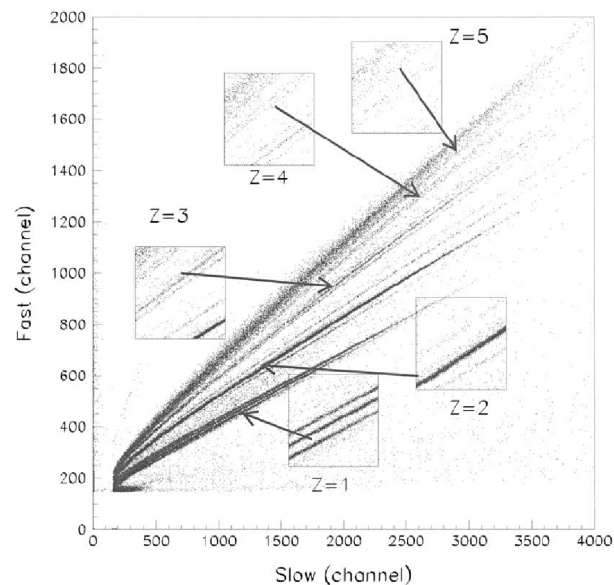


Figura 1.10: Discriminazione isotopica grazie alle componenti veloce e lenta del segnale.

1.3.1 I cristalli

In figura 1.11 è mostrata la forma tipica di uno dei cristalli utilizzati per GARFIELD.

Illustriamo ora sinteticamente le fasi di preparazione dei rivelatori. A causa della loro igroscopicità è importante lavorare in ambiente pulito ed evitare il contatto delle superfici del cristallo con l'umidità, per questo si maneggiano utilizzando guanti in lattice e vengono conservati sotto campane a vuoto. Per prima cosa è necessario

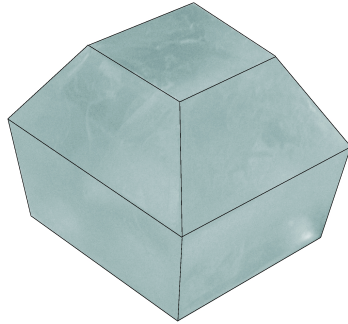


Figura 1.11: Uno dei cristalli CsI(Tl) dell'esperimento Garfield.

lucidare le superfici del cristallo: sia quella esposta alla radiazione, che quella su cui verrà applicato il fotodiiodo; successivamente si passerà all'incollaggio del fotodiiodo stesso e quindi alla fasciatura.

Lucidatura

Questo processo avviene in più fasi che progressivamente migliorano il grado di rifinitura.

Il primo passaggio viene fatto con carta abrasiva di marca *3M* con granatura 1000 per togliere i segni della fresatura ed eventuali graffi. Si inumidisce la carta con dell'alcool e vi si strofina il cristallo effettuando una leggera pressione. I passaggi successivi vengono effettuati con paste abrasive diamantate di grana sempre più fine: 9, 6, 3 μm . Si utilizza una lappatrice sui cui dischi vengono appoggiate delle pelli apposite inumidite con alcool e con la pasta abrasiva. L'ultimo passaggio è molto importante perché determina il risultato finale: si utilizza una pasta da 1 μm su una pelle di daino. Se il procedimento è svolto correttamente, la superficie risulta perfettamente liscia e si osserva un netto miglioramento nella risoluzione del rivelatore.

Accoppiamento con fotodiiodi

Come componenti fotosensibili del rivelatore si utilizzano dei fotodiiodi al silicio che hanno la proprietà di contenere abbondantemente l'intervallo di lunghezze d'onda da misurare all'interno della regione di sensibilità (vedi fig. 1.12).

Quando il cristallo è lucidato, si può procedere alla fase di incollaggio del fotodiiodo sulla faccia stabilita. Sono stati effettuati vari test sui tipi di colla e sulla

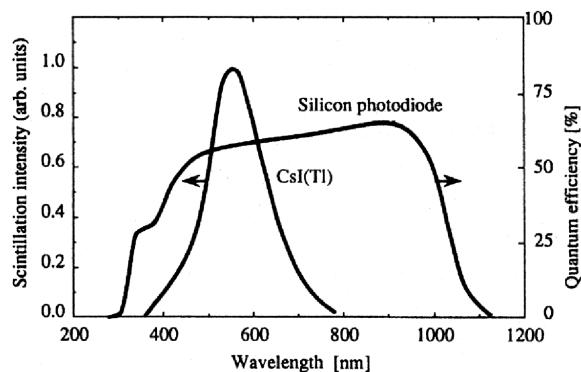


Figura 1.12: Sovrapposizione tra la zona di sensibilità del fotodiode e lo spettro di emissione dello scintillatore.

loro resa e si è scelto di utilizzare colle al silicone formate da due componenti (A) indurente, (B) collante in dosi 1 parte di (A) per 0,6 parti di (B). Le due componenti vengono mescolate energicamente per circa 5 minuti ed il composto ottenuto viene messo sotto una campana di vetro collegata ad una pompa a vuoto in modo che possa degassare e scompaiano eventuali bolle d'aria. Si stendono quindi una o due gocce della colla così ottenuta sulla superficie del fotodiode, alla quale si appoggia poi il cristallo esercitando una leggera pressione. L'oggetto deve essere riposto in ambiente asciutto per $6 \div 10$ ore affinché la colla indurisca.

Fasciatura

L'ultimo stadio della preparazione consiste nella fasciatura del rivelatore. Questa si rende necessaria per almeno tre motivi: per cercare di massimizzarne la resa in luce facendo sì che la maggior parte dei fotoni emessi vengano raccolti dal fotodiode e non dispersi attraverso le altre superfici; per evitare di raccogliere luce dall'esterno; per proteggere la superficie del cristallo dall'umidità. Per poter accostare i rivelatori senza perdere in risoluzione è necessario che l'aumento di spessore del cristallo dovuto alla fasciatura sia il più piccolo possibile. I materiali riflettenti utilizzati sono Mylar alluminato di $1,5 \mu\text{m}$ di spessore e carte riflettenti per usi biologici Millipore. Come isolante si usa del teflon bianco apposito. Lo schema tipico del bendaggio è il seguente:

1. un giro di teflon
2. carta riflettente

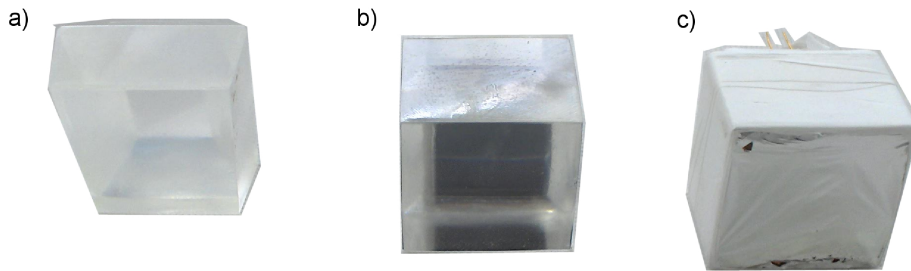


Figura 1.13: Le tre fasi della lavorazione. a) Cristallo lucidato. b) Accoppiamento con fotodiodo. c) Cristallo fasciato.

3. mylar monoalluminato

4. 3 giri di teflon

La faccia esposta alla radiazione deve essere il più possibile trasparente, quindi non è possibile fasciarla come le altre. L'unico rivestimento che si pone è quello in mylar che è riflettente e molto sottile. Il tutto viene avvolto in un rivestimento in rame in modo da schermare elettricamente lo scintillatore.

1.3.2 Risposta in luce dei rivelatori

La più semplice verifica dell'efficienza dei rivelatori è un test con sorgenti note quali alfa e gamma. Questo tipo di controllo è stato eseguito su tutti i CsI(Tl) di GARFIELD prima dell'installazione nell'apparato sperimentale.

Si utilizza una piccola camera a vuoto in cui vengono alloggiati i rivelatori finiti (CsI(Tl) con fotodiodo e fasciatura) e le due sorgenti. Solitamente la sorgente alfa è multipla, composta da ^{239}Pu , ^{241}Am , ^{244}Cm , con energie caratteristiche leggermente diverse: $E^{\text{Pu}} = 5148,85 \text{ KeV}$, $E^{\text{Am}} = 5478,73 \text{ KeV}$, $E^{\text{Cm}} = 5794,88 \text{ KeV}$. La sorgente gamma, invece, è di solo ^{60}Co ed emette tipicamente a due energie differenti: 1,173 MeV e 1,332 MeV. Il fotodiodo viene collegato ad un preamplificatore e successivamente ad un amplificatore e ad un sistema di acquisizione e si osservano

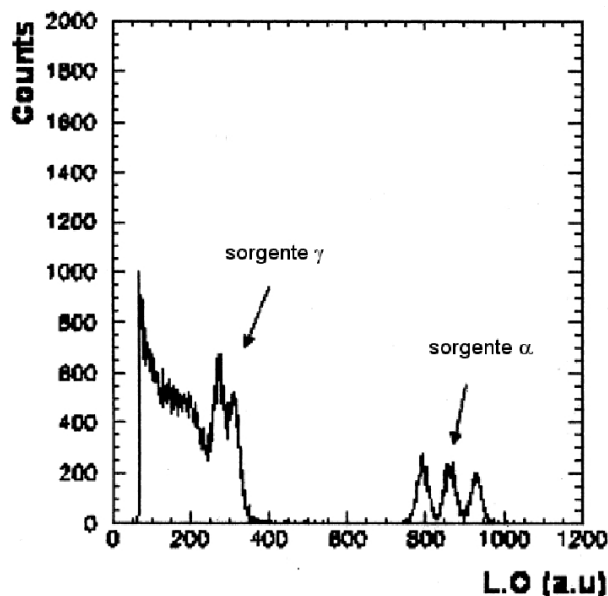


Figura 1.14: Sorgenti alfa e gamma rivelate da un CsI(Tl).

i tre picchi dell'emettitore alfa ed i due (più alti e stretti) della sorgente gamma (vedi fig. 1.14). Per la taratura si sfrutta la conoscenza delle caratteristiche delle sorgenti, ipotizzando che la scala sia lineare. Dal rapporto tra il valore del picco e la larghezza a mezza altezza (FWHM) di ogni componente si ottiene una stima della risoluzione del cristallo. Un'altra analisi utile, che fornisce informazioni sull'efficienza di rivelazione, è il cosiddetto rapporto α/γ . Per le particelle α , più massive, il processo di scintillazione è molto più sensibile ai difetti reticolari ed ai vari effetti di quenching, mentre per i gamma la conversione in luce è molto più regolare. È inoltre noto che l'informazione ottenuta dalle alfa è relativa solo ai primi piani reticolari, visto che vengono assorbite in pochi micrometri, mentre i raggi gamma penetrano in profondità, cedendo una minore quantità di energia specifica. È chiaro quindi che il rapporto tra la quantità di alfa e gamma rivelate fornisce una stima della rilevanza degli effetti di quenching, quindi dell'efficienza di rivelazione, soprattutto nei primi piani reticolari che sono quelli che interessano nella rivelazione di ioni pesanti.

Capitolo 2

Analisi IBIL di Cristalli CsI(Tl)

2.1 Introduzione

In questo capitolo viene illustrata una misura IBIL effettuata nel mese di Ottobre 2006 presso l'acceleratore AN2000 dei Laboratori Nazionali di Legnaro. La tecnica IBIL (*Ion Beam Induced Luminescence*) consiste nel bombardare il materiale luminescente (campione) con un fascio di ioni noto e nell'analizzarne lo spettro di emissione caratteristico. Si vogliono anche osservare le variazioni di emissione in funzione del tempo e dell'intensità del fascio incidente. I campioni esaminati sono tre cristalli CsI(Tl) utilizzati come rivelatori di particelle e ioni pesanti nell'esperimento GARFIELD ed alcuni cristalli che sono stati analizzati anche con tecnica PIXE (vedi capitolo 3). In questo capitolo riportiamo solo l'analisi effettuata sui cristalli di Garfield, analoga analisi è in corso sugli altri cristalli sottoposti a questa tecnica.

2.2 Apparato sperimentale

L'acceleratore AN2000 dei Laboratori Nazionali di Legnaro dell'INFN è un Van Der Graaf da 2,5 MV utilizzato principalmente per studi interdisciplinari di scienza dei materiali, fisica dello stato solido, fisica ambientale e geofisica. Nell'ambito di queste attività si inserisce anche l'analisi con tecnica IBIL dei cristalli in questione. Sono disponibili fasci continui di ioni $^1H^+$ e $^4He^+$. Diverse misure sono state effettuate con entrambi i fasci ad energie di 2 MeV (prossime alle energie massime consentite dalla macchina acceleratrice) con correnti di $18 \div 30$ nA. Il fascio disponibile è di dimensioni 2×2 mm.

In figura 2.1 si può osservare uno schema dell'apparato sperimentale. Il campione

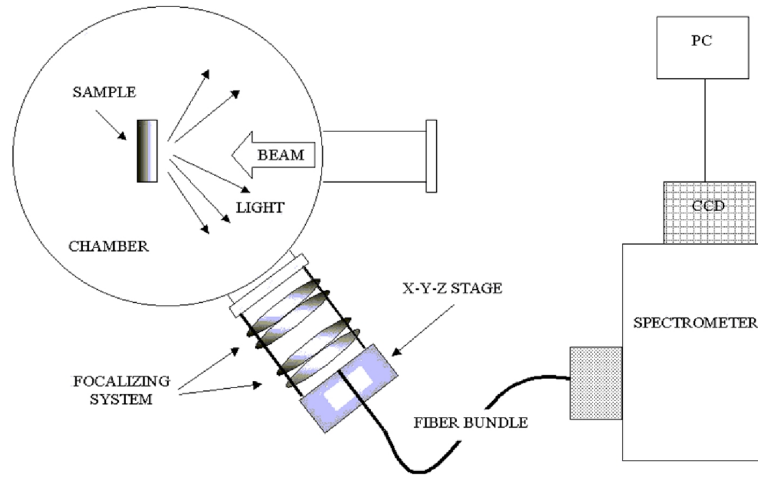


Figura 2.1: Schema dell'apparato di misura.

viene posto nella camera a vuoto di una delle cinque linee sperimentali dell'acceleratore, agganciato ad un supporto che ne permette l'allineamento verticale con il fascio. La camera è equipaggiata con un sistema ottico che focalizza la luce emessa per scintillazione in un punto esterno, in cui è posizionata la fibra ottica che convoglia le onde luminose nello spettrometro. A causa di questa interfaccia ottica: vuoto - esterno, per evitare di misurare spettri alterati da emissioni di luci diverse da quella emessa dal campione, è necessario che tutta la sala sperimentale sia buia. Per migliorare l'efficienza complessiva dello strumento, nelle misure future si prevede di utilizzare una fibra ottica da vuoto, che può essere posizionata direttamente all'interno della camera quasi a contatto con il campione.

Per rivelare lo spettro della luce emessa dal campione si usa uno spettrometro (*Acton SP300*) a reticolo che riesce a distinguere lunghezze d'onda nel visibile e nel vicino infrarosso ($\lambda \sim 200 \div 800 \text{ nm}$) con banda passante $\Delta\lambda = 15 \text{ nm}$. Questo strumento, schematizzato in figura 2.2, è equipaggiato con due tipi di sensori: un sensore CCD ed un "photon counter".

Il flusso luminoso entra nello spettrometro attraverso una fenditura che permette di regolarne l'intensità (più si allarga la fenditura, maggiore è il flusso di fotoni entrante); tramite un sistema di specchi il fascio luminoso viene poi deviato verso una torretta motorizzata che monta tre diversi reticoli di diffrazione. A seconda della precisione desiderata si seleziona uno dei tre reticoli, nella misura effettuata si è utilizzato quello da 150 griglie/mm . A questo punto la luce emessa dallo

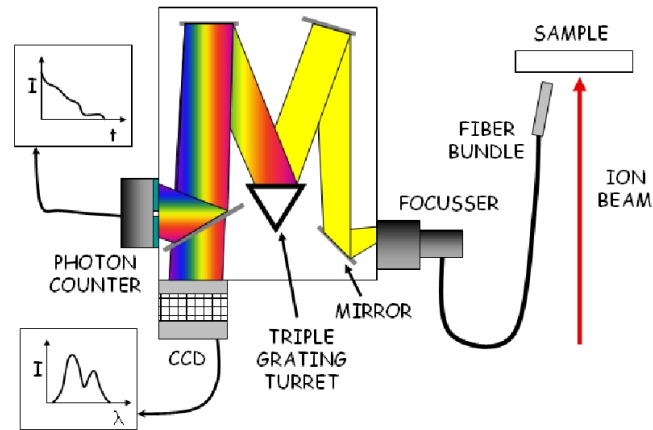


Figura 2.2: Schema dello spettrometro SP300.

scintillatore è separata nelle sue componenti cromatiche e può essere deviata, tramite uno specchio motorizzato, verso uno dei due sensori.

Il sensore CCD (Charge Coupled Device) consiste in un circuito integrato formato da una matrice di elementi semiconduttori (*photosites*) in grado di accumulare una carica elettrica proporzionale all'intensità della radiazione elettromagnetica che li colpisce. Questi elementi sono accoppiati in modo che ognuno di essi, sollecitato da un impulso elettrico, possa trasferire la propria carica ad un altro elemento adiacente. Inviando al dispositivo una sequenza temporizzata d'impulsi, si ottiene in uscita un segnale elettrico grazie al quale è possibile ricostruire la matrice dei pixel che compongono l'immagine proiettata sulla superficie del CCD stesso. Ai fini della misura viene utilizzato per fotografare lo spettro completo della radiazione nell'intervallo di lunghezze d'onda di interesse (visibile + infrarosso). Il sensore utilizzato è composto da una matrice di 1340×100 pixels, ognuno di $20 \times 20 \mu m$. Il sensore viene raffreddato con Azoto liquido. Tutti gli spettri sono stati acquisiti con tempi di esposizione di un secondo. I CCD sono anche impiegati come sensori delle telecamere e delle macchine fotografiche digitali, negli scanner e in tutte le applicazioni in cui si renda necessario rendere elettrico un segnale luminoso.

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 la variazione di efficienza di scintillazione del

materiale in esame in funzione del tempo di esposizione al fascio, quindi del degrado della struttura cristallina. Per questo tipo di misura si sono mantenuti tempi di esposizione di 5 minuti con $\Delta t = 2s$ ripetendo ogni osservazione per $\lambda = 450 \text{ nm}$ e $\lambda = 555 \text{ nm}$, lunghezze d'onda di particolare interesse per i cristalli CsI(Tl). In questa configurazione lo spettrometro viene anche detto *monocromatore*.

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.

L'ultima grandezza che si vuole misurare è la carica depositata dal fascio sul campione. Per fare questo è sufficiente conoscere la corrente del fascio durante l'esposizione ed il tempo di esposizione oppure, tramite un integratore di carica, si può effettuare la misura direttamente. Gli strumenti di controllo dell'acceleratore AN2000 consentono entrambe le possibilità.

2.3 I cristalli

La misura riguarda tre cristalli dalle caratteristiche leggermente differenti. Il primo, denominato **G**, è della stessa forma mostrata in figura 1.11, tipica dei cristalli dell'apparato GARFIELD e si presenta in buone condizioni di lucidatura. Il secondo è uguale, ma risulta molto rovinato sia sulle facce esterne che all'interno, per questo motivo verrà indicato come **D** (*Danneggiato*). L'ultimo, dalla forma diversa rispetto agli altri due, presenta sulla stessa faccia una zona perfettamente lucidata ed una più rovinata. A quest'ultimo si farà riferimento come **R** (poiché appartiene ad un apparato di rivelazione denominato "Ring Counter", utilizzato in accoppiamento con l'apparato GARFIELD).

Tutti i cristalli sono stati avvolti in un involucro di alluminio sul quale erano state precedentemente aperte delle piccole finestre.

2.4 Calibrazione dello spettrometro

Prima di ogni misura viene eseguito un test di calibrazione sulle lunghezze d'onda lette dallo strumento: analizzando lo spettro di una sorgente nota (lampada allo Xe) si imposta la scala dello strumento sul confronto tra i picchi osservati ed i valori dichiarati nei *datasheet* della sorgente luminosa. Siccome non è possibile ignorare il rumore elettronico dell'apparato, è necessario correggere ogni spettro sottraendogli uno spettro di fondo. Questo si ottiene semplicemente facendo una

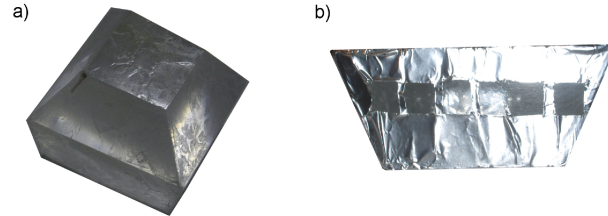


Figura 2.3: a) Cristallo **D**, si notano i segni di danneggiamento sulla superficie; b) Cristallo **R** avvolto nell'alluminio.

misura in assenza di radiazione incidente. Inoltre lo spettrometro è stato tarato con sorgenti luminose ad intensità nota allo scopo di calcolare la funzione di risposta del sistema di acquisizione in funzione della lunghezza d'onda. In questo modo si ottengono misure con una risoluzione in lunghezza d'onda di $10 \div 15$ nm.

2.5 La misura

La misura si è svolta in Ottobre 2006.

Sono stati analizzati i campioni G ed R esposti al fascio di ${}^4\text{He}^+$. Come già detto, ogni punto di interesse è stato esposto per 5' durante i quali si seguivano l'andamento dell'intensità luminosa ad una lunghezza d'onda stabilita e l'intensità della corrente del fascio. Inoltre sono stati acquisiti uno spettro completo precedente ed uno successivo a questo trattamento. In tabella 2.1 è esposto un riassunto dei dati acquisiti. Per misure ripetute nella stessa finestra a breve distanza di tempo si è spostato il campione di qualche millimetro in modo da allontanarsi dalla zona appena esposta al fascio.

Durante la misura, a causa di un problema tecnico, non è più stato possibile utilizzare il *Photon Counter* quindi, nella seconda parte, non sono stati più disponibili dati con $\Delta t = 2$ s sul degrado dei cristalli. L'unica alternativa possibile è stata quella di interrompere l'esposizione ogni 30 secondi ed acquisire uno spettro completo, dal quale estrarre successivamente i valori di intensità alle lunghezze d'onda scelte. All'acquisizione di ogni spettro è stata associata la misura della carica depositata dal fascio sul campione (μC). Con questo metodo sono stati analizzati: il cristallo D esposto ai fasci di ${}^4\text{He}^+$ e di protoni; i campioni G ed R esposti al fascio di protoni. Per testare il livello di igroscopicità del materiale è stata fatta una misura

inumidendo una faccia del cristallo già danneggiato (D). In tabella 2.2 è esposto un riassunto dei dati acquisiti in questa maniera.

Cristallo	Finestra	Δt	Tipo
G	Unica	1 s	Spettro prima
G	Unica	5'	$I(t); \lambda = 450nm$
G	Unica	1 s	Spettro dopo
G	Unica	1 s	Spettro prima
G	Unica	5'	$I(t); \lambda = 555nm$
G	Unica	1 s	dopo
R	Liscia	1 s	Spettro prima
R	Liscia	5'	$I(t); \lambda = 450nm$
R	Liscia	1 s	Spettro dopo
R	Liscia	1 s	Spettro prima
R	Liscia	5'	$I(t); \lambda = 555nm$
R	Liscia	1 s	Spettro dopo
R	Ruvida	1 s	Spettro prima
R	Ruvida	5'	$I(t); \lambda = 450nm$
R	Ruvida	1 s	Spettro dopo
R	Ruvida	1 s	Spettro prima
R	Ruvida	5'	$I(t); \lambda = 555nm$
R	Ruvida	1 s	Spettro dopo

Tabella 2.1: Riepilogo misure (I parte).

Cristallo	Zona	Fascio
D	Faccia buona	${}^4He^+$ 2,0 MeV
D	Faccia rovinata (retro)	${}^4He^+$ 2,0 MeV
D	Faccia rovinata bagnata	${}^4He^+$ 2,0 MeV
D	Faccia buona	protoni 2,0 MeV
D	Faccia rovinata (retro)	protoni 2,0 MeV
G	Unica	protoni 2,0 MeV
R	Rovinata	protoni 2,0 MeV
R	Liscia	protoni 2,0 MeV

Tabella 2.2: Riepilogo misure (II parte).

Alcune immagini dell'apparato:

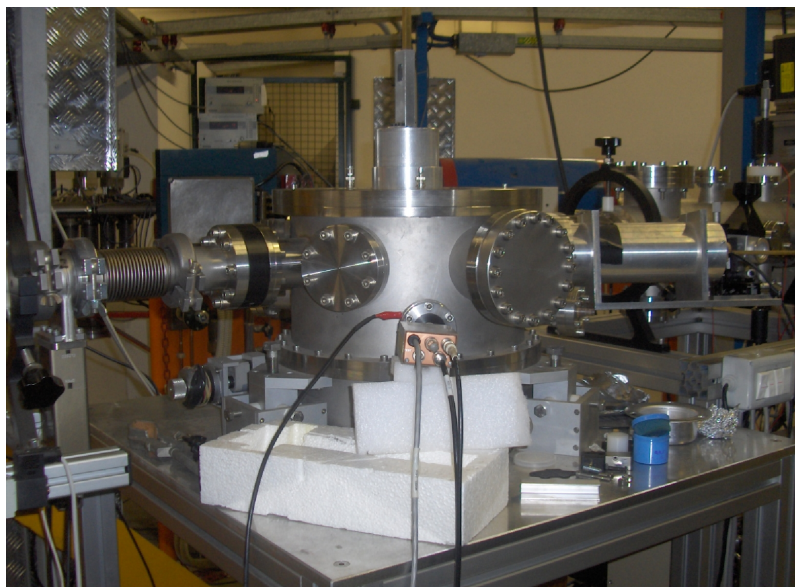


Figura 2.4: La camera a vuoto utilizzata per la misura.

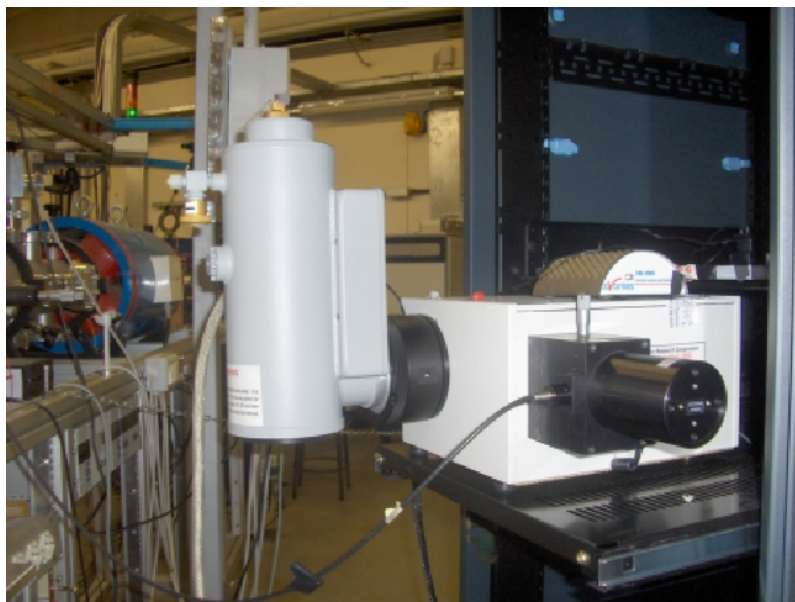


Figura 2.5: Lo spettrometro SP300. Al centro si vede il criostato del sensore CCD.

2.6 Analisi dati

È necessario sottrarre ad ogni spettro il fondo misurato e, successivamente, eseguire la correzione per la taratura dello strumento come accennato nel paragrafo 2.4. Per fare questo si sono utilizzati appositi programmi che vengono illustrati in Appendice A. I dati così corretti sono stati successivamente analizzati con un programma di calcolo [10] con il quale sono state realizzate tutte le figure mostrate in seguito. Per motivi di carattere pratico, legati alla struttura del porta-campione utilizzato nella misura, non è stato possibile focalizzare il fascio allo stesso modo per tutti i tre cristalli: questo rende impossibile il confronto assoluto dei valori di intensità tra i vari campioni.

2.6.1 Confronto in forma degli spettri

Un primo risultato interessante riguarda il confronto tra le forme degli spettri. Come spiegato in precedenza lo spettro di emissione è dato dalla sovrapposizione di più emissioni legate ai centri di eccitazione. Le diverse tipologie di radiazione e le diverse strutture del campione possono esaltare zone di risposta differenti. Tale effetto è maggiormente evidenziato negli spettri misurati dopo l'esposizione a radiazione, dove il danneggiamento per radiazione va ad aumentare il numero dei difetti del cristallo (diminuzione nella emissione luminosa a piccole lunghezze d'onda).

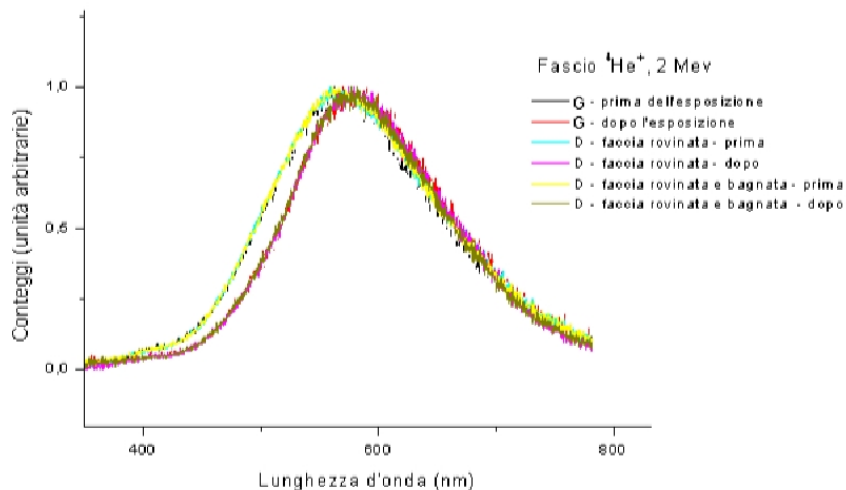


Figura 2.6: Cristalli G e D in varie posizioni, prima e dopo l'esposizione al fascio di ${}^4\text{He}^+$.

La figura 2.6 mostra gli spettri ottenuti per il campione G (quello con con la faccia ben lucidata) e per le zone più rovinate del campione D (in uno dei due casi la faccia è anche stata bagnata), notiamo che la forma dello spettro non varia sensibilmente tra una faccia e l'altra, mentre c'è un'evidente alterazione in seguito all'esposizione prolungata al fascio. In questo caso osserviamo un leggero spostamento del picco più alto verso lunghezze d'onda maggiori e, soprattutto, il degrado della parte più bassa dello spettro. Questa alterazione viene solitamente associata all'aumento dei difetti reticolari nel cristallo, conseguenza dell'esposizione. Lo stesso effetto si osserva nel cristallo R (fig. 2.7) sia col fascio di ${}^4\text{He}^+$ che per i protoni.

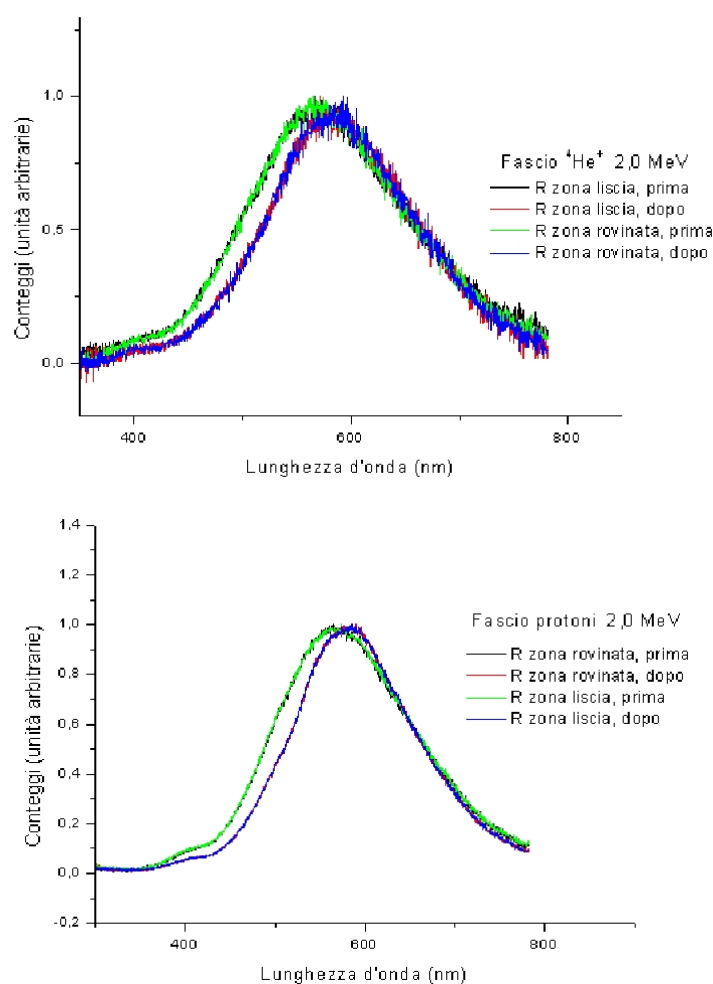


Figura 2.7: Cristallo R, varie zone; fascio di ${}^4\text{He}^+$ (sopra) e di protoni (sotto).

Aumentando lo Z della particella incidente l'intensità della luce emessa dimi-

nuisce, di conseguenza peggiora il rapporto segnale-rumore della misura, per questo motivo il fondo degli spettri relativi al fascio di particelle alfa risulta maggiore di quello con protoni. Questo effetto si osserva per tutti i cristalli (figg. 2.7, 2.8 e 2.9). Gli spettri 2.8 e 2.9 mostrano i risultati ottenuti sia per protoni che per ${}^4\text{He}^+$ nei campioni D e G: in tutti è evidente la differenza nella forma degli spettri sia relativa ai differenti centri di eccitazione interessati con fascio di protoni o di ${}^4\text{He}^+$, sia gli effetti dovuti al danneggiamento per radiazione (più evidenti a piccole lunghezze d'onda).

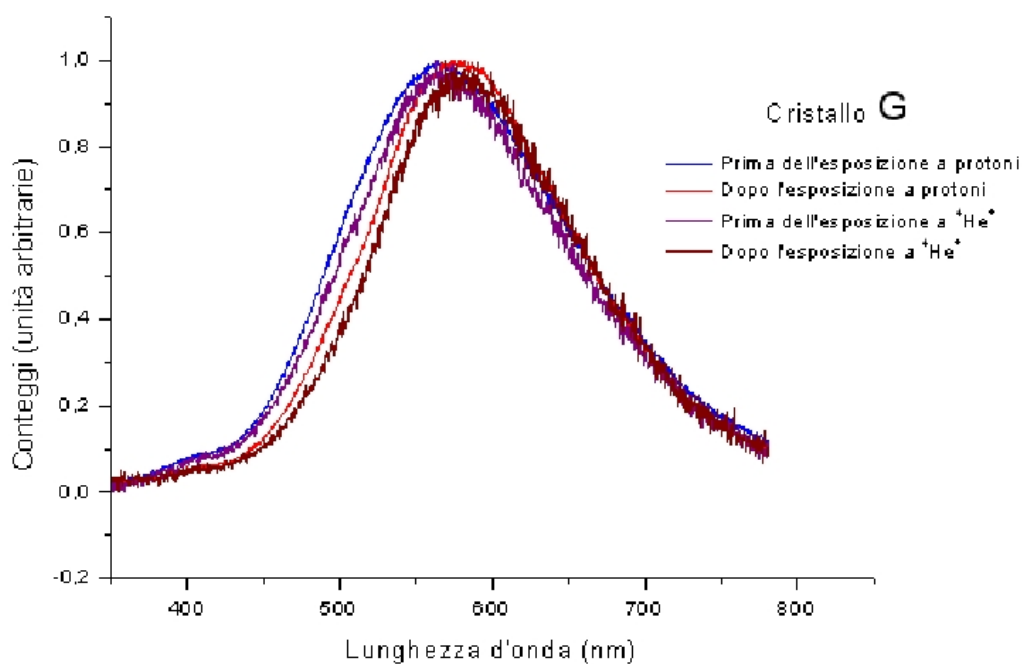


Figura 2.8: Campione G prima e dopo l'esposizione a protoni e ${}^4\text{He}^+$.

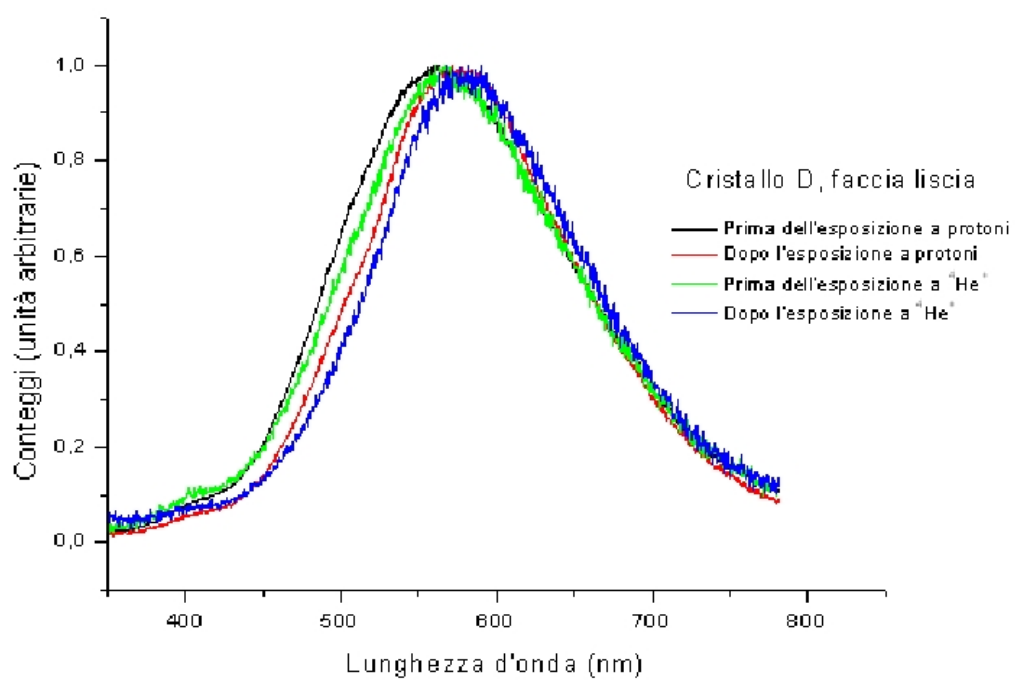


Figura 2.9: Campione D prima e dopo l'esposizione a protoni e ${}^4\text{He}^+$.

2.6.2 Studio delle differenze di forma

Per cercare di quantificare l'effettiva differenza tra gli spettri prima e dopo l'esposizione al fascio è stata calcolata la loro differenza puntuale. Le figure 2.10 e 2.11 mostrano i risultati per il cristallo R (zona liscia) e per D (zona rovinata). È molto importante notare che queste differenze presentano un massimo tra i 510 e i 520 nm, lunghezze d'onda che variano leggermente a seconda del campione. Questo effetto potrebbe essere uno dei fattori discriminanti nella ricerca di quelle caratteristiche peculiari che permettano di identificare una sorta di "impronta digitale" di ogni cristallo.

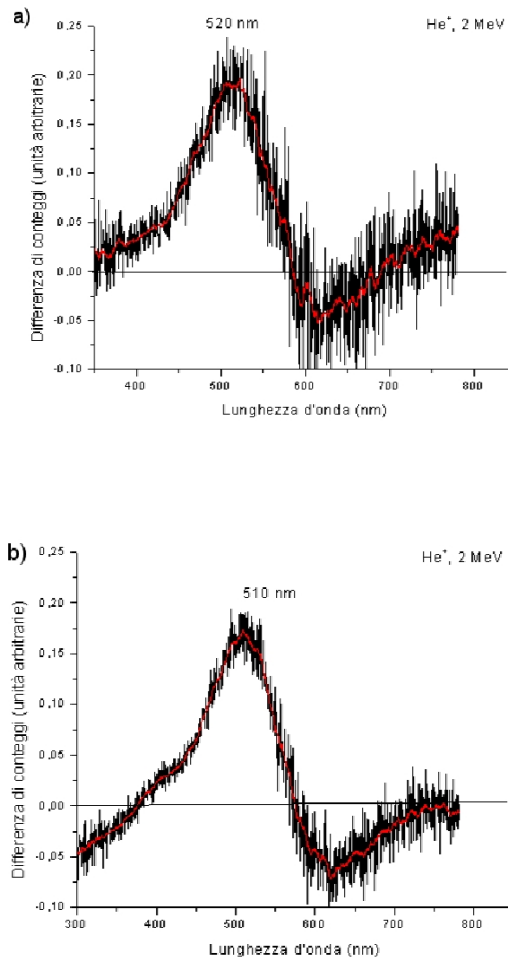


Figura 2.10: Differenze tra spettri prima e dopo l'esposizione ad ${}^4\text{He}^+$: (a) Campione R; (b) Campione D.

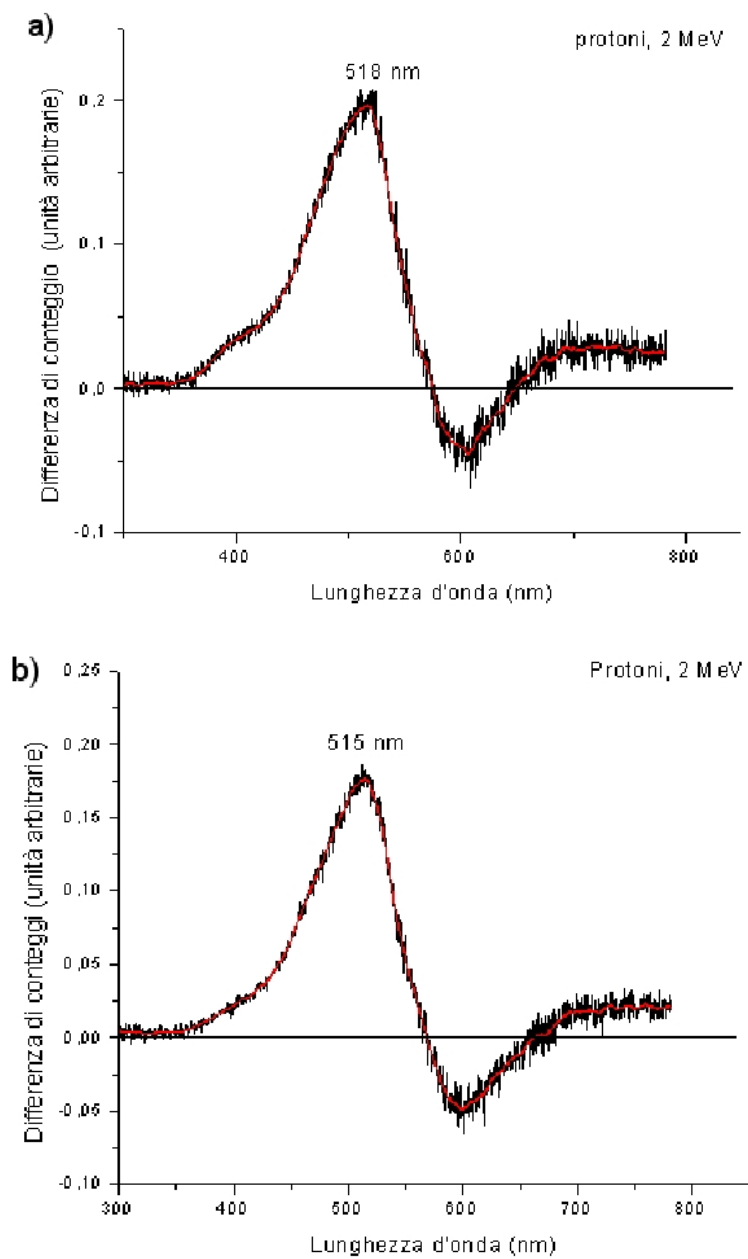


Figura 2.11: Differenze tra spettri prima e dopo l'esposizione a protoni: (a) Campione R; (b) Campione D.

L'interpretazione di questi dati è tutt'ora in fase di analisi.

2.6.3 Analisi del degrado esponenziale

L'effetto del danneggiamento risulta evidente seguendo l'intensità della luce emessa (normalizzata alla carica depositata) ad una certa lunghezza d'onda in funzione del tempo; entrambe le misure eseguite ($\lambda = 450 \text{ nm}$ e $\lambda = 555 \text{ nm}$) confermano il processo di degrado già osservato nei paragrafi precedenti. La figura 2.12 mostra l'evoluzione alle due lunghezze d'onda nelle due zone (rovinata e lucida) del cristallo R. Si nota che il decadimento è simile, al variare della superficie, alla stessa lunghezza d'onda. In futuro, potrebbe essere interessante seguire l'evoluzione alla lunghezza d'onda corrispondente al valore massimo di differenza identificato in 2.6.2.

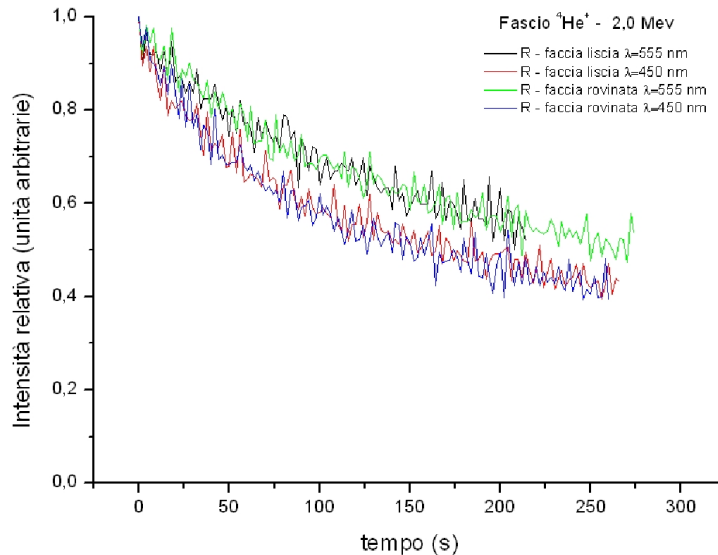


Figura 2.12: Degrado per il cristallo R esposto ad ${}^4\text{He}^+$

Eseguendo un "fit" esponenziale, si osserva che i dati si adattano bene ad una curva del tipo $y = y_0 + y_1 e^{-t/\tau}$. L'identificazione del parametro τ permette di rendere quantitativa l'analisi sul degrado degli spettri alle varie lunghezze d'onda. Anche questo fattore potrebbe contribuire all'insieme di elementi caratterizzanti la struttura di un singolo cristallo. In figura 2.13 è mostrato il risultato del fit esponenziale per una delle serie di dati analizzate.

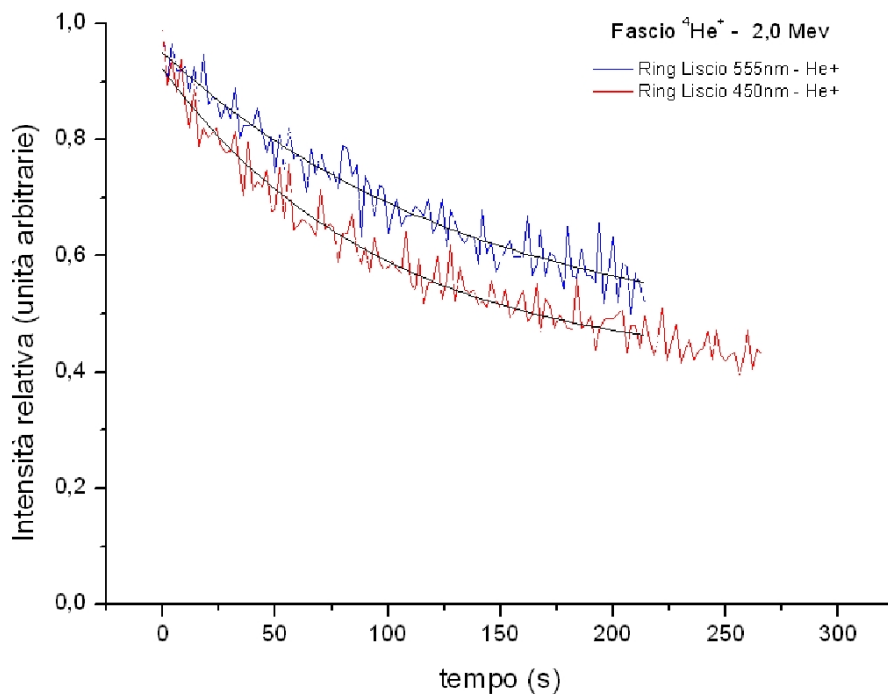


Figura 2.13: Fit esponenziale per le serie di dati mostrate in 2.12

Nel caso del campione R, finestra lucida, con fascio di ${}^4\text{He}^+$ (fig. 2.13) i risultati del fit sono:

$$y = y_0 + y_1 e^{-t/\tau} \quad (2.1)$$

	$\lambda = 450 \text{ nm}$	$\lambda = 555 \text{ nm}$
y_0	0.41 ± 0.01	0.44 ± 0.04
y_1	0.52 ± 0.01	0.50 ± 0.03
τ	$97 \pm 6 \text{ s}$	$138 \pm 20 \text{ s}$

Capitolo 3

Analisi PIXE di Cristalli CsI(Tl)

3.1 La tecnica PIXE (*Particle Induced X-ray Emission*)

Come tutte le tecniche IBA, anche la PIXE utilizza fasci di particelle ionizzanti per studiare la struttura dei materiali. Mentre nella IBIL si osservano le transizioni elettroniche che danno luogo ad emissioni nel visibile, la tecnica PIXE utilizza l'emissione nello spettro X.

E' importante sottolineare che, nonostante per la PIXE si utilizzino quasi soltanto fasci di protoni, le energie del fascio incidente necessarie a produrre luminescenza ed emissione X sono le stesse. Sia la fotoluminescenza che la fluorescenza X si manifestano quindi sia in misure PIXE che IBIL: la differenza consiste principalmente nelle caratteristiche degli strumenti di rivelazione (spettrometri a reticolo per la luce e rivelatori a semiconduttori per raggi X).

Già a partire dalla metà degli anni Settanta ci si è resi conto che bombardando un campione con un fascio di protoni di qualche MeV, la fluorescenza X indotta è di notevole intensità e lo spettro presenta un fondo continuo molto basso. Analizzando perciò con un rivelatore ad alta risoluzione in energia (ad esempio un Si(Li)) i raggi X prodotti è possibile non solo identificare con un'unica misura un elevato numero di elementi presenti nel bersaglio, ma anche quantificarne con buona precisione la concentrazione. Laddove sia possibile mantenere correnti di fascio di qualche nA senza danneggiare il campione, con la PIXE è possibile evidenziare la presenza di elementi anche a bassissima concentrazione (qualche parte per milione, *ppm*).

L'energia della radiazione che si vuole misurare permette di effettuare misure in aria senza subire forti assorbimenti, questo consente di analizzare campioni di varia forma e natura senza il vincolo della camera a vuoto e rende possibile installare gli oggetti su supporti motorizzati, permettendo scansioni nel piano perpendicolare al

facio durante l'esposizione e quindi la mappatura di intere superfici. Tutte queste caratteristiche, insieme alla possibilità di utilizzare fasci di dimensioni minori di 1 μm (microPIXE), rendono la Pixe uno strumento molto versatile e, come si mostrerà in seguito, anche molto preciso.

Normalmente vengono utilizzati fasci di protoni di 2 - 6 MeV di energia: quando il bersaglio viene colpito, gli atomi del materiale in esame vengono ionizzati per interazione coulombiana tra i proiettili e gli elettroni atomici del campione. Queste energie non sono sufficienti per osservare transizioni nucleari, ma è possibile eccitare i livelli energetici elettronici più bassi (fino ad $n=1$: *shell* 1s) estraendo un elettrone. (Si tenga presente che reazioni nucleati hanno sezioni d'urto fino a sei ordini di grandezza più piccole di quelle elettroniche). La lacuna che si crea viene colmata in tempi caratteristici di 10^{-15}s da un elettrone delle shell più esterne, causando emissione di energia pari a $\Delta E = E_0 - E_1$, dove i pedici si riferiscono ai livelli energetici iniziale e finale. Processi tipici sono l'emissione di radiazione X (PIXE) o di elettroni Auger.

L'energia del fotone X emesso (o dell'elettrone Auger), essendo la differenza tra energie di legame elettroniche, è caratteristica della specie atomica. L'esame spettroscopico della radiazione consente quindi l'analisi delle componenti atomiche del campione, analisi che risulta *multielementale* in quanto tutte le specie atomiche presenti interagiscono con il fascio incidente ed emettono raggi X caratteristici. Inoltre la PIXE può essere quantitativa perché, durante l'esposizione, il numero di interazioni delle particelle del fascio con gli atomi di una determinata specie è proporzionale all'abbondanza degli atomi della specie stessa presenti nel campione. Nel caso specifico dei Cristalli oggetto di questo lavoro, si è voluto verificare la concentrazione dell'elemento drogante (Tallio). Nella maggior parte dei casi l'analisi risulta non distruttiva perché le dimensioni del fascio e i tempi di esposizione (in questo caso 5 - 20 minuti) non sono tali da alterare la composizione elementale del materiale.

E' importante sottolineare la sostanziale differenza tra una misura di questo tipo e l'analisi IBIL già descritta nel capitolo precedente: si è appena visto che l'emissione X è caratteristica delle specie atomiche perché coinvolge la parte più interna della configurazione elettronica di ogni singolo elemento. Il risultato è una misura delle concentrazioni dei singoli elementi nel campione. L'analisi IBIL, occupandosi di transizioni meno energetiche, osserva invece la struttura molecolare del campione: le transizioni ottiche interessano gradi di libertà vibrazionali della struttura cristallina, gli elettroni della banda di valenza ed i legami chimici. Si ricordi che la maggior parte delle transizioni osservate in materiali organici coinvolgono gli elettroni dei legami π .

3.1.1 Emissione di raggi X da "Shell atomiche"

Illustriamo brevemente la nomenclatura spettroscopica per le *shell* atomiche e per i raggi X corrispondenti.

L'energia potenziale è tipicamente posta uguale a zero per l'elettrone libero, di conseguenza gli elettroni legati hanno energia tanto più negativa quanto più si muovono in prossimità del nucleo. La shell più interna (numero quantico principale $n=1$) viene detta K e corrisponde agli elettroni più legati in assoluto, questi hanno quindi il minimo valore di energia potenziale. Per $n=2$ si ha la shell L la cui struttura fine è composta da tre sottolivelli L_1, L_2, L_3 , che corrispondono rispettivamente ad $l=0, j=1/2$; $l=1, j=1/2$; $l=1, j=3/2$. Le successive shell vengono denotate con M, N, O... hanno numero quantico principale $n=3,4,5...$ e contengono elettroni via via meno legati.

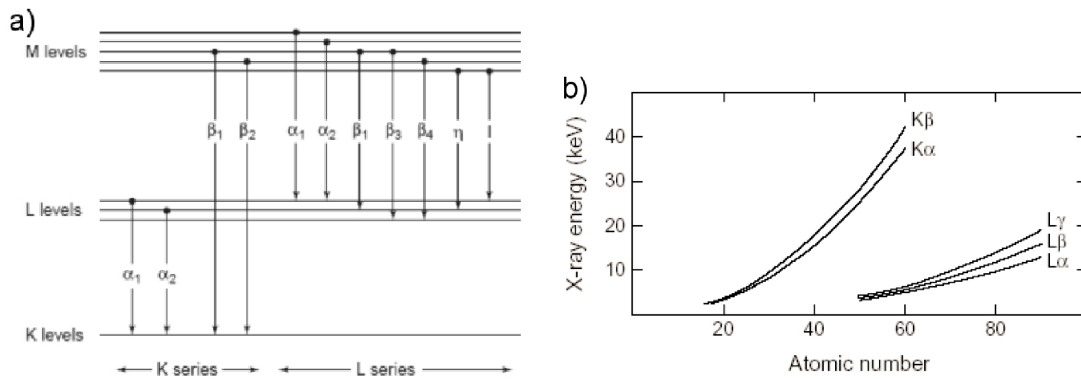


Figura 3.1: a) Transizioni atomiche, serie K ed L; b) Energia dei raggi X emessi in unzione del numero atomico.

Quando un agente ionizzante interagisce estraendo un elettrone di una shell interna, la lacuna che si crea viene colmata da uno degli elettroni dei livelli energetici superiori. Tuttavia non tutte le transizioni sono possibili, esistono precise regole della meccanica quantistica, regole di selezione, che associano una certa probabilità ad ogni possibile transizione ed in particolare ne vietano alcune. Le transizioni possibili prendono il nome della "shell" in cui si è formata la lacuna primaria: parleremo di righe K, L, M come si parla delle "shell" corrispondenti ($n=1, 2, 3$). In figura 3.1b sono riportate le energie delle transizioni K ed L in funzione del numero atomico dell'elemento emettitore. I pedici indicano da quale shell proviene l'elettrone. In figura 3.1a sono invece indicate tutte le possibili transizioni permesse dalle regole di

selezione per le serie K ed L. I pedici numerati si riferiscono alla struttura fine di ogni livello energetico.

In tabella 3.1, vengono mostrate le principali transizioni degli elementi Cs, I, Tl, che saranno di interesse per la misura. I valori di intensità sono normalizzati alla prima transizione K.

Elemento: Tallio Numero atomico: 81 Massa atomica (uma): 204.37			
Righe K		Righe L	
Energia (eV)	Intensità	Energia (eV)	Intensità
72872.9	100.0	10268.2	100.0
70832.5	59.2	12235.9	53.6
82114.7	11.5	8953.4	5.8
82573.8	22.1	10993.8	0.9
83045.3	0.7	11812.0	1.4
		11931.0	1.8
		10172.4	11.4
		12390.1	2.0
		13852.4	0.2
		14291.3	6.5
		14685.1	1.8
		15247.1	0.2

Elemento: Cesio Numero atomico: 55 Massa atomica (uma): 132.905			
Righe K		Righe L	
Energia (eV)	Intensità	Energia (eV)	Intensità
30972.7	100.0	4285.0	111.3
30625.2	54.2	4643.9	69.4
34964.1	27.8	4142.3	1.3
35245.1	0.2	3794.8	4.3
35823.0	5.7	4935.4	16.9
		5128.6	0.3
		5280.6	7.3
		5548.6	4.8
		5701.2	0.6

Tabella 3.1: Transizioni X per Cs, I, Tl. (continua)

Elemento: Iodio Numero atomico: 53 Massa atomica (uma): 126.904			
Righe K		Righe L	
Energia (eV)	Intensità	Energia (eV)	Intensità
28612.3	100.0	3936.5	111.3
28317.3	53.9	4245.9	71.8
32275.8	27.3	3780.0	1.3
32538.1	0.2	3485.0	4.2
33050.4	5.3	4508.2	15.6
		4665.7	0.3
		4801.4	6.8
		5064.9	5.0
		5184.3	0.4

La probabilità che avvenga una di queste transizioni dipende dalla sezione d'urto di ionizzazione σ_{ion} e dalla resa di fluorescenza ω . La prima rappresenta la probabilità di produzione di una lacuna, la seconda è la probabilità di emissione di elettroni Auger (che la PIXE non vede) piuttosto che di raggi X. [11]

$$\sigma_x = \sigma_{ion} \cdot \omega \quad (3.1)$$

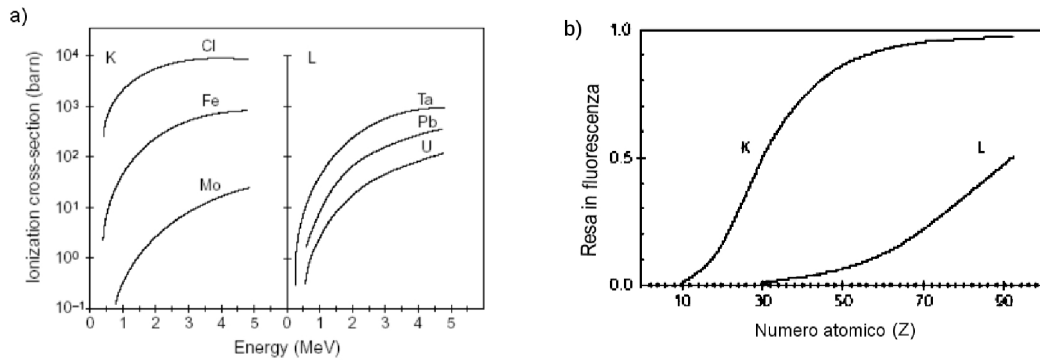


Figura 3.2: a) Sezione d'urto di ionizzazione in funzione dell'energia del fascio incidente; b) Resa in fluorescenza in funzione del numero atomico.

Come si può osservare in figura 3.2b la resa di fluorescenza ha un andamento crescente con il numero atomico Z dell'elemento, mentre la sezione d'urto di ionizzazione raggiunge un massimo quando la velocità della particella incidente uguaglia quella di Bohr dell'elettrone nella sua orbita. Si osserva (fig. 3.2a) che la sezione d'urto di ionizzazione, a parità di energia incidente, diminuisce all'aumentare del numero atomico del bersaglio. Questo effetto viene in parte compensato dall'aumento

della resa di fluorescenza, il risultato netto è mostrato in figura 3.3: la sezione d'urto di produzione X diminuisce al crescere di Z ; per energie di fascio di circa 3 MeV si passa da oltre i 1000 barn per le righe K di elementi leggeri fino a valori inferiori all'unità per elementi pesanti.

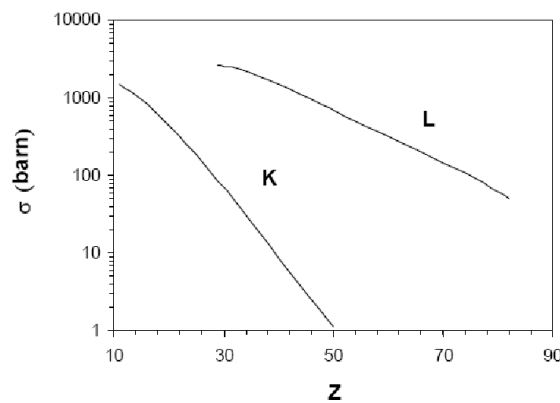


Figura 3.3: Sezione d'urto totale di produzione di raggi X in funzione del numero atomico (Z).

Si potrebbe ora pensare che la rivelazione di elementi pesanti sia molto più difficile rispetto agli elementi leggeri: questo è vero soltanto in prima approssimazione. Per prima cosa negli elementi medio-pesanti si possono osservare anche le righe L (la cui sezione d'urto si mantiene comunque elevata); inoltre sulla sensibilità di rivelazione influisce in maniera rilevante la presenza di un fondo continuo molto più basso nelle regioni in cui si osservano le righe K degli elementi pesanti.

E' da notare che i valori delle sezioni d'urto considerate sono ordini di grandezza più elevate delle tipiche sezioni d'urto per reazioni nucleari: si parla di 1 - 1000 barn a confronto con millibarn o sue frazioni. Un'analisi PIXE qualitativa consente quindi, dato lo spettro di emissione X di un determinato materiale, di conoscere con precisione di quali elementi è composto. Come esempio in figura 3.4 è mostrato il confronto tra gli spettri di due cristalli nominalmente identici. Gli elementi presenti dovrebbero essere Cs, I e Tl. Nel secondo si nota immediatamente la presenza di una componente non attesa: si tratta di tracce di Bromo ($K_{\alpha} = 11,908 \text{ KeV}$).

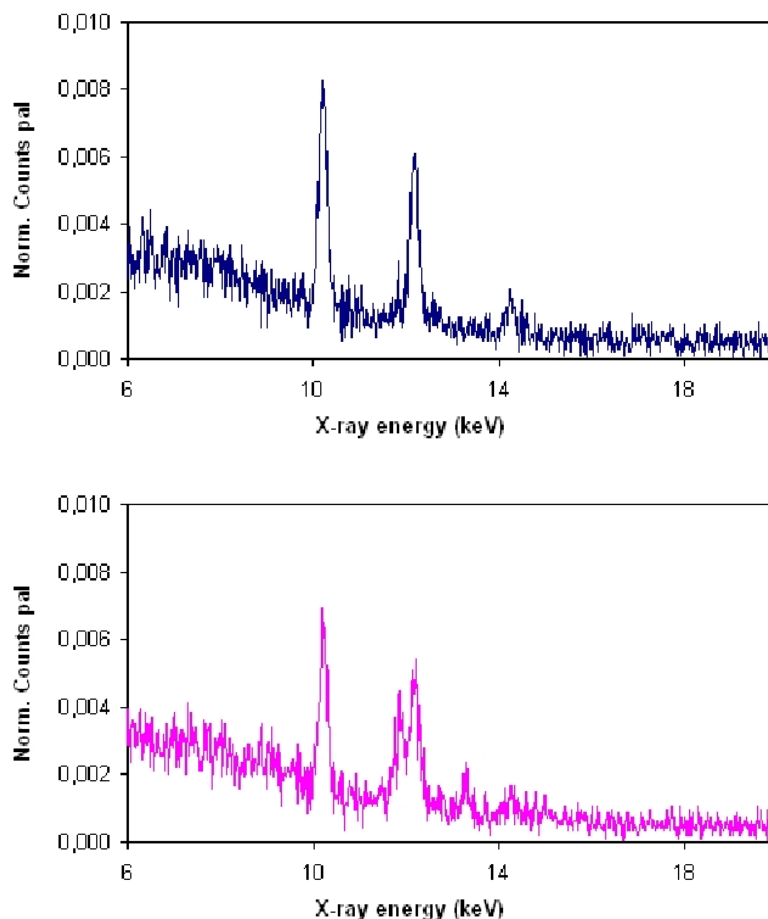


Figura 3.4: Confronto tra spettri con e senza tracce di Bromo.

3.1.2 Analisi PIXE quantitativa

Per ottenere una misura PIXE quantitativa è necessario tenere presente tutti i possibili effetti di attenuazione della radiazione incidente e di assorbimento dei raggi X rivelati. Un assorbimento può causare l'attenuazione dell'intensità della radiazione. Questi effetti determinano il limite inferiore di energia rilevabile, che costituisce il limite principale della PIXE: elementi le cui transizioni caratteristiche siano ad energie inferiori di una certa soglia non possono essere identificati. A seconda della geometria e delle proprietà dell'apparato sperimentale il limite varia tra $Z=11$ e 17 .

Il fattore predominante per determinare l'entità dell'assorbimento è sicuramente

il tipo di bersaglio. Si distinguono bersagli sottili o spessi a seconda dell'importanza che vengono ad assumere i cosiddetti effetti di matrice, cioè la perdita di energia che le particelle del fascio subiscono penetrando nel campione e l'autoassorbimento dei raggi X prodotti al suo interno. Quando tali effetti sono trascurabili il bersaglio può dirsi sottile e la resa dei raggi X per l'elemento Z è data da:

$$N_{X_j}(Z) = \sigma_{X_j}(Z, E_0) \cdot N_z \cdot t \cdot N_p = \sigma_{X_j}(Z, E_0) \cdot \frac{N_{Av} \cdot \rho_z}{A} \cdot t \cdot \frac{Q}{e} \quad (3.2)$$

con:

- $\sigma_{X_j}(Z, E_0)$ sezione d'urto di produzione X per la serie j (j=K,L,M...) dell'elemento Z all'energia del fascio E_0 ;
- N_Z numero di atomi della specie Z per unità di volume t spessore del campione;
- N_p numero di particelle del fascio che hanno attraversato il campione;
- ρ_Z densità di massa nel campione dell'elemento di numero atomico Z e massa atomica A;
- $\frac{Q}{e}$ numero di particelle incidenti.

Poiché l'emissione di raggi X ha una distribuzione isotropa, tenendo conto della frazione di angolo solido sottesa dal rivelatore ($\frac{\Omega}{4\pi}$) e della sua efficienza $\varepsilon_{det}(Z)$ (incluso il contributo degli assorbimenti t_Z da parte di eventuali filtri appositamente interposti tra bersaglio e rivelatore: $\varepsilon_{det}(Z) = \varepsilon_Z^i \cdot t_Z$, con ε_Z^i efficienza intrinseca funzione dell'energia del raggio X e dunque del numero atomico dell'elemento emettitore), i raggi X effettivamente rivelati saranno:

$$\begin{aligned} Y_{0X_j}(Z) &= \left(\frac{\Omega}{4\pi}\right) \cdot \varepsilon_{det}(Z) \cdot N_{X_j} = \\ &= \left(\frac{\Omega}{4\pi}\right) \cdot \left(\frac{Q}{e}\right) \cdot \varepsilon_{det}(Z) \cdot \sigma_{X_j}(Z, E_0) \cdot \frac{N_{Av} \cdot \rho_Z}{A} \cdot t = \eta \cdot Q \cdot \rho_Z \cdot t \end{aligned} \quad (3.3)$$

con

$$\eta = \eta(Z) = \left(\frac{\Omega}{4\pi}\right) \cdot \varepsilon_{det}(Z) \cdot \sigma_{X_j}(Z, E_0) \cdot \frac{N_{Av}}{A \cdot e} \quad (3.4)$$

η viene anche detto fattore di efficienza.

Poiché siamo interessati a bersagli che non possono essere considerati sottili sia per le loro dimensioni che per la loro capacità di assorbimento specifica, è necessario integrare la 3.3 portandosi nella condizione di bersaglio spesso:

$$Y_{X_j}(Z) = \left(\frac{\Omega}{4\pi}\right) \cdot \varepsilon_{det} \cdot \frac{N_{Av}}{A} \cdot \frac{Q}{e} \cdot \rho_Z \cdot \int_0^T \sigma_{X_j}(Z, E_p(x)) \cdot e^{-\frac{\mu \cdot x}{\cos \theta}} dx = \quad (3.5)$$

$$= \left(\frac{\Omega}{4\pi}\right) \cdot \varepsilon_{det} \cdot \frac{N_{Av}}{A} \cdot \frac{Q}{e} \cdot \frac{\rho_Z}{\rho} \cdot \int_{E_0 - \Delta E}^{E_0} \sigma_{X_j}(Z, E_p(x)) \cdot e^{-\frac{\mu \cdot \int_{E_0}^{E_p} \frac{d\varepsilon}{\rho \cdot S(\varepsilon)}}{\cos \theta}} \frac{dE_p}{S(E_p)}$$

dove:

- $S = \frac{dE_p}{\rho \cdot dx}$ è il potere frenante in massa (*stopping power*) funzione della composizione del materiale;
- ΔE è la perdita di energia complessiva del fascio nello spessore finito T;
- θ è l'angolo compreso tra la direzione dell'asse del rivelatore e quella di incidenza del fascio (vedi figura 3.5).

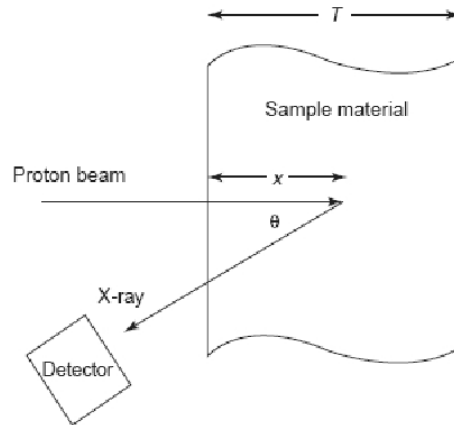


Figura 3.5: rappresentazione schematica dell'analisi di bersaglio spesso

Il termine esponenziale tiene conto dell'autoassorbimento degli X prodotti ad una profondità x mediante il coefficiente di attenuazione $\mu = \mu(E_x, Z_{medio})$, che è funzione della composizione della matrice e dell'energia della radiazione X. Come si vede, la resa in X di un dato elemento Z è proporzionale al rapporto $\frac{\rho_Z}{\rho}$, che

rappresenta la concentrazione relativa del dato elemento. Quindi, misurando il numero Y_{X_j} di raggi X che hanno colpito il rivelatore, il numero di protoni incidenti Q/e e conoscendo gli altri parametri, si può risalire alla concentrazione del singolo elemento nel materiale. Nel caso in cui la matrice in esame non sia nota a priori, è necessario ricorrere a procedimenti iterativi che ricostruiscano per approssimazioni successive il valore incognito.

In ogni caso occorre sottolineare il fatto che l'analisi quantitativa è possibile con risultati univoci soltanto se il campione è omogeneo in profondità, in modo tale che le grandezze dipendenti dalla composizione della matrice, cioè i coefficienti di attenuazione ed il potere frenante, non cambino man mano che le particelle penetrano sotto la superficie del campione. Per avere un'idea di cosa si possa intendere per bersaglio spesso, ovvero di profondità maggiore del range delle particelle incidenti, si tenga presente che protoni da 3 MeV in un campione di Z medio vengono completamente assorbiti in 30-40 μm , mentre per energie di 1 MeV questo spessore scende a 5-10 μm .

3.2 La misura

La misura che verrà descritta è stata svolta in Ottobre 2006 nel laboratorio LABEC (LABoratorio di tecniche nucleari per i BEni Culturali) dell'Istituto Nazionale di Fisica Nucleare, presso il Polo Scientifico di Sesto Fiorentino. Questo laboratorio è attrezzato con un acceleratore *Tandetron* da 3 MV utilizzato principalmente per misure di spettrometria di massa AMS (Accelerator Mass Spectrometry) e di IBA. In particolare si è utilizzata la linea di fascio su cui è installata la strumentazione necessaria per misure PIXE in aria. Questa apparecchiatura è solitamente utilizzata per analisi di opere d'arte, ma si adatta molto bene alle esigenze di misura di cristalli CsI.

3.2.1 Il sistema di accelerazione

L'acceleratore, prodotto dalla *High Voltage Engineering Europe*, è stato installato al LABEC nel corso del 2003.

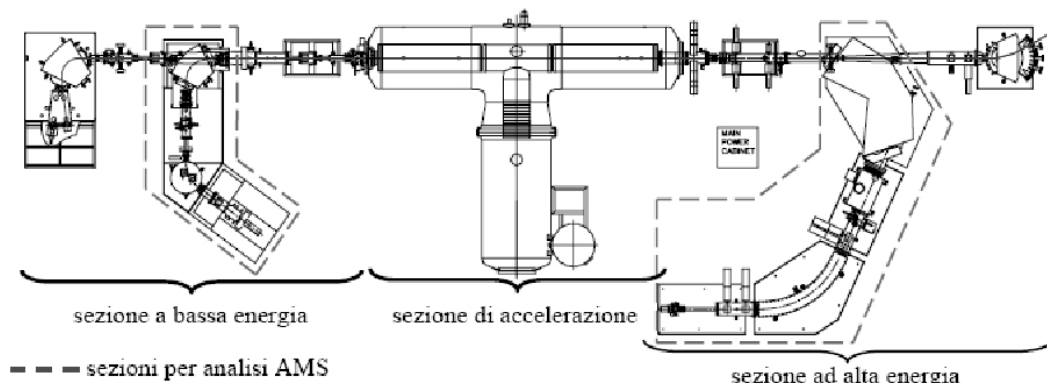


Figura 3.6: Schema generale dell'acceleratore. L'ultimo elemento sulla destra è il magnete che seleziona la linea sperimentale verso cui si indirizza il fascio. La linea tratteggiata evidenzia lo spettrometro utilizzato per misure AMS

La peculiarità di un acceleratore tandem come questo è di sfruttare due volte la stessa differenza di potenziale: gli ioni negativi (con stato di carica -1) che escono dalla sorgente, subiscono una prima accelerazione per l'attrazione del terminale ad alta tensione che si trova ad un elevato potenziale positivo. Mentre transitano in prossimità del terminale, gli ioni interagiscono con le molecole di un gas (Ar), che viene fatto circolare continuamente a pressione molto bassa nel canale. Questa

interazione porta alla perdita di elettroni da parte degli ioni accelerati (fase di *stripping*) che diventano perciò positivi e subiscono quindi una seconda accelerazione per repulsione da parte del terminale verso l'estremità a massa del secondo tubo (vedi figura 3.7). Si ottengono, così, fasci di ioni con energia pari a $V(q + 1)$ eV, dove V è la tensione del terminale in Volt e q lo stato di carica delle particelle del fascio nella seconda fase di accelerazione (in unità di e). In questa misura si sono utilizzati fasci di protoni ($q = +1$), si ottiene così un'energia in uscita doppia di quella che si avrebbe con un acceleratore a singolo stadio.

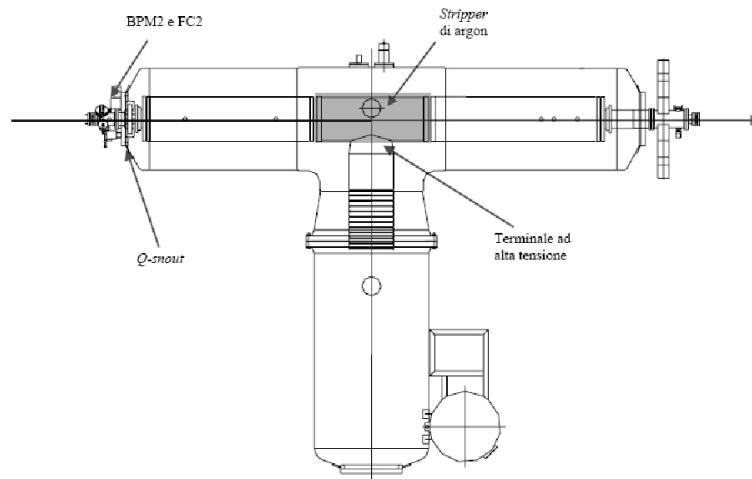


Figura 3.7: Particolare dell'acceleratore: al centro si nota il terminale ad alta tensione in cui avviene il processo di *stripping*

Il sistema è dotato di tre sorgenti indipendenti di ioni una delle quali viene usata per AMS e le altre due per IBA. Da qui gli ioni negativi vengono estratti mantenendo la sorgente ad un potenziale fortemente negativo ed incanalati verso l'acceleratore. Il fascio viene focalizzato tramite lenti elettrostatiche e analizzato in energia, pre-accelerato ed inviato al tandem. In uscita dal tandem avvengono la collimazione e la selezione della linea sperimentale.

3.2.2 L'apparato di misura

Il fascio viene trasportato sotto vuoto spinto fino al sito di misura dove è presente una finestra sottile che gli permette di uscire (si ricordi che la misura è in aria). Le caratteristiche della finestra utilizzata devono essere quelle di mantenere il vuoto

nel canale e, contemporaneamente, essere il più possibile trasparente alla radiazione. Utilizzando materiali molto resistenti in piccoli spessori (*Upilex* di $7.5\mu\text{m}$, un materiale organico: $\text{C}_{22}\text{H}_{10}\text{N}_2\text{O}_4$), la perdita di energia e la dispersione del fascio nei primi millimetri fuori dal canale risultano trascurabili. Si tenga presente che il campione viene posizionato ad una distanza media di circa 1 cm dalla finestra.

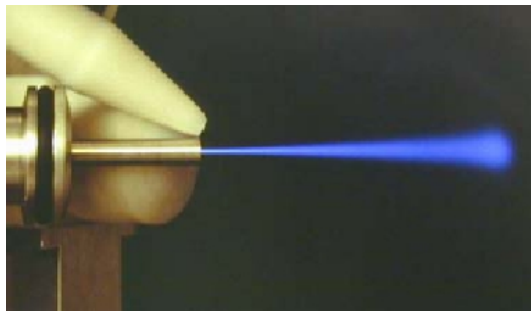


Figura 3.8: Uscita in aria del fascio. La fotografia è presa con lunghi tempi di esposizione per esaltare la forma del fascio, l'intensità reale è molto minore.

In figura 3.9 è mostrato lo schema dell'apparato di misura: per diminuire gli effetti di dispersione, in (1) si emette un getto di He che crea una atmosfera controllata nella zona di passaggio della radiazione e consente una minore attenuazione dei raggi X di bassa energia. Gli altri elementi sono rivelatori per i raggi X: per misure PIXE vengono utilizzati due rivelatori a Si(Li) (1) e (2) con caratteristiche di rivelazione leggermente diverse. Il (2) (detto BIG per le sue caratteristiche geometriche) è ottimizzato per la rivelazione di elementi di Z medio-alto. Ha dimensioni e geometria tali da coprire l'angolo solido più ampio possibile, in modo da compensare le basse sezioni d'urto di produzione X di tali elementi. Per evitare ritmi di conteggio insostenibili dal punto di vista dell'elettronica, dovuti all'emissione di raggi X da elementi di basso Z, davanti alla finestra di entrata del rivelatore viene posto un assorbitore di opportuno spessore che funge da schermo per X di bassa energia. Sarà importante introdurre questa informazione tra i parametri da fornire al programma di elaborazione dati. L'altro rivelatore (1) detto SMALL, al contrario, è tarato per rivelare X di bassa energia. Entrambi gli strumenti vengono raffreddati con Azoto liquido sia per migliorarne l'efficienza che per evitare effetti di danneggiamento dovuti ad un'elevata corrente inversa di saturazione del diodo Si(Li). L'accoppiamento dei due rivelatori permette un guadagno in termini di angolo solido e di rivelazione di differenti energie, massimizzando l'efficienza di rivelazione del sistema ed ottimizz-

zandone la sensibilità. Poiché gli elementi da indagare in questa misura sono tutti di Z medio-alto il rivelatore di interesse principale sarà il BIG.

È presente anche un rivelatore al Germanio per raggi gamma (3) utilizzato principalmente per misure PIGE (tecnica analoga alla PIXE con emissione di raggi gamma invece che X e che quindi sfrutta reazioni nucleari).

I dati raccolti vengono acquisiti da un personal computer che costruisce gli spettri di emissione e li mostra in "tempo reale".

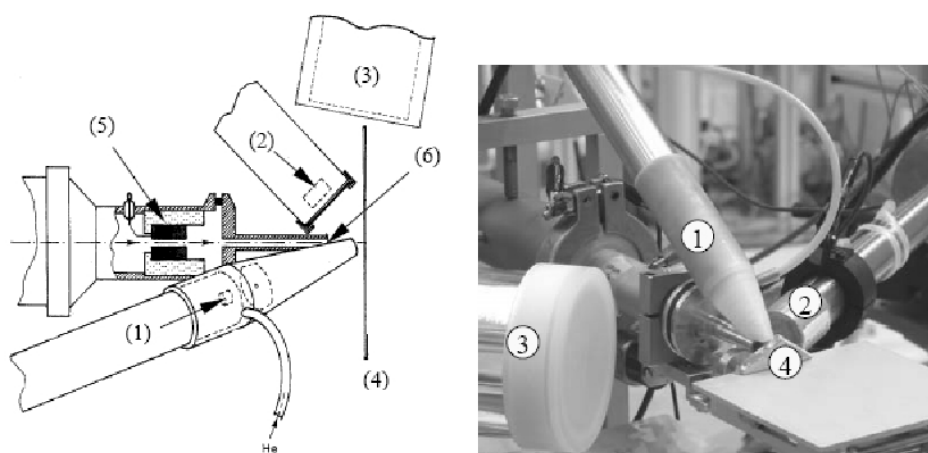


Figura 3.9: Apparato di rivelazione: (1), (2) rivelatori Si(Li); (3) rivelatore al Ge; (4) campione; (5) collimatore in grafite; (6) finestra di uscita del fascio.

Una paletta rotante (uno strato di Ni evaporato su un supporto di grafite) viene fatta passare periodicamente davanti al fascio e permette di monitorarne la corrente. Questa misura è necessaria sia per verificare eventuali variazioni nelle condizioni del fascio che per la successiva analisi quantitativa.

Il campione viene appoggiato su un supporto (fig. 3.9 (4)) che può essere movimentato micrometricamente sia manualmente che automaticamente nel piano perpendicolare alla direzione del fascio, questo permette di spostare il campione anche in fase di misura, cosa molto utile sia per cambiare zona di esposizione che per effettuare misure medie su una superficie.

Nella linea a vuoto, lungo la direzione del fascio, viene anche inserito un laser per allineare il campione. Il controllo dell'apparato in fase di misura viene effettuato con un sistema di telecamere che controllano il movimento del campione e il suo allineamento.

Alcune immagini dell'apparato:

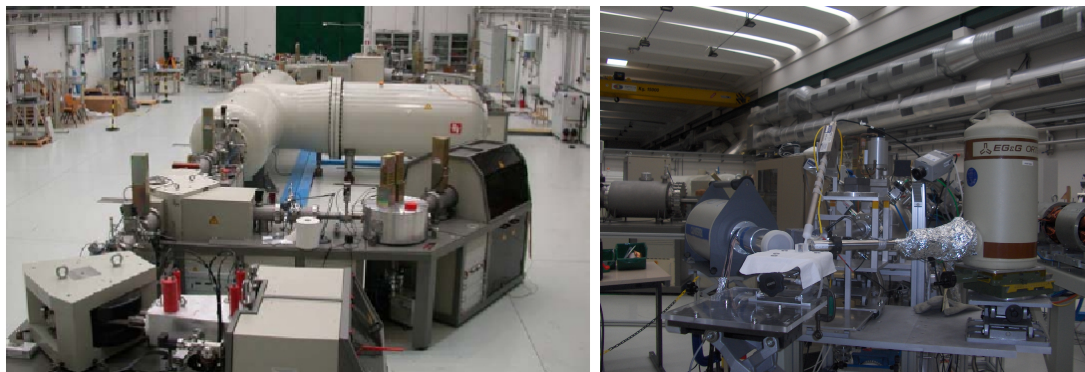


Figura 3.10: A sinistra l'acceleratore tandem con in primissimo piano la sorgente di ioni. A destra la zona sperimentale dedicata alla PIXE.

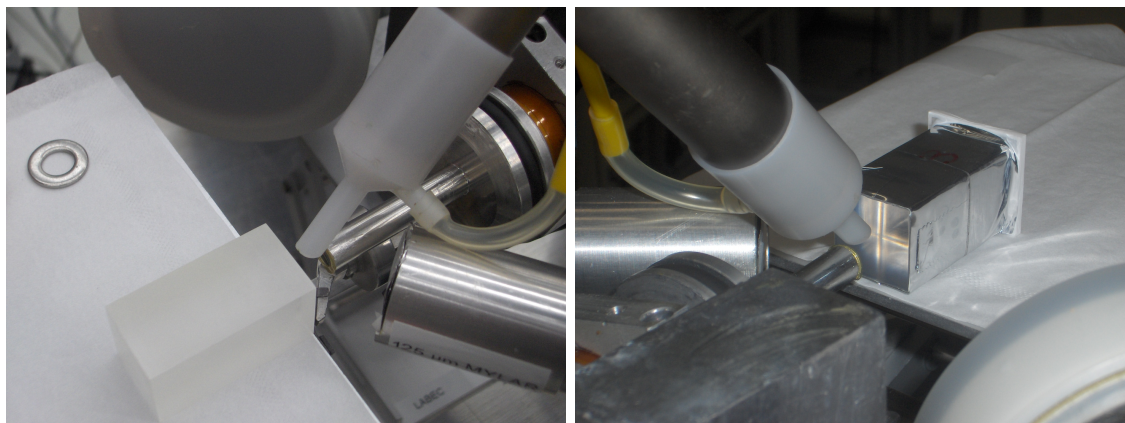


Figura 3.11: Posizionamento dei campioni.

3.2.3 Misure effettuate

L'obiettivo della misura è verificare le concentrazioni di Tl in vari cristalli CsI forniti da diverse case produttrici e l'eventuale presenza di altri elementi all'interno del reticolo. Si vuole verificare se le concentrazioni dichiarate corrispondano a quelle reali. Infatti ci sono diverse tecniche di crescita dei cristalli e di definizione della concentrazione. I cristalli di grandi dimensioni da cui si ottengono quelli che si possono acquistare non sono in generale omogenei, quindi il grado di omogeneità del cristallo che viene poi utilizzato dipende dalla zona da cui è stato tagliato dal cristallo di grandi dimensioni. Gli oggetti da misurare sono tutti a forma di parallelepipedo.

Numero	Marca	Concentrazione dichiarata	Caratteristiche
1,2	GB	4000 ppm	Nuovi - 2 pezzi
3,4	GB	3000 ppm	Nuovi - 2 pezzi
5,6	GB	2000 ppm	Nuovi - 2 pezzi
7,8	GB	1000 ppm	Nuovi - 2 pezzi
9	St. Gobain	500 ppm	
10	St. Gobain	200 ppm	
11	GB	3000 ppm	FI17
12	GB	2000 ppm	FI13
13	GB	1000 ppm	
14	Scionix	2500 ppm	FI23
15	Marketech	700 ppm	FI 35
16	Ignoto	stimato 1000 ppm	

Tabella 3.2: Elenco campioni analizzati.

Anche se l'acceleratore può fornire protoni fino a 6 MeV di energia, non è possibile effettuare analisi quantitative per energie superiori a 3 MeV poiché non è disponibile un database di sezioni d'urto per valori superiori, pertanto tutte le misure effettuate sono con facio di protoni da circa 3 MeV.

Con un software di simulazione (Srim [12]) si è stimato che lo spessore di CsI indagato dai protoni a questa energia non è superiore agli 85 μm , quindi la misura si limita ad analizzare lo strato più superficiale dei cristalli.

Si sono effettuati due tipi di misure: sia puntuali su differenti zone e facce dell'oggetto che medie sulla superficie. Per queste ultime un apposito programma comanda il movimento del supporto in modo che questo compia un percorso a "serpentina" (in seguito denominata *greca*) che spazza circa una superficie di 1 cm^2 (valore determinato dal fatto che le facce sono di lato 2 cm e bisogna tenere presente una

discreta incertezza sul posizionamento manuale del campione). In tabella 3.2 sono elencati i campioni che sono stati analizzati. Per studiarne uno strato più interno, l'ultimo cristallo è stato abraso con carta vetrata. Una analisi più approfondita dell'omogeneità longitudinale può essere ottenuta togliendo successivi strati ad un campione. Questa misura sarebbe quindi distruttiva.



Figura 3.12: Due dei cristalli analizzati (GB 4000 ppm - nuovi).

3.3 Analisi dati

Mostriamo alcune distribuzioni energetiche di raggi X per una prima analisi qualitativa:

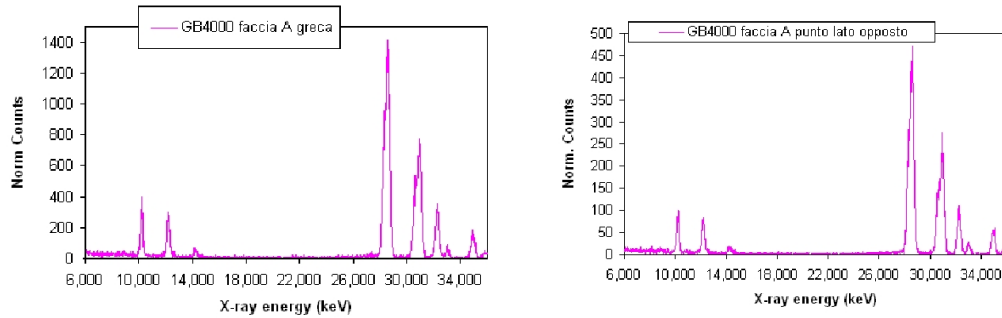


Figura 3.13: GB 4000 - spettri 04 e 05, si nota una differente concentrazione di Tallio nei due punti

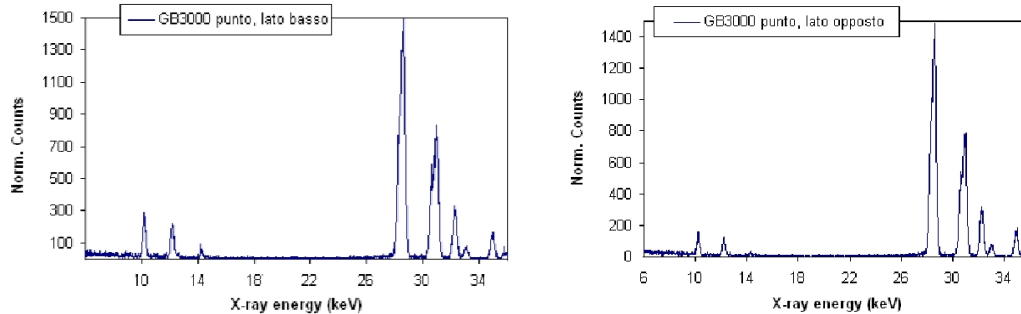


Figura 3.14: GB 3000 - spettri 15 e 17, differenti concentrazioni tra un lato e l'altro.

Gli spettri sono tagliati per energie più basse di 6 KeV. In questa regione si potrebbero osservare le righe L dello Iodio e del Cesio ma, siccome sono molto vicine o addirittura sovrapposte le une con le altre, si preferisce basare l'analisi sulla parte più distinta dello spettro, cioè quella in cui si osservano le righe K dello Iodio e del Cesio (quelle più intense sulla destra, cfr. Tabella 3.1) e le 3 principali righe L del Tallio (molto meno intense perché la concentrazione di Tl non è elevata). L'accordo tra i dati osservati negli spettri e le energie attese permette di identificare con buona sicurezza gli elementi presenti ed è già possibile escludere la presenza di sostanze inattese. Come si è già detto, l'intensità (numero di conteggi) dei picchi relativi alle

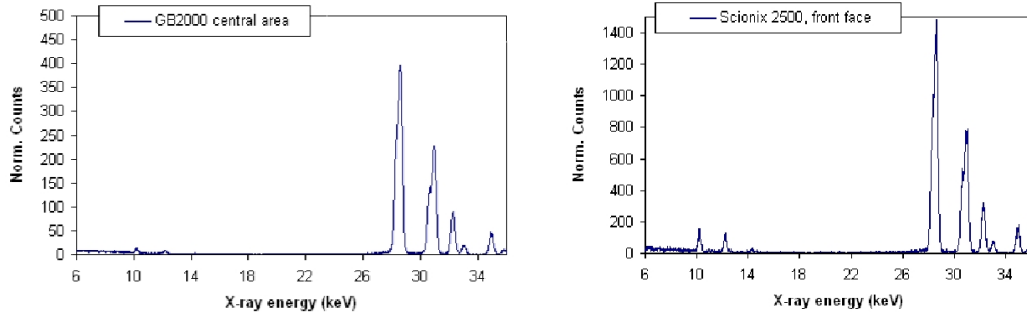


Figura 3.15: GB 2000 e Scionix 2500 - spettri 23 e 30, elevata differenza di concentrazione tra le due case produttrici.

transizioni dei vari elementi è proporzionale alla concentrazione. Tutti gli spettri sono normalizzati all'area totale.

Già visivamente è possibile osservare una certa disomogeneità all'interno delle misure sui campioni 1, 4, 6 e 14. In particolare si osserva che, a parità di concentrazione nominale, le intensità relative del Tallio variano molto all'interno della stessa faccia (figg. 3.13 e 3.14) e con le differenti case produttrici (fig. 3.15). Queste prime ipotesi dovranno essere confermate dall'analisi quantitativa.

3.3.1 Analisi quantitativa con GUPIX

Per analizzare i complessi spettri PIXE e risalire alla composizione elementale dei campioni esistono numerosi programmi, quello utilizzato al LABEC è prodotto dall'Università canadese della città di Guelph ed è denominato GUPIX (GUelph PIXe) [13], [14]. Sfruttando *database* aggiornati di sezioni d'urto, poteri di frenamento, coefficienti di attenuazione, ecc. è possibile eseguire una grande varietà di operazioni:

- analisi di campioni di qualunque spessore;
- applicazione di procedure iterative per il calcolo della concentrazione di campioni incogniti;
- determinazione degli elementi presenti in traccia in una matrice incognita;
- possibilità di tenere conto degli effetti di elementi cosiddetti "invisibili", cioè con emissione X troppo debole da poter essere rivelata.

Abbiamo visto nel paragrafo 3.1.2 che il numero di raggi X emessi da una particolare specie atomica rivelati in una misura dipende dal numero e dall'energia di particelle nel fascio, dalla concentrazione dell'elemento in questione, dall'angolo solido sotteso dal rivelatore e dalla sua efficienza di rivelazione e infine da tutti i possibili effetti di assorbimento, compreso l'autoassorbimento da parte di campioni spessi (funzione della composizione dello stesso). Proprio a causa della dipendenza di questi parametri dalla composizione del campione, non è possibile risalire dal semplice rapporto tra le aree alla concentrazione relativa dei vari elementi. Il programma ricorre quindi a procedure iterative che ricostruiscono per approssimazioni successive il valore di concentrazione. Il primo passo dell'analisi quantitativa consiste comunque proprio nel determinare le intensità dei picchi presenti nello spettro X e corrispondenti alle righe caratteristiche dei vari elementi. A tale scopo vengono eseguiti dei *fit* sulle aree. A partire da questi valori, il programma crea lo *spettro teorico* del materiale e fa ipotesi iniziali sul potere di frenamento $S(E)$ e sui coefficienti $\frac{\mu}{\rho}$ di attenuazione degli X. Possiamo riassumere la formula 1.3 per un elemento di matrice M come:

$$Y(Z, M) = \Omega \cdot Q \cdot C_z \cdot \varepsilon_z^i \cdot t_z \cdot Y_t(Z, M) \quad (3.6)$$

dove $C_z = \frac{\rho}{\rho_z}$ è la reale concentrazione dell'elemento Z in M, ε_z^i è l'efficienza intrinseca del rivelatore, t_z il fattore di trasmissione attraverso tutti gli assorbitori presenti tra bersaglio e rivelatore. $Y_t(Z, M)$ è l'intensità teorica calcolata per una riga analizzata (la t-esima) per unità di carica trasportata dal fascio (μC), per steradiante e per unità di concentrazione; tale quantità viene calcolata come segue:

$$Y_t(Z, M) = \frac{N_{Av} \cdot \omega_z}{4\pi \cdot e \cdot A} \cdot \int_{E_0}^{E_f} \frac{\sigma_{ion}(Z, E_p) \cdot e^{-\left(\frac{\mu}{\rho}\right) \frac{1}{\cos \vartheta} \int_{E_0}^{E_p} \frac{d\varepsilon}{S(\varepsilon)}}}{S(E_p)} \cdot dE_p$$

dove i simboli hanno lo stesso significato del paragrafo 3.1.2. Avendo note tutte le caratteristiche dell'apparato di misura e le aree già calcolate, è possibile procedere al calcolo delle concentrazioni incognite. Il programma esegue procedure più complesse per una migliore gestione dei possibili errori nei parametri misurati e nei database, quindi fornisce i risultati ed una stima dell'errore percentuale associato. In Appendice B vengono mostrati i parametri forniti al programma per l'analisi degli spettri.

3.3.2 Riepilogo delle misure e risultati

Spettro	Campione	Descrizione	Tl (ppm) nominale	Tl (ppm) effettiva	Err
02	9	faccia A - greca 1 cm	500	440	50
03	1	faccia A - greca 1 cm	4000	6400	200
04	1	faccia A - punto lato basso	4000	9300	300
05	1	faccia A - punto lato opposto	4000	5400	200
07	1	faccia B - greca 1 cm	4000	6100	200
08	1	lato - greca 1 cm	4000	4610	180
09	2	faccia A - greca 1 cm	4000	7200	200
10	2	faccia B - greca 1 cm	4000	6400	200
11	3	faccia A - greca 1 cm	3000	3010	110
12	3	faccia B - greca 1 cm	3000	3120	120
13	4	faccia A - greca 1 cm	3000	2950	110
14	4	faccia B - greca 1 cm	3000	3030	120
15	4	faccia B - punto lato basso	3000	4900	200
16	4	faccia B - punto lato basso II	3000	4380	150
17	4	faccia B - punto lato opposto,	3000	2440	100
18	4	faccia B - stesso lato di 15,	3000	2570	100
19	4	lato - greca 0,6 cm	3000	2930	110
20	10	faccia A - greca 1 cm	200	280	30
21	5	faccia A - greca 1 cm	2000	580	40
22	5	faccia B - greca 1 cm	2000	550	40
23	12	faccia A - greca 1 cm	2000	310	30
24	12	continuazione del 23,	2000	280	30
25	6	faccia A - greca 1 cm	2000	580	40
26	7	faccia A - greca 1 cm	1000	250	30
27	8	faccia A - greca 1 cm	1000	310	30
28	11	faccia A - greca 1 cm	3000	2280	90
29	15	faccia A - greca 1 cm	700	520	30
30	14	faccia A - greca 1 cm	2500	5230	160
31	14	continuazione del 30,	2500	5220	130
32	16	faccia A - greca 1 cm	1000	1050	50
33	16	stessa faccia del 32 grattata con carta vetrata	1000	1050	50

Tabella 3.3: risultati della misura.

Conclusioni

Le misure effettuate su alcuni cristalli di CsI(Tl) sono state descritte nei capitoli 2 e 3.

Sono state utilizzate le tecniche IBIL che hanno permesso di studiare in dettaglio lo spettro delle frequenze nel visibile emesse dai diversi cristalli e quindi anche come questo può influire sulla forma dell'impulso elettrico che riflette una componente pronta di emissione ed una ritardata.

La tecnica IBIL ha anche permesso di studiare la variazione dello spettro di emissione in funzione della dose di radiazione assorbita in modo da poter individuare i limiti di utilizzo di tali rivelatori.

Questa tecnica verrà estesa anche allo studio della luminescenza indotta da ioni pesanti nell'interazione con i cristalli perché è già stato osservato che la non linearità della risposta in luce dipende fortemente dalla carica dello ione incidente.

La tecnica PIXE ha messo in evidenza una discrepanza tra i valori di concentrazione di Tallio dichiarati dalle ditte costruttrici e quelli effettivamente misurati. In particolare uno dei cristalli utilizzati (GB 4000) presenta delle forti disomogeneità all'interno della stessa faccia: si passa da 9300 ppm a 5400 ppm in analisi puntuali. Inoltre si osservano forti differenze tra le diverse case costruttrici. I cristalli della ditta St. Gobain sono gli unici che presentano valori compatibili con quelli dichiarati. Inoltre i cristalli nuovi della ditta GB non presentano alcuna coerenza interna nella differenza tra i valori dichiarati e quelli misurati.

Misure IBIL precedenti sugli stessi campioni avevano mostrato variazioni dell'efficienza di rivelazione con la concentrazione, ma non era stato identificato un preciso andamento; sembra che l'efficienza aumenti con la concentrazione di Tl fino ad un massimo in cui gli effetti di *quenching* legati all'elevata densità compromettono l'emissione luminescente. Alla luce di queste conoscenze risulta molto importante avere cristalli omogenei e dalla densità di drogante nota con precisione.

La misura PIXE effettuata consente di correggere le concentrazioni nominali nei risultati di intensità della IBIL, ma non si nota una semplificazione della situazione.

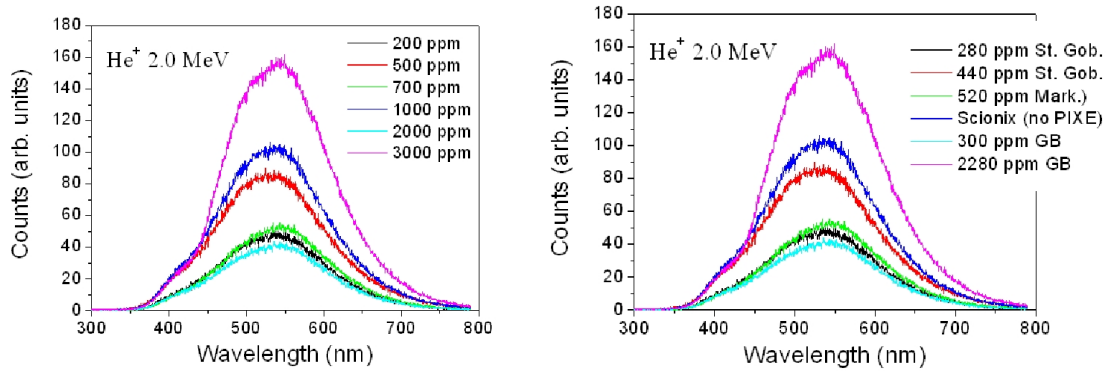


Figura 3.16: Efficienza luminosa dei cristalli CsI(Tl). Valori nominali (a) e corretti (b) di concentrazione di Tl.

Sembra che, oltre alla differenza di concentrazione, un fattore importante di discriminazione sia la casa produttrice. Questo potrebbe essere legato al modo con cui questi oggetti vengono prodotti: non solo differenti tecniche di accrescimento dei cristalli possono indurre concentrazioni effettive diverse da quelle richieste, ma la fig. 3.16 mostra che per concentrazioni effettivamente simili (certificate dalla PIXE) la resa dello scintillatore può essere sensibilmente diversa. La comprensione precisa di questi meccanismi di efficienza è di fondamentale importanza per la progettazione di nuovi rivelatori.

Gli scopi di queste misure e delle prossime che saranno effettuate sono quelli di determinare quale sia la concentrazione ottimale per ottenere la migliore risoluzione energetica e la migliore discriminazione ed identificazione delle particelle e dei frammenti.

Si è mostrato (capitolo 1) come la forma dell'impulso sia importante per l'identificazione. Attualmente è allo studio l'utilizzo di elettronica digitale che, campionando il segnale, potrà permettere una migliore discriminazione. Una prima misura è stata effettuata alla fine del mese di Novembre 2006, ma l'estrazione dei risultati è una procedura lunga che sarà iniziata a breve termine.

Appendice A

Listati dei programmi utilizzati

Di seguito sono riportati i listati dei programmi utilizzati per l'analisi dati.

A.1 Pulizia dal rumore di "fondo" elettronico

Programma in C++ per sottrarre il fondo da uno spettro. Entrambe le serie di dati sono memorizzate in file di testo (.txt).

```
#include <iostream>
#include <string>
#include <fstream>
#include <stdio.h>

using namespace std;

int main ()
{ char G;
  string N;
  int i,t,d,f;
  char esco;
  char indfondo [100]="LNLOGoct06_";
  cout<<"inserire giorno file FONDO: ";
  cin>>G;
  indfondo [4]=G;
  cout<<"inserire numero spettro FONDO: ";
  cin>>N;
  N+="_1.txt";
```

```

for (int i=0; i<N.length(); i++) indfondo[i+11]=N[i];
do{

    ifstream fondo (indfondo);
    if (!fondo) {cerr<<"---Il file non esiste---"<<endl; return (0);}
    cout<<endl<<"COME FONDO USO: "<<indfondo<<endl;
    char indfile [100]="LNLOXoct06_";
    indfile [4]=G;
    cout<<"inserire numero spettro: ";
    cin>>N;
    N+="_1.txt";
    int h=N.length();
    for (i=0; i<h; i++) indfile[i+11]=N[i];
    cout<<"analisi: "<<indfile<<endl;
    ifstream dati (indfile);
    if (!dati) {cerr<<"---Il file non esiste---"<<endl; return (0);}
    indfile[(6+h)]=’M’;
    FILE * fuori = fopen (indfile, "w");
    cout<<"Creato "<<indfile<<endl;
    while (!dati.eof()) {
        float cd, cf;
        fondo>>cf>>f;
        dati>>cd>>d;
        t=d-f;
        fprintf (fuori,"%f %d \n",cf,t);
    }
    dati.close();
    fondo.close();
    fclose(fuori);
    cout<<endl<<"Altri file con lo stesso fondo? [S/N] ";
    cin>>esco; }
while (esco==’s’);
return(0);
}

```

A.2 Correzione per la taratura dello spettrometro

Il seguente programma Fortran esegue la correzione dei valori dello spettro utilizzando il file "ibilcorrNUOVA.txt" come database di taratura.

```
program corribil

    real*8 wl(100000),fluo(100000),wll(1000),corr(1000)
real*8 sl(100000), uno, due, somma, sommacor
    real*8 ev(100000)
    character*50 filen, filen2
character*1 ans

write(6,*)'Correzione spettri IBIL'
write(6,*)' '
222 write(6,*)'Nome del file da correggere:'

read(5,*)filen
write(6,*)' '

write(6,*)'Nome del file nuovo:'
read(5,*)filen2

open(unit=1,status='old',file=filen)
open(unit=2,status='new',file=filen2)
open(unit=3,status='old',file='ibilcorrNUOVA.txt')

somma = 0.d0
sommacor = 0.d0

do 200 i=1,98
read(3,*)wll(i),corr(i)
200 end do

close(3)

do 100 i=1,100000
```

```
read(1,*,end=111)wl(i),fluo(i)

do 300 j=1,98

if((wl(i).gt.wll(j)).and.(wl(i).lt.wll(j+1))) then
uno=corr(j+1)-corr(j)
due=(wl(i)-wll(j))/(wll(j+1)-wll(j))
sl(i)=fluo(i)*(corr(j)+uno*due)
somma = somma + fluo(i)
sommacor= sommacor + sl(i)
goto 123
endif

if(wl(i).eq.wll(j)) then
sl(i)=fluo(i)*corr(j)
somma = somma + fluo(i)
sommacor= sommacor + sl(i)
endif

300 end do

123 continue

write(2,18)wl(i),sl(i),1239.8/wl(i),wl(i)*wl(i)*sl(i)*1d-7

100 end do

111 continue

close(1)
close(2)

write(6,*)somma,sommacor
write(6,*)'Ancora?'
read(5,*)ans
if(ans.eq.'y') goto 222
```

```
18 format(f8.3,f15.6,f8.3,f15.6)
```

```
stop
```

```
end
```

A.3 Creazione di serie temporali

Programma in C++ per estrarre da una serie di spettri il valore di intensità ad una determinata lunghezza d'onda, usato per la creazione di serie temporali a partire da un insieme di spettri successivi.

```
#include <iostream>
#include <string>
#include <fstream>
#include <stdio.h>

using namespace std;

int main ()
{ int a,b;
  char indfile [100]="LNL04oct06_";
  string N;
  cout<<"insrire estremi intervallo"<<endl;
  cin>>a>>b;
  FILE * fuori1 = fopen ("tutti450.txt", "w");
  FILE * fuori2 = fopen ("tutti555.txt", "w");
  cout<<"Creato "<<endl;
  for (int i=a; i<=b; i++) {
    cout<<"inserire file corrente "<<i<<" ";
    cin>>N;
    N+="_N.txt";
    int h=N.length();
    for (int k=0; k<h; k++) indfile[k+11]=N[k];
    cout<<"analisi: "<<indfile<<endl;
    ifstream dati (indfile);
    if (!dati) {cerr<<"---Il file non esiste---"<<endl; return (0);}
  }
}
```

```
double L=0, I;
while (L!=450.154) dati>>L>>I;
fprintf (fuori1,"%d %.3f %.9f \n",i,L,I);
while (L!=555.196) dati>>L>>I;
fprintf (fuori2,"%d %.3f %.9f \n",i,L,I);
dati.close();
}
fclose(fuori1);
fclose(fuori2);
return(0);
}
```

A.4 Normalizzazione

Programma in C++ per la normalizzazione di uno spettro ad un determinato valore.

```
#include <iostream>
#include <string>
#include <fstream>
#include <stdio.h>

using namespace std;

int main ()
{ string N;
  int i,f;
  char esco='s';
  do{
    char indfile [100]="LNL04oct06_";
    cout<<"inserire numero spettro: ";
    cin>>N;
    N+="_M.txt";
    int h=N.length();
    for (i=0; i<h; i++) indfile[i+11]=N[i];
    cout<<"analisi: "<<indfile<<endl;
    ifstream dati (indfile);
```

```
if (!dati) {cerr<<"---Il file non esiste---"<<endl; return (0);}
indfile[(6+h)]='N';
FILE * fuori = fopen (indfile, "w");
cout<<"Creato "<<indfile<<endl;
cout<<"Inserire valore di normalizzazione: ";
long int norm;
cin>>norm;
cout<<"normalizzo a "<<norm<<endl;
while (!dati.eof()) {
    double d, cd, t;
    dati>>cd>>d;
    t=d/norm;
    fprintf (fuori,"% .3f % .9f \n",cd,t);}
dati.close();
fclose(fuori);
cout<<endl<<"Altri file? [S/N] ";
cin>>esco;}
while (esco=='s');
return(0);
}
```

Appendice B

Parametri GUPIX per l'analisi PIXE

Di seguito è riportato un riassunto dei parametri forniti al programma GUPIX per l'analisi dei dati nella misura PIXE.

```
-----EXPERIMENTAL SETUP-----
0 (angle between beam and normal, in degrees)
55 (angle between normal and detector axis, in degrees)
1 (1/2/3/4/5 where 1=proton, 2=deuteron, 3=He3, 4=He4, 5=HEP)
0 (Cross-sections: 0=theoretical; 1=reference where available)
2860 (Ion energy in units of keV)
1 (Beam charge in units consistent with H-value)
1 1 (detector # from ap0det.dat followed by 1: use det eff or 0: no det eff)
3 (number of x-ray absorbing filters)
102 28 0 (One line for each filter, giving Z, then thickness in microns
(mm if air), then % hole area)
100 425 0 (One line for each filter, giving Z, then thickness in microns
(mm if air), then % hole area)
13 36 0 (One line for each filter, giving Z, then thickness in microns
(mm if air), then % hole area)
1 (1st entry is constant H-value or -1 if H is energy-dependent.
If H=constant, no more entries. For energy-dependent H, subsequent
entries are names of these H-files for K, L, M x-rays, in this order,
with extension .HED.)
-1 (1 if there is a run description, followed by the run description text;
otherwise -1)
-----SAMPLE STRUCTURE-----
1 0 (First entry is Thin target=0, Thick=1, Intermediate=2, Layered=3.
Second entry is input energy in keV units if 'thin' was selected, zero if
```

'thick' was selected; if 'intermediate' was selected it is exit energy in keV units or negative sign followed by target thickness in microgram/cm-squared units; if 'layered' was selected there is no second entry.)

-----Non-layered (NL)-----

0 -1 -1 (First entry=1 for depth fraction option checked, 0 for unchecked, L=layered.

If DF option is checked, second entry is %% depth fraction and third is target density in g/cm³; otherwise these two are each -1.)

-----Multiple layers (L)-----

-1 (Number of layers if a layered target was chosen; otherwise -1)

-1 -1 (First entry is 1 for thickness iteration within matrix element solution, 0 if no iteration: Second entry is 1 for last layered infinite in this iterative solution, 0 if not. Both are -1 if target is not layered. Both are -1 if it is a trace element solution).

(The next section has the single entry -1 if target is not layered or if thicknesses are being iterated: otherwise as follows, with 1 line for each layer: 1st entry of line identifies layer #, with top layer being #1; 2nd entry is exit energy (keV) from this layer or negative sign followed by layer thickness in ug/cm²: if depth fraction option was chosen next 2 entries are % depth fraction and layer density, otherwise -1 and -1.)

-1

-----TRACE ELEMENT SOLUTION-----

-----Define matrix elements-----

-1 -1 (Number of matrix elements for thick/intermediate/layered target followed by weight type. Number of elements shows -1 if n/a; weight type 0 for weight, 1 for oxide.)

-----Define trace elements-----

-1 (Number of trace elements or -1 if it is not a trace element solution.)

-----ITERATIVE MATRIX ELEMENT SOLUTION-----

-----Define fit elements-----

3 (Number of fit elements, or -1 if it is not a matrix element solution.)

(For matrix solution, describe 1 element per line. 1st two entries on line are Z and Layer number (NL=not layered, S=surface, F=filter)

3rd entry is for special "split" cases and identifies the x-ray line that is used in iterating the concentrations, otherwise write -1; 4th entry is x-ray group Information as defined earlier. If

NOT a matrix solution, 1 line with a single -1 entry).

53 NL K K,L

55 NL K K,L

81 NL -1 L

1 (1 for normalization of concentrations to 100% total, 0 if not: -1 if not a matrix element solution OR if thin or layered target is defined.)

-----Layer thickness iteration mode-----

----- (Only for special case of 2 layers and substrate infinite and no independent invisibles in substrate) -----

-1 (-1 if inactive, otherwise: 1=upper layer iterated, 2=substrate iterated.)

-----Define invisible elements-----

-1 (Integer number of invisible elements or compounds; otherwise -1 if no invisibles or if it is not a matrix element solution.)

-1 (If no invisibles, a single -1 entry. Otherwise 1 line for each invisible: 1st entry is Z: (if it is a compound ie. Z>99, then next come brackets with (Z comma atomic fraction) for each atom in the compound): 2nd item is the layer # or NL if not layered: 3rd is valence of invisible: 4th is dependent/independent=1/-1: 5th is the altered list of complexes, or -1 if no alterations/removals made.)

-----BATCH MODE-----

-1 (1st entry is -1 if not batch mode, 0/1 for trace/matrix solution in batch mode. 2nd entry is either the name of the par.val file from a single fit or -1)

-----SPECTRUM FIT-----

0.001 30 0 50 -1 (1st entry is ultimate delta-chisq: 2nd is # of loops in fit; 3rd is 0/1 for pileup options i.e. 0 for peak pileup or 1 for peak+continuum pileup: if 0 is chosen then P1=# of pileup peaks and P2=-1: if 1 is chosen, P1 and P2 define channel limits of region used to generate pileup.)

-23.7093 54.0231 0 8.7 1.34 (Values of 5 calibration parameters.)

1 3 (Number N of fixed calibration parameters and their ID numbers.)

0 -1 (1st entry: 0=input A5 value: 1=input F.epsilon value: 2nd entry is -1 or F.epsilon.)

-----Background edges-----

-1 (1st entry is # of edges or -1 if none defined: if edges are defined their Z values follow separated by spaces.)

-----Digital filter-----

1 (0=constant filter size: 1=variable: 2=two-region filter.)

-1 -1 (If constant filter chosen, these are integer channel widths of center and wing portions; or if variable/two-region filter chosen, write -1 -1)

-1 -1 -1 (If two-region filter option was chosen, 1st entry is region boundary channel, 2nd is integer multiplier of center section width, 3rd entry is integer multiplier of wing section width; if this option not chosen, write -1 -1 -1)

Bibliografia

- [1] U. Abbondanno, M. Bruno, G. Casini, R. Cavaletti, Sl. Cavallaro, M. Chiari, M. D'Agostino, F. Gramegna, A. Lanchais, G.V. Margagliotti, P.F. Mastinu, P.M. Milazzo, A. Moroni, A. Nannini, A. Ordine, G. Vannini and L. Vannucci; Nucl. Instr. & Meth. **A488** (2002) 604
- [2] G. Casini et al.; LNL 2004 Ann.Report pages 212, 214 LNL-INFN(REP)-204/2004 ISBN 88-7337-008-X and www.lnl.infn.it/~annrep/read_an/2004/index_2004.html, to be submitted to Nucl. Instr.&Meth.
- [3] G. F. Knoll; Radiation Detection and Measurement, second edition; John Wiley & Sons Ltd, 1989
- [4] P.F. Mastinu et al; Nucl. Instr. & Meth. **A338** (1994) 419.
- [5] P.F. Mastinu et al; Nucl. Instr. & Meth. **A341** (1994) 663.
- [6] M. Alderighi et al.; Particle identification method in the CsI(Tl) scintillator used for the CHIMERA 4 detector; Nucl. Instr. & Meth. **A 489** (1-3) (2002) pp. 257-265
- [7] L. Bardelli, G. Poggi, M. Bini, G. Pasquali and N. Taccetti; Nucl. Phys. **A746** (2004) 272.
- [8] M. Parlog et al.; Nucl. Instr. & Meth. **A482** (2002) 674.
- [9] M. Parlog et al.; Nucl. Instr. & Meth. **A482** (2002) 693.
- [10] Origin Pro 7.0; Origin Lab Corporation; <http://www.OriginLab.com>
- [11] P.A. Mandò; Encyclopedia of Analytical Chemistry R.A. Meyers (Ed.) pp. 12708 – 12740; John Wiley & Sons Ltd, Chichester, 2000

- [12] J.F. Ziegler and J.P. Biersack; SRIM: Stopping and Range of Ions in Matter, version 2003.26, <http://www.srim.org>
- [13] J.A. Maxwell, J.L. Campbell and W.J. Teesdale; Nucl. Instr. & Meth. **B43** (1989) 218
- [14] J.A. Maxwell, W.J. Teesdale and J.L. Campbell; Nucl. Instr. & Meth. **B95** (1995) 407