

ALMA MATER STUDIORUM · UNIVERSITÀ DI BOLOGNA

Scuola di Scienze
Corso di Laurea Magistrale in Fisica

**Caratterizzazione sperimentale della
produzione in aria di ^{41}Ar nell'impiego di
un ciclotrone per uso biomedico**

Relatore:

Dott.sa Maria Pia Morigi

Presentata da:

Francesco Cesarini

Correlatori:

Dott. Mario Marengo

Dott. Gianfranco Cicoria

**Sessione III
Anno Accademico 2014/2015**

Abstract

Negli ultimi anni l'utilizzo di ciclotroni per la produzione di radionuclidi, impiegati nell'ambito della Medicina Nucleare, è diventato un processo sempre più diffuso e numerosi sono i modelli commercialmente disponibili. L'impiego di questo tipo di apparecchiature porta a considerare questioni rilevanti legate alla radioprotezione che coinvolgono una serie di aspetti complessi sia nella fase progettuale del sistema, sia nell'ottenimento delle necessarie autorizzazioni e sia nelle pratiche giornaliere. In particolare, uno dei principali problemi radioprotezionistici da affrontare è legato alla dispersione in ambiente di aeriformi radioattivi, prodotti dall'interazione di flussi di particelle secondarie con l'aria.

In questo lavoro di tesi, svolto presso il Servizio di Fisica Sanitaria dell'Ospedale Sant'Orsola-Malpighi, si è cercato di caratterizzare l'emissione di tali gas radioattivi considerando l'effetto del sistema di ventilazione. È stata eseguita un'estesa campagna di misurazioni in diversi punti di campionamento, collocati lungo il percorso di estrazione dell'aria: dal bunker fino all'immissione in ambiente. A questo scopo, sono stati ideati e realizzati dei semplici e compatti sistemi di campionamento che hanno permesso di definire, attraverso un sistema di spettrometria gamma equipaggiato con rivelatore al HPGe, una sistematica procedura per la determinazione sperimentale di concentrazione di attività. I risultati ottenuti mostrano come, durante la normale routine di produzione di ^{18}F mediante ciclotrone, il processo più rilevante di attivazione dell'aria sia la produzione di ^{41}Ar ($T_{1/2}=109.34$ minuti, $Yield \beta = 100\%$), unico radionuclide identificato in tutte le misurazioni. Infine, sulla base dei dati sperimentali ottenuti, è stata effettuata una valutazione della dose annuale rilasciata alla popolazione locale. Il risultato, pari a $0.19 \mu\text{Sv/anno}$, può essere considerato trascurabile rispetto alla soglia di "non rilevanza radiologica", a dimostrazione di come le tipiche procedure in ambito di Medicina Nucleare possano essere considerate del tutto giustificate, tenuto conto della vasta gamma di benefici che offrono alla popolazione.

Indice

Introduzione	1
---------------------------	----------

Capitolo 1

Ciclotrone in campo biomedico	3
1.1 Introduzione.....	3
1.2 Caratteristiche di un ciclotrone.....	5
1.2.1 Principi di funzionamento.....	5
1.2.2 Ciclotroni isocroni	9
1.2.3 Estrazione del fascio	10
1.3 Il ciclotrone GE PETtrace	12
1.3.1 Bunker del ciclotrone.....	15

Capitolo 2

Produzione di radionuclidi	17
2.1 Reazioni nucleari.....	17
2.1.1 Interazioni dei neutroni.....	19
2.1.1 Produzione di radionuclidi in ambito biomedico.....	20
2.1.2 Il <i>Q-valore</i> di una reazione	23
2.2 Concetto di sezione d'urto	27
2.3 Attivazione neutronica secondaria	30

Capitolo 3

Attivazione neutronica dell'aria intorno a un ciclotrone per uso biomedico...35	35
3.1 Modello teorico	36
3.2 Sorgente di neutroni	39

3.3	Sistema di ventilazione.....	40
3.3	Possibili reazioni di attivazione neutronica dell'aria	42

Capitolo 4

Rivelatori a semiconduttore e Spettrometria γ	45
4.1 Spettrometria Gamma.....	45
4.1.1 Struttura di uno spettro gamma.....	46
4.1.2 Risoluzione energetica.....	48
4.1.3 Efficienza.....	49
4.1.4 Tempo morto	51
4.2 Rivelatori a semiconduttore.....	51
4.2.1 Rivelatori HPGe.....	54
4.3 Caratteristiche e procedure di calibrazione dello spettrometro in uso	56
4.3.1 Calibrazione in efficienza	57
4.3.2 Correzione dell'efficienza con il software <i>LabSOCS/ISOCS</i>	61
4.4 Analisi quantitativa dello spettro gamma.....	63

Capitolo 5

Misure sperimentali di ^{41}Ar: Materiali e metodi.....	67
5.1 Introduzione.....	67
5.2 Metodi di lavoro	68
5.3 Setup sperimentale e metodologia di misura.....	72
5.3.1 Stima dello Y_{sat} in aria ferma	72
5.3.2 Misure di attività di ^{41}Ar nei punti B, C e D.....	73

Capitolo 6

Risultati.....	79
6.1 Stima del parametro m all'interno del bunker.....	79
6.1.1 Risultati di Y_{sat} in aria ferma.....	79
6.1.2 Campionamenti all'interno del bunker.....	83
6.2 Stima della portata di estrazione d'aria dal bunker e fattore F_1	85
6.3 Stima del fattore F_1 dai campionamenti prima del filtro	87

6.3.1 Stima dello Y'_{sat} per le misurazioni prima del filtro.....	87
6.3.2 Stima del fattore F_1	90
6.4 Stima del fattore $F_1 \cdot F_2$ dai campionamenti dopo il filtro	92
6.4.1 Stima dello Y'_{sat} per le misurazioni dopo il filtro.....	92
6.4.2 Stima del fattore $F_1 \cdot F_2$	95
6.5 Rilascio di ^{41}Ar nell'ambiente.....	96
Conclusioni	99
Bibliografia.....	103

Introduzione

Negli ultimi anni, l'imaging funzionale con tecnica *PET/TC* ha acquisito grande importanza per la diagnosi e la stadiazione di diverse patologie oncologiche. Questa tecnica prevede la somministrazione di radiofarmaci marcati con nuclidi emettitori di positroni. I radionuclidi tipicamente utilizzati hanno breve tempo di dimezzamento e devono essere prodotti in prossimità del reparto di Medicina Nucleare mediante ciclotroni dedicati. Sul territorio nazionale italiano sono presenti circa una trentina di laboratori dedicati a questo tipo di produzione. Generalmente, i ciclotroni utilizzati in ambito biomedico accelerano fasci di particelle ad energie comprese tra 11 e 18 *MeV*; l'intensità di questi fasci è molto elevata, in genere si raggiungono valori di corrente fino a 100 μA .

Uno degli aspetti di radioprotezione da affrontare in fase progettuale è legato alla dispersione in ambiente di aeriformi radioattivi prodotti dall'interazione di flussi di particelle secondarie con l'aria presente all'interno del bunker del ciclotrone. E' necessario quindi valutare il possibile rischio per la popolazione dovuto al rilascio in ambiente degli eventuali radionuclidi prodotti.

Per mezzo di approfondite ricerche bibliografiche, ho potuto verificare che esistono diverse linee guida per stimare il rilascio in ambiente di aeriformi radioattivi, ma i dati pubblicati, di base teorica e sperimentale, si riferiscono a siti di produzione o di ricerca che utilizzano sia acceleratori ad energie più elevate sia correnti di fascio più basse rispetto ai ciclotroni per impiego biomedico (*J.H. Chao* [1], *B. Lauritzen* [2]).

In base a studi effettuati preliminarmente, descritti nei capitolo 2 e 3, ci si aspetta che il processo più rilevante di attivazione dell'aria durante il normale ciclo di lavoro del ciclotrone sia la formazione di ^{41}Ar ($T_{1/2}=109.34$ minuti, $Yield \beta^- = 100\%$) causato

dall'interazione dei neutroni secondari con gli atomi di ^{40}Ar presenti in aria secondo la reazione $^{40}\text{Ar}(n,\gamma)^{41}\text{Ar}$.

In questo lavoro di tesi, svolto presso il Servizio di Fisica Sanitaria dell'Ospedale Sant'Orsola di Bologna, è stata effettuata una estesa campagna di misurazioni al fine di determinare sperimentalmente la concentrazione di aeriformi radioattivi in diverse sedi di campionamento dell'impianto di ventilazione, dall'interno del bunker del ciclotrone fino all'immissione in ambiente esterno. Lo scopo di questo studio è quantificare l'attività dei gas radioattivi prodotti e validare il modello teorico che descrive la concentrazione di attività, includendo l'effetto del sistema di ventilazione, presente sia all'interno del bunker sia lungo il condotto di estrazione dell'aria (*Birattari* [3]).

Infine, sulla base dei risultati ottenuti, si è stimata la dose efficace totale rilasciata in ambiente, in modo da valutare un possibile rischio da radiazioni per la popolazione locale e l'ambiente circostante.

Capitolo 1

Ciclotrone in campo biomedico

1.1 Introduzione

Un acceleratore di particelle è un macchinario in grado di produrre fasci di ioni o particelle subatomiche ad una elevata energia cinetica. Tali apparati possono essere impiegati per diversi scopi: industriali (sterilizzazione di prodotti sanitari, condizionamento di alimenti o materiali in legno), medici (produzione di isotopi radioattivi, terapia oncologica, etc) o di ricerca (studio in profondità della struttura della materia e dei nuclei che la costituiscono).

La corsa alla produzione di macchine in grado di accelerare ioni a energie superiori al *MeV* risale tra la fine degli anni Venti e l'inizio degli anni Trenta. I primi acceleratori, realizzati da *Van de Graaff* e *Walton*, sfruttano campi elettrici statici in cui gli ioni sono accelerati tra una differenza di potenziale tra i 10 e i 20 *MV*. Negli anni successivi la necessità di accelerare particelle ad energie più elevate di quelle raggiungibili con gli acceleratori elettrostatici, porta alla realizzazione degli acceleratori lineari (*Linear Accelerators, LINAC*), in cui sono applicati campi elettrici alternati in una traiettoria lineare del fascio.

L'esigenza di raggiungere energie sempre maggiori porta alla progettazione del ciclotrone, il primo acceleratore circolare realizzato da *Ernest Lawrence* nel 1930. L'idea di far transitare più volte le particelle in una stessa cavità accelerante, in modo

da utilizzare tensioni elettriche non particolarmente elevate, ha portato a realizzare apparati compatti (a differenza dei *LINAC*, in cui per aumentare l'energia del fascio era necessario aumentare la lunghezza della macchina).



Figura 1: Ernest O. Lawrence

In un ciclotrone gli ioni si muovono lungo una traiettoria circolare per effetto di un campo magnetico statico e vengono accelerati da un campo elettrico oscillante; all'interno di una camera a vuoto circolare sono presenti due elettrodi semicircolari cavi a forma di *D* (chiamati anche *Dees* per la loro forma). La camera è posizionata tra i poli di un magnete in modo che il campo generato sia perpendicolare al piano su cui giacciono gli elettrodi.

In questa situazione, quando una particella viene introdotta tangenzialmente alla camera e ortogonalmente al campo magnetico, essa sarà costretta a muoversi lungo un'orbita circolare per effetto della forza di Lorentz. Se ai due elettrodi viene applicata una differenza di potenziale alternata ad alta frequenza, la particella subirà un'accelerazione ogni volta che transita nello spazio tra di essi.

Il risultato è un incremento del diametro dell'orbita della particella fino a quando non esce dal bordo del dispositivo.

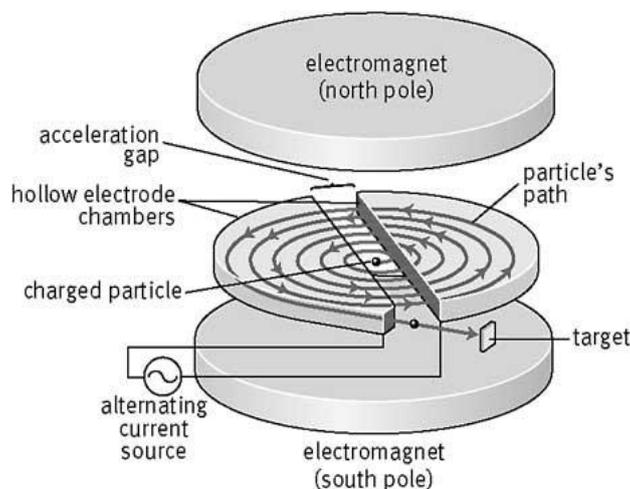


Figura 2: Struttura semplificata di un ciclotrone

1.2 Caratteristiche di un ciclotrone

1.2.1 Principi di funzionamento

Il funzionamento di un ciclotrone si basa essenzialmente sull'applicazione di un campo elettrico e un campo magnetico: il primo è usato per accelerare le particelle mentre il secondo per dare loro una "direzione".

Infatti, se consideriamo una singola particella carica immersa in un campo elettrico uniforme E , questa viene accelerata come:

$$\mathbf{a} = \frac{\mathbf{F}}{m} = \frac{q\mathbf{E}}{m} \quad (1.1)$$

dove q è la carica elementare e m la sua massa.

Il campo elettrico è generato dall'applicazione di una differenza di potenziale ΔV tra due elettrodi; dunque la variazione di energia cinetica della particella è pari a:

$$\Delta T = q\Delta V \quad (1.2)$$

Perpendicolarmente alla direzione del moto della particella è applicato un campo magnetico \mathbf{B} , il quale genera sulla particella la forza di Lorentz:

$$\mathbf{F} = q (\mathbf{v} \times \mathbf{B}) \quad (1.3)$$

dove \mathbf{v} è la velocità della particella e \mathbf{B} è il vettore induzione magnetico.

L'uguaglianza tra il termine della forza centripeta e quello della forza di Lorentz definisce una traiettoria circolare di raggio r nel piano perpendicolare al campo magnetico. Si ha:

$$\frac{mv^2}{r} = qvB \quad (1.4)$$

dove m è la massa della particella, v è la velocità, q è la carica e r è il raggio della traiettoria.

Dall'equazione 1.4 è possibile ricavare il raggio r dell'orbita circolare:

$$r = \frac{mv}{qB} \quad (1.5)$$

e la frequenza di rotazione:

$$v = \frac{\omega}{2\pi} = \frac{qB}{2\pi m} \quad (1.6)$$

dove ω è la velocità angolare che dipende dalle caratteristiche della particella (q, m) e dall'intensità del campo magnetico B ma risulta essere indipendente dal raggio dell'orbita.

L'energia cinetica T può essere ricavata dall'equazione 1.6:

$$T = \frac{mv^2}{2} = \frac{m\omega^2 r^2}{2} = \frac{q^2 B^2 r^2}{2m} \quad (1.7)$$

Dalle equazioni 1.6 e 1.7 si possono trarre diverse conclusioni: (a) l'energia cinetica T dipende dalle caratteristiche della particella (q, m), dall'intensità del campo magnetico B e dal raggio r dell'orbita; (b) il vettore induzione magnetico B è correlato alla velocità angolare ω attraverso le proprietà dello ione; (c) l'energia cinetica T , la velocità v e il raggio r sono correlati tra di loro, una volta selezionati il tipo di particella e l'intensità di campo magnetico B .

Le equazioni appena descritte sono valide per velocità della particella molto inferiori a quelle della luce. Nel momento in cui la particella raggiunge una velocità prossima a quella della luce, occorre considerare la correzione relativistica della sua massa; l'aumento della massa relativistica della particella richiede una variazione o della frequenza (sincro-ciclotrone) o del campo magnetico durante l'accelerazione del fascio (ciclotrone isocrono).

Riscrivendo le relazioni in termini dei parametri relativistici γ e β e della massa relativistica:

$$\beta = \frac{v}{c} ; \gamma = \sqrt{\frac{1}{1 - \beta^2}} \quad (1.8)$$

$$m = \gamma m_0 = \frac{m_0}{\sqrt{1 - \beta^2}} \quad (1.9)$$

è possibile ricavare le espressioni relativistiche per il raggio della traiettoria descritta dalla particella e per la frequenza di rotazione del ciclotrone:

$$r = \frac{\gamma m_0 v}{qB} \quad (1.10)$$

$$v_c = \frac{qB}{2\pi\gamma m_0} \quad (1.11)$$

Ogni volta che le particelle passano tra le due *dees*, la sorgente a radiofrequenza deve invertire la polarità degli elettrodi in modo da garantire, ad ogni passaggio, un incremento della loro accelerazione. Dunque, per essere in condizione di risonanza, la

radiofrequenza ν_{RF} deve essere uguale a un multiplo intero della frequenza del ciclotrone ν_c :

$$\nu_{RF} = h\nu_c \quad , \quad h = 1, 2, 3, \dots \quad (1.12)$$

dove h è il numero dell'armonica.

Consideriamo un ciclotrone formato da due *dees* e due *dummy dees* (elettrodi collegati a massa).

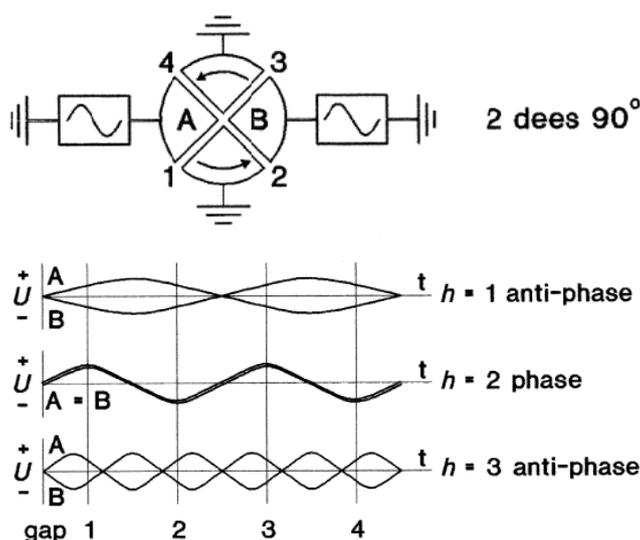


Figura 3: In alto è rappresentato uno schema di un ciclotrone formato da due dees (A,B) collegate alla sorgente a radiofrequenza e da due dees collegate a terra. In basso sono rappresentate le oscillazioni armoniche per un "ciclotrone a due dees"

Gli ioni H vengono accelerati utilizzando la prima armonica ($h=1$), che rappresenta l'applicazione della differenza di potenziale tra le due *dees* A e B in opposizione di fase; di conseguenza il fascio subisce quattro accelerazioni in un giro completo. Gli ioni D invece vengono accelerati in seconda armonica ($h=2$) e quindi in ogni rivoluzione subiscono due accelerazioni poichè la differenza di potenziale applicata è in fase. (rappresentazione in figura 3).

1.2.2 Ciclotroni isocroni

I ciclotroni isocroni sono un particolare tipo di ciclotroni, nei quali l'elettromagnete presenta una struttura differente da quella classica; la sua funzione è quella di mantenere gli ioni in una traiettoria ben stabilita, quindi una focalizzazione del fascio ed il mantenimento della sua stabilità. Per soddisfare queste richieste, l'elettromagnete presenta una struttura sagomata in modo da creare un campo magnetico variabile sia radialmente che angolarmente. La variazione radiale è necessaria per compensare gli effetti relativistici dell'aumento della massa degli ioni accelerati. Mentre la variazione angolare, ottenuta dall'asportazione di settori radiali dai poli del magnete (*hills* e *valleys*, figura 4), è necessaria per garantire la focalizzazione del fascio e compensare l'instabilità provocata dalla variazione radiale del campo magnetico.

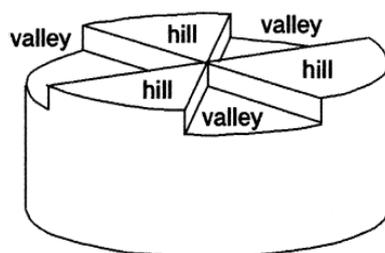


Figura 4: Struttura a hills e valleys di un ciclotrone isocrono

L'alternarsi di queste zone determina un campo magnetico di maggiore intensità nelle regioni di *hills* e di minore intensità in quelle di *valleys*; per questo motivo la traiettoria risultante delle particelle accelerate non è perfettamente circolare ma presenta una curvatura variabile angolarmente, come mostrato in figura 5.

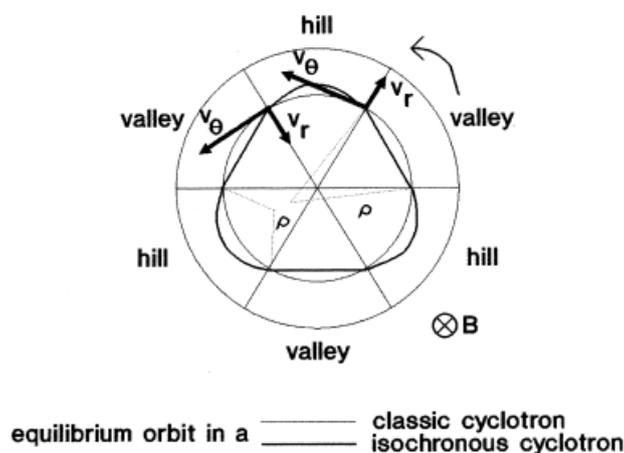


Figura 5: Traiettorie delle particelle dovute alla struttura a hills e valleys dell'elettromagnete

1.2.3 Estrazione del fascio

Il fascio accelerato di ioni deve essere estratto dal ciclotrone e guidato verso un target desiderato: questo processo prende il nome di estrazione del fascio. Il modo con cui viene estratto il fascio dipende dal tipo di particella accelerata, in particolare dalla propria carica positiva o negativa.

L'estrazione di ioni positivi consiste nel guidare il fascio verso l'esterno del magnete attraverso un deflettore elettrostatico posizionato al bordo del magnete stesso. Tale dispositivo è costituito da una coppia di elettrodi: uno collegato a terra mentre l'altro collegato a un elevato voltaggio negativo. Il fascio di ioni, percorsa la traiettoria circolare di raggio massimo, raggiunge il deflettore elettrostatico e risente del suo campo elettrico diretto verso l'esterno. Questo campo guida il fascio di ioni fuori dalla zona di campo magnetico e lo dirige verso un determinato tipo di target.

Invece, nel caso in cui vengano accelerati ioni negativi (p.e. H^-), il procedimento di estrazione del fascio è leggermente differente rispetto all'estrazione di ioni positivi (si ricordi che gli ioni estratti sono positivi).

L'utilizzo di ioni negativi in fase di accelerazione favorisce una minor attivazione del sistema di estrazione, delle pareti dei dees e del magnete. Il principio di accelerazione

degli ioni negativi è lo stesso degli ioni positivi con la differenza che la carica è negativa e quindi il verso di rotazione è opposto.

Nel momento in cui il fascio di ioni negativi ha raggiunto il raggio massimo dell'orbita, viene fatto incidere su un sottile strato di carbonio, chiamato anche *stripping foil*, il quale rimuove gli elettroni dagli atomi. A questo punto, la rapida inversione di carica degli ioni dovuta alla rimozione degli elettroni, inverte la curvatura della traiettoria del fascio che fuoriesce dal magnete e si dirige verso il target desiderato (figura 6).

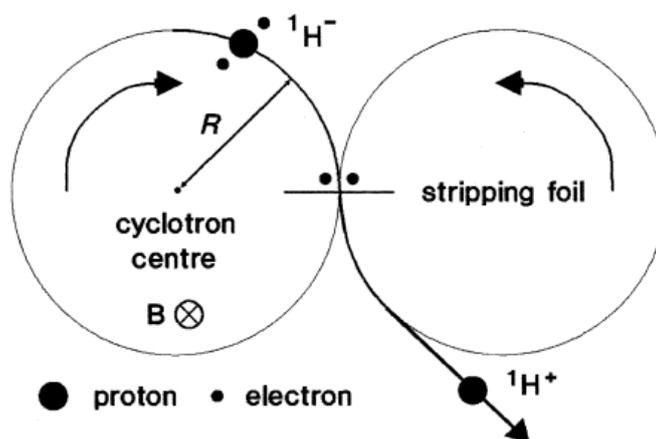


Figura 6: Schema della tecnica di stripping foil per l'estrazione di ioni negativi

1.3 Il ciclotrone GE PETtrace

Il *PETtrace*, installato presso il Policlinico Sant'Orsola-Malpighi e prodotto dall'azienda *General Electric Medical Systems*, è un ciclotrone isocrono ad energia fissa in grado di accelerare ioni idrogeno negativi (H^-) fino a 16.5 MeV e ioni negativi di deuterio (D^-) fino a 8.4 MeV con intensità massime di fascio di $75\ \mu\text{A}$ e $60\ \mu\text{A}$.

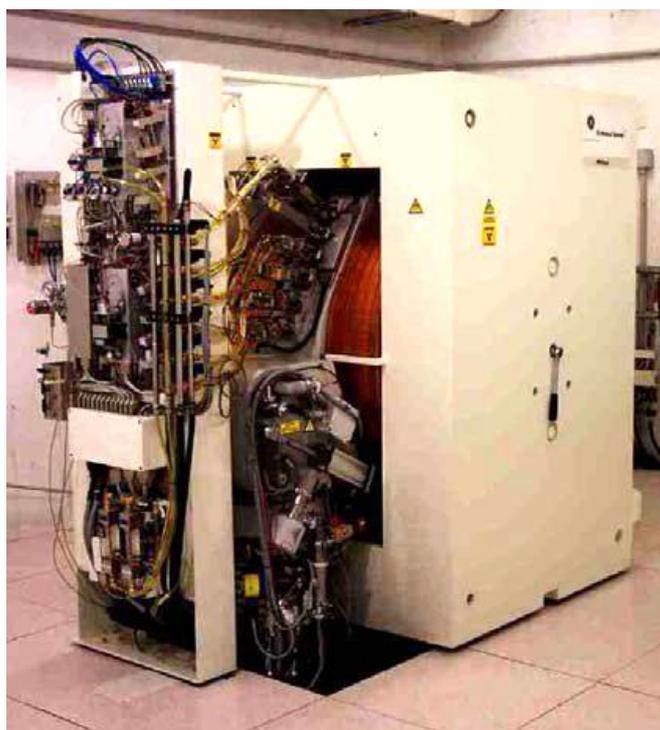


Figura 7: Il ciclotrone GE PETtrace installato presso il Policlinico S.Orsola

In questo ciclotrone ad essere accelerati sono gli ioni negativi che vengono trasformati nei corrispondenti ioni positivi. Questa scelta presenta diversi vantaggi come una minore attivazione delle strutture interne del ciclotrone (con una maggiore accessibilità ad esse per le operazioni di manutenzione) e correnti più elevate del fascio estratto.

Nell'immagine di figura 8 è raffigurato l'interno del ciclotrone *PETtrace*, nel quale è possibile osservare la sorgente di ioni (4), le dees (1), le spire che compongono il magnete (3) e la presenza delle zone *hills* e *valleys* nei poli magnetici (2), tipiche di un ciclotrone isocrono.

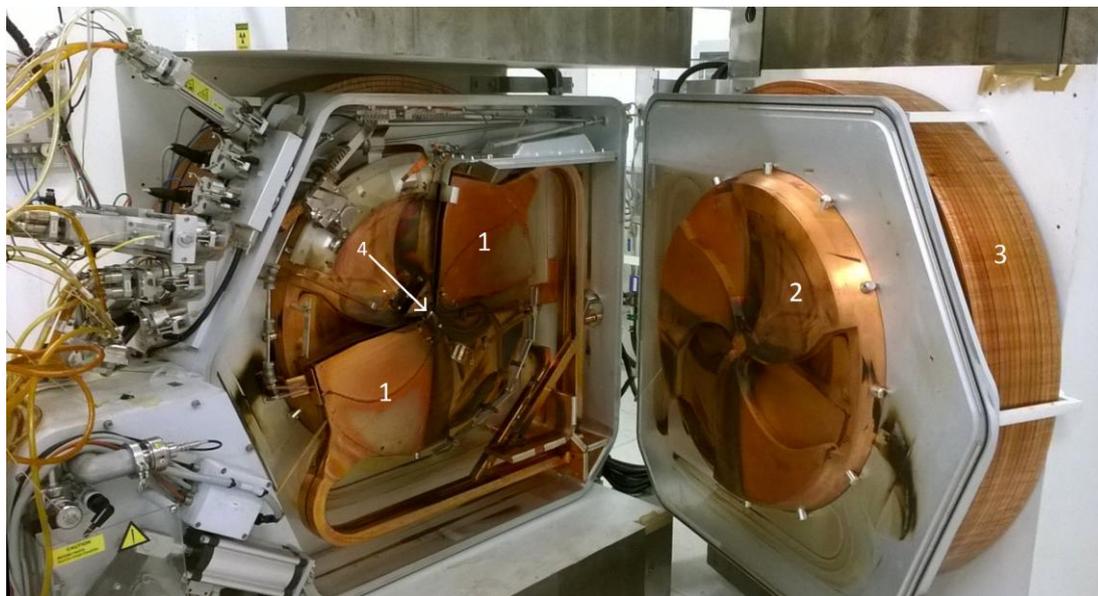


Figura 8: Interno del ciclotrone *PETtrace* installato presso il Policlinico S.Orsola;
 (1) dees collegate alla radiofrequenza; (2) polo magnetico con *hills* e *valleys*; (3) spire del
 magnete; (4) sorgente di ioni

Come in tutti i ciclotroni a ioni negativi, l'estrazione del fascio avviene mediante la tecnica dello *stripping foil*: gli ioni negativi vengono fatti passare attraverso un sottile strato di carbonio (circa $3 \mu m$) che cattura gli elettroni orbitali trasformandoli in ioni positivi. La posizione del foglio di estrazione determina la direzione del fascio esterno e può essere modificata verso differenti target. A questo proposito, il ciclotrone *PETtrace* è dotato di due caroselli, collocati su un binario avente curvatura simile a quella dell'orbita delle particelle in corrispondenza del raggio di estrazione: ciascuno di essi è in grado di indirizzare il fascio in tre delle sei finestre di uscita con un'efficienza di estrazione del 100%.

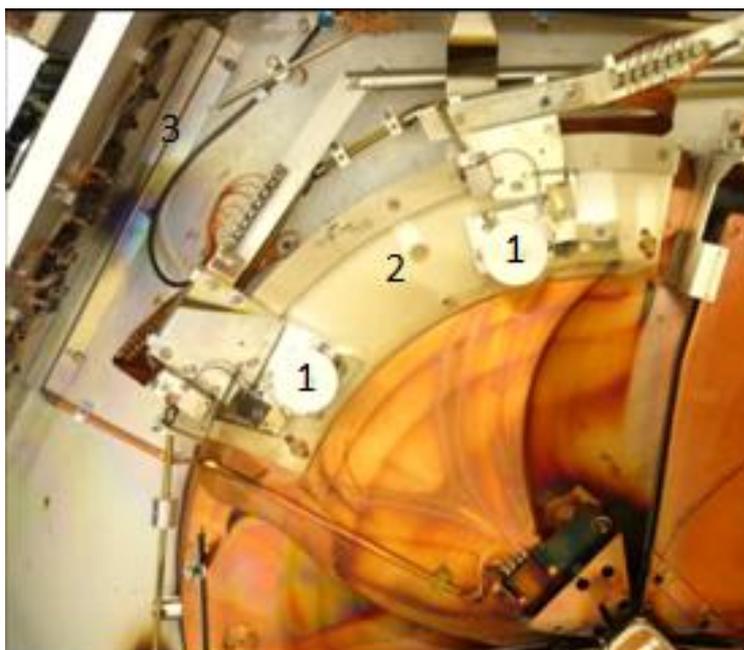


Figura 9: Sistema di estrazione del PETtrace; (1) caroselli con stripping foils; (2) binario scorrevole per la selezione del target; (3) finestre di uscita

Per la produzione di radioisotopi, il materiale bersaglio può essere allo stato liquido, solido o gassoso. Il ciclotrone PETtrace è equipaggiato da cinque differenti tipi di bersaglio per la produzione dei principali radionuclidi di interesse PET (^{11}C , ^{13}N , ^{15}O , ^{18}F) e da un target solido, sviluppato dal gruppo del Servizio di Fisica Sanitaria. Lo sviluppo di tale sistema permette di impiegare il ciclotrone anche per progetti di ricerca finalizzati alla produzione di radionuclidi "non convenzionali" come per esempio: ^{64}Cu , ^{124}I , ^{89}Zr , ^{65}Zn , ^{119}Sb e $^{99\text{m}}\text{Tc}$.

Nell'immagine di figura 10 sono raffigurate le sei differenti finestre di uscita dove vengono alloggiati i target. Per la produzione dei radionuclidi ad uso medico, il target è allo stato liquido o gassoso; un tale bersaglio si compone in genere di una flangia frontale, una flangia di raffreddamento, una camera in cui è installato il bersaglio e una flangia posteriore.



Figura 10: Target montati alle porte di uscita del ciclotrone; partendo dal basso si ha: (1) ^{18}F -target; (2) ^{13}N -target; (3) ^{11}C -target; (4) e (5) porta target vuota; (6) $^{18}\text{F}_2$ -target

1.3.1 Bunker del ciclotrone

Il ciclotrone *PETtrace* è alloggiato in un locale chiamato bunker; tale locale è collocato al piano terra del padiglione 30 del Policlinico S.Orsola-Malpighi (Polo Tecnologico). Il bunker è stato progettato in modo da non avere locali sottostanti e sovrastanti; le pareti che lo costituiscono sono in calcestruzzo dello spessore di due metri in ogni direzione.

L'accesso al locale del bunker è costituito da una porta motorizzata collegata ad un sistema di sicurezza che impedisce l'attivazione del fascio se la porta è aperta e la sua apertura se il fascio è attivo. Inoltre l'apertura è sincronizzata con un sistema di monitoraggio di dose in modo da permettere l'accesso al locale solo quando l'intensità di dose è inferiore ad una soglia prefissata. L'atmosfera del bunker si trova in condizione di depressione rispetto agli ambienti circostanti, in modo da impedire la fuoriuscita di gas radioattivo dal locale. Inoltre, è presente un sistema di ventilazione che garantisce ricambi completi all'interno del bunker con aria pulita.

L'aria aspirata viene filtrata attraverso filtri a carboni attivi prima del rilascio nell'ambiente esterno.

Per questioni di sicurezza, per prevenire l'intrappolamento di un operatore all'interno del locale del ciclotrone, dentro il bunker si trova solo il comando di apertura della porta ma non quello di chiusura che è situato all'esterno della porta di ingresso. Tale comando può essere attivato solo dopo aver premuto una sequenza di tre tasti posti nelle pareti interne del bunker; la sequenza obbliga l'operatore, prima di chiudere la porta di accesso al bunker ad eseguire il cosiddetto "giro di ronda" attorno al ciclotrone. Nel bunker sono presenti inoltre delle telecamere schermate dotate di sensori di movimento collegate alla postazione dei comandi, nella quale sono anche installate segnalazioni luminose e acustiche che avvertono sullo stato funzionale della macchina.

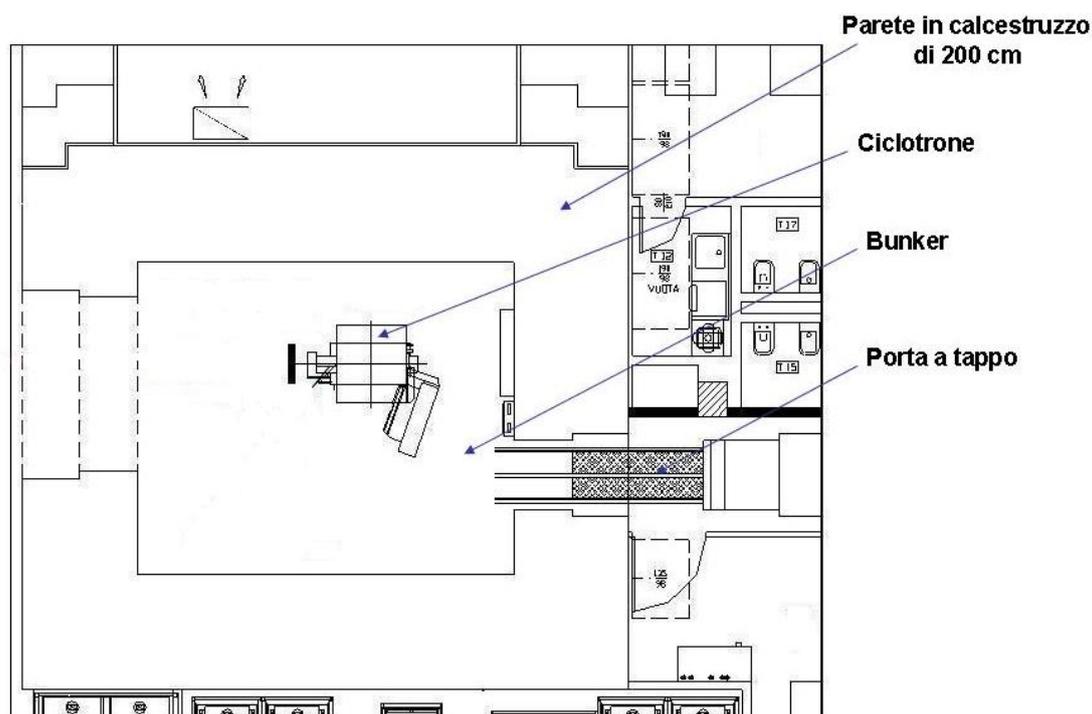


Figura 11: Pianta del bunker del ciclotrone PETtrace

Capitolo 2

Produzione di radionuclidi

2.1 Reazioni nucleari

Una reazione nucleare è un processo in cui una particella (o un nucleo atomico) interagisce con un nucleo bersaglio dando luogo a una serie di fenomeni, comportando talvolta una trasformazione di materia; generalmente una reazione viene espressa attraverso la seguente notazione:

$$A(a,b)B \quad (2.1)$$

dove A è il nucleo bersaglio, a è la particella incidente (proiettile), B è il prodotto della reazione e b la particella emessa (eiettile).

I principali meccanismi di reazione sono di diversi tipi:

- *scattering elastico*: quando la lunghezza d'onda della particella incidente interagisce con quella del nucleo bersaglio, prima che sia effettivamente entrata nel nucleo, si ha una diffusione per diffrazione nucleare. L'effetto di tale processo è una deflessione della particella; in questo caso si ha che $a = b$ e $A = B$.

- *scattering anelastico*: avviene quando la particella incidente, entrando nel nucleo bersaglio, eccita direttamente uno dei nucleoni ad un livello energetico più elevato ma ha energia sufficiente a lasciare il target. Il risultato finale della reazione è la particella incidente che ha perso parte della sua energia iniziale e il nucleo bersaglio eccitato che, in seguito, emette generalmente un fotone per tornare in equilibrio.
- *nucleo composto*: avviene quando la particella incidente, entrando nel nucleo bersaglio, non ha più energia sufficiente per riuscire a lasciarlo, formando così un nucleo composto. L'energia ceduta viene distribuita tra i nucleoni, fino a quando un determinato nucleone ha energia sufficiente per essere liberato. In questo caso $a \neq b$ e $A \neq B$.
- *termalizzazione*: avviene quando un nucleone del nucleo bersaglio viene emesso prima che la particella incidente abbia completamente ceduto la sua energia. Può essere visto come un caso intermedio tra le reazioni di scattering e quelle di nucleo composto.

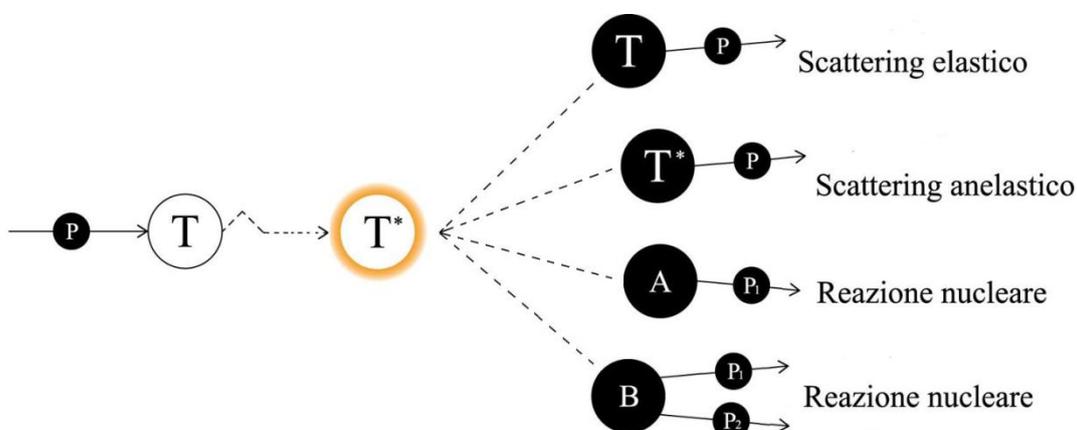


Figura 12: Interazioni di una particella con un nucleo bersaglio

La probabilità che avvenga una delle seguenti reazioni nucleari dipende dal tipo e dall'energia della particella incidente e dal tipo di nucleo bersaglio.

2.1.1 Interazioni dei neutroni

I neutroni sono particelle subatomiche, appartenenti alla famiglia degli adroni, che si differenziano dalle altre particelle per la loro caratteristica di avere carica elettrica neutra. Questo fatto implica una discontinuità delle loro interazioni con la materia, un'elevata penetrazione nei materiali e una difficile schermatura di essi.

Come le particelle cariche, l'interazione dei neutroni con la materia dipende sostanzialmente dall'energia, ed è quindi comune classificare i neutroni in varie categorie in funzione di essa.

Tale classificazione non è univoca (*M. Marengo* [4]); uno dei possibili schemi potrebbe essere:

Energia	Tipo
$E < 1 \text{ keV}$	Neutroni termici
$1 \text{ keV} < E < 100 \text{ keV}$	Neutroni di risonanza
$100 \text{ keV} < E < 10 \text{ MeV}$	Neutroni veloci
$E > 10 \text{ MeV}$	Neutroni relativistici

Tabella 1: Classificazione dei neutroni in funzione dell'energia

I meccanismi di interazione dei neutroni con la materia sono analoghi a quelli sopra citati, con l'aggiunta di un ulteriore processo che prende il nome di fissione:

- *Reazioni di assorbimento:* avvengono quando il neutrone incidente viene catturato dal nucleo bersaglio; si formerà così un nucleo radioattivo che emetterà particelle o fotoni. Si parla di cattura radiativa quando il nucleo composto si diseccita emettendo fotoni γ ; tali reazioni sono indicate anche come (n,γ) . Nel caso in cui il nucleo abbia un'energia di eccitazione elevata può emettere delle particelle; questo tipo di reazioni vengono indicate con la notazione (n,p) , (n,d) o (n,α) .

- *Fissione*: è un particolare tipo di reazione di assorbimento, nella quale il nucleo composto, formato dopo l'assorbimento del neutrone incidente, raggiunge una conformazione energetica tale da frammentarsi in due nuclei più leggeri appartenenti a due specie chimiche differenti ed emettendo anche neutroni secondari.

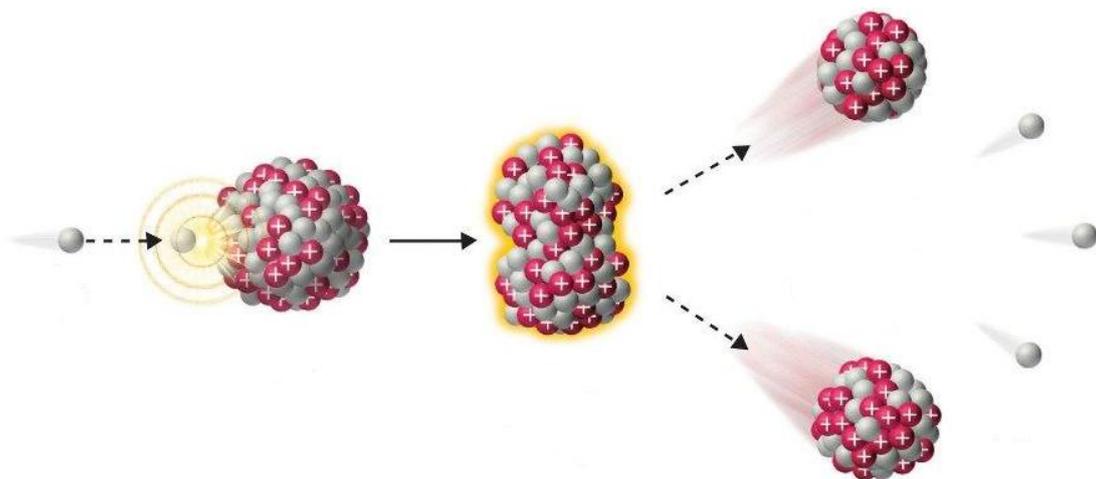


Figura 13: Rappresentazione del meccanismo di fissione nucleare

2.1.1 Produzione di radionuclidi in ambito biomedico

Nell'ambito della produzione di radioisotopi per applicazioni di Medicina Nucleare, le principali reazioni nucleari sono quelle che prevedono l'irraggiamento di determinati bersagli con protoni e deutoni, accelerati tramite ciclotroni con energie massime intorno ai 10 e 20 *MeV*.

Nel caso di irraggiamento con protoni di energia cinetica inferiore a 20 *MeV*, le principali reazioni nucleari che possono avvenire sono:





dove X rappresenta un generico bersaglio con numero atomico Z e numero di massa A mentre Y rappresenta il nucleo prodotto.

Tra le reazioni elencate, la reazione (p, n) è quella più probabile nel range di energia tipico di protoni accelerati mediante ciclotroni per impiego biomedico.

Nel caso in cui l'irraggiamento viene eseguito con deutoni di energia massima intorno ai 10 MeV , le principali reazioni nucleari sono invece:



dove la notazione è la stessa di quella usata precedentemente.

I radionuclidi standard prodotti mediante ciclotrone e utilizzati nelle indagini PET sono: ${}^{11}\text{C}$, ${}^{13}\text{N}$, ${}^{15}\text{O}$, ${}^{18}\text{F}$.

Tali radioisotopi, oltre ad avere un tempo di dimezzamento breve limitando così la dose rilasciata al paziente, hanno il vantaggio di sostituire facilmente delle biomolecole naturali; questa sostituzione non altera in modo significativo la durata e i meccanismi di reazione delle biomolecole a cui sono legati.

Le caratteristiche principali di questi radionuclidi sono espresse in Tabella 2:

Radionuclide	Decadimento	T _{1/2} (min)	Energia max dei β ⁺ (keV)	Energia media dei β ⁺ (keV)
¹¹ C	EC,β ⁺	20.4	960	386
¹³ N	EC,β ⁺	9.98	1190	492
¹⁵ O	EC,β ⁺	2.03	1700	735
¹⁸ F	EC,β ⁺	109.8	690	250

Tabella 2: Caratteristiche dei principali radionuclidi PET

Essi sono prodotti irraggiando target liquidi o gassosi con particelle accelerate da un ciclotrone ad uso biomedico, sfruttando determinate reazioni nucleari che avvengono tra particella incidente e target.

- Il ¹¹C viene prodotto irraggiando un bersaglio gassoso di N₂ contenente l'1% di O₂, sfruttando la reazione nucleare:



- La produzione di ¹³N si ottiene con l'irraggiamento di un bersaglio liquido di H₂¹⁶O, sfruttando principalmente la reazione nucleare:



- Il radioisotopo ¹⁵O viene prodotto generalmente irraggiando con deutoni un bersaglio gassoso di Azoto tramite la reazione seguente:



- Il ^{18}F è il radionuclide più utilizzato per indagini PET perchè impiegato per la produzione della molecola radiofarmaceutica $^{18}\text{F-FDG}$; viene prodotto irraggiando un bersaglio liquido di H_2^{18}O in base alla reazione nucleare:



2.1.2 Il Q -valore di una reazione

Considerando una reazione nucleare generica del tipo:



è possibile calcolare il bilancio energetico tramite l'uguaglianza:

$$m_A c^2 + T_A + m_a c^2 + T_a = m_B c^2 + T_B + m_b c^2 + T_b \quad (2.14)$$

dove T è l'energia cinetica e m è la massa delle particelle.

Riscrivendo l'equazione 2.14 come:

$$(m_A + m_a - m_B - m_b) c^2 = T_B + T_b - T_A - T_a \quad (2.15)$$

è possibile definire il Q -valore come:

$$Q = (m_A + m_a - m_B - m_b) c^2 = T_B + T_b - T_A - T_a \quad (2.16)$$

Considerando, invece, l'energia di legame (*Binding Energy*, BE) e le masse a riposo degli elementi coinvolti nella reazione, si ha:

$$Q = BE(B) + BE(b) - BE(A) - BE(a) \quad (2.17)$$

Se il valore di Q è positivo, la reazione è detta *esotermica*, ovvero si ha un rilascio di energia poichè l'energia cinetica finale risulta più grande di quella iniziale; in questo caso la reazione è possibile per qualsiasi valore di energia cinetica della particella incidente.

Se il valore di Q è negativo, la reazione è detta *endotermica*, ovvero richiede un assorbimento di energia poichè l'energia cinetica finale è più piccola di quella iniziale; in questo caso, la reazione è possibile solo se l'energia cinetica della particella incidente sia superiore ad una certa soglia. Considerando le leggi di conservazione dell'energia e della quantità di moto, è possibile ricavare il valore dell'energia di soglia tramite la relazione:

$$E_{sog} = \frac{m_a + m_A}{m_A} \cdot |Q| \quad (2.18)$$

Da questa relazione è evidente che l'energia di soglia tende al Q -valore nel caso in cui si utilizzino particelle leggere su nuclei bersaglio massivi, ovvero:

$$E_{sog} \rightarrow |Q| \quad \text{se} \quad m_a \ll m_A \quad (2.19)$$

In generale è possibile stimare il Q -valore di alcune reazioni nucleari utilizzando i dati riportati in Tabella 3; per esempio considerando la seguente reazione tipica per la produzione di ^{18}F utilizzato per indagini PET



Utilizzando l'equazione 2.17 si ottiene:

$$Q = (137369.2 + 0.0 - 139807.0 - 0.0)keV$$

$$Q = -2437.8 keV \quad (2.21)$$

La reazione è quindi *endotermica* e, perchè avvenga, è necessario che le particelle incidenti abbiano un'energia cinetica uguale o superiore all'energia di soglia:

$$E_{sog} = \frac{(1.008 + 17.999)uma}{(17.999)uma} \cdot |-2437.8| = 2574.4 keV \quad (2.22)$$

dove le masse sono espresse in unità di massa atomica (*uma*).

Oppure prendendo la reazione:



Il *Q-valore* della reazione è pari a:

$$Q = (349909.14 + 0.0 - 343810.44 - 0.0)keV$$

$$Q = 6098.7 keV \quad (2.24)$$

In questo caso il valore positivo indica che la reazione è *esotermica* e quindi può avvenire per qualsiasi valore di energia cinetica posseduta dalle particelle incidenti.

N	Z	A	Elemento	Energia di Legame (keV)	Massa Atomica (u.m.a.)
1	0	1	<i>n</i>	0	1.008665
0	1	1	<i>H</i>	0	1.007825
1	1	2	<i>H</i>	2224.573	2.014102
2	1	3	<i>H</i>	8481.821	3.016049
1	2	3	<i>He</i>	7718.058	3.016029
3	1	4	<i>H</i>	5575.154	4.027835
2	2	4	<i>He</i>	28295.670	4.002603
5	6	11	<i>C</i>	73439.9	11.01143
7	7	14	<i>N</i>	104658.6	14.00307
8	7	15	<i>N</i>	115491.9	15.00011
7	8	15	<i>O</i>	111955.6	15.00307
9	7	16	<i>N</i>	117981.3	16.0061
8	8	16	<i>O</i>	127619.3	15.99491
9	8	17	<i>O</i>	131762.7	16.99913
10	8	18	<i>O</i>	139807	17.99916
9	9	18	<i>F</i>	137369.2	18.00094
10	10	20	<i>Ne</i>	160644.9	19.99244
18	17	35	<i>Cl</i>	298209.803	34.96885
19	17	36	<i>Cl</i>	306789.499	35.968306
20	17	37	<i>Cl</i>	317100.455	36.965902
21	17	38	<i>Cl</i>	323208.235	37.968010
22	17	39	<i>Cl</i>	331282.234	38.9680082
18	18	36	<i>Ar</i>	306715.699	35.967545
20	18	38	<i>Ar</i>	327342.669	37.962732
21	18	39	<i>Ar</i>	333941.065	38.9643130
22	18	40	<i>Ar</i>	343810.441	39.962383
23	18	41	<i>Ar</i>	349909.135	40.964500
24	18	42	<i>Ar</i>	359335.261	41.9630457
31	27	58	<i>Co</i>	506854.6	57.93575
30	28	58	<i>Ni</i>	506453.8	57.93534
29	29	58	<i>Cu</i>	497108.4	57.94454
32	27	59	<i>Co</i>	517308.1	58.93320
31	28	59	<i>Ni</i>	515453.3	58.93435
30	29	59	<i>Cu</i>	509871.3	58.93950
33	27	60	<i>Co</i>	524800	59.93382
32	28	60	<i>Ni</i>	526841.6	59.93079
31	29	60	<i>Cu</i>	519932.3	59.93736
34	27	61	<i>Co</i>	534122.2	60.93247
33	28	61	<i>Ni</i>	534661.6	60.93106
32	29	61	<i>Cu</i>	531642	60.93346
35	27	62	<i>Co</i>	540727	61.93405
34	28	62	<i>Ni</i>	545258.8	61.92834
33	29	62	<i>Cu</i>	540528	61.60932

Tabella 3: Masse atomiche ed energia di legame per alcune particelle e nuclei leggeri

(Fonte: Nuclear Energy Agency NEA [5])

2.2 Concetto di sezione d'urto

Ogni reazione nucleare si può scomporre principalmente in due fasi distinte: la prima corrisponde alla formazione del nucleo composto, mentre la seconda alla trasformazione nel nucleo prodotto con conseguente emissione di una o più particelle o di fotoni. Per un determinato tipo di particella incidente e per un determinato nucleo bersaglio, le reazioni possibili sono molteplici e quindi è necessario definire una grandezza che possa descrivere sia la probabilità di riuscita di una determinata reazione che la probabilità di un tipo di diseccitazione del nucleo composto.

Tale grandezza prende il nome di sezione d'urto di una reazione nucleare ed è definita come il prodotto delle sezioni d'urto dei due processi di una reazione, essendo indipendenti. In formule:

$$\sigma = \sigma_c \cdot \sigma_i = \sigma_c \frac{\Gamma_i}{\sum_i \Gamma_i} \quad (2.25)$$

dove:

- σ_c rappresenta la sezione d'urto di formazione del nucleo composto.
- Γ_i rappresenta la probabilità di emissione di una determinata particella.

La sezione d'urto di formazione del nucleo composto σ_c è strettamente correlata alle dimensioni del nucleo bersaglio; infatti, con una buona approssimazione, il nucleo bersaglio può essere considerato come una sfera di raggio R uguale a:

$$R \cong r_0 A^{1/3} \quad \text{dove} \quad r_0 = 1.2 \cdot 10^{-13} \text{ cm} \quad (2.26)$$

dove A è il numero di massa del nucleo.

Tale relazione permette di ricavare una stima della sezione d'urto trasversa per una particella incidente:

$$\sigma_r = \pi R^2 \quad (2.27)$$

In generale l'interazione delle particelle con i nuclei atomici non può essere considerata solo come una semplice collisione tra corpi macroscopici, ma occorre tenere conto anche dei processi nucleari e dell'attrazione elettrostatica. Una formulazione più completa per la stima della sezione d'urto di formazione del nucleo composto, è data da:

$$\sigma_C = k\pi \cdot (R + \lambda_p)^2 \cdot \left(1 - \frac{V}{E_p}\right) \quad (2.28)$$

dove:

- k è una costante che tiene conto del fenomeno di diffrazione nucleare.
- λ_p è la lunghezza d'onda della particella incidente; questa grandezza viene aggiunta al raggio del nucleo bersaglio in modo da considerare la dimensione della particella nell'interazione.
- Il termine $\left(1 - \frac{V}{E_p}\right)$ costituisce una correzione per tenere conto dell'interazione di una particella carica con il nucleo; la particella incidente, per poter entrare nel nucleo, deve avere un'energia E_p superiore alla barriera repulsiva coulombiana V .

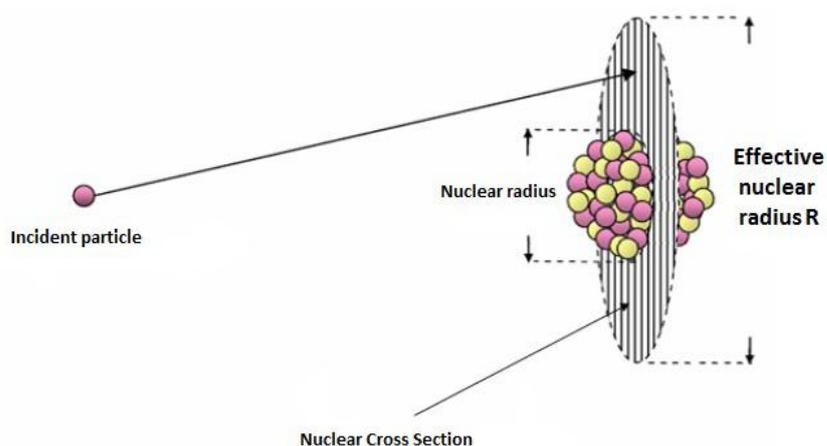


Figura 14: Rappresentazione schematica del concetto di sezione d'urto

L'unità di misura della sezione d'urto è espressa in unità di area poichè rappresenta essenzialmente la superficie equivalente che i nuclei bersaglio offrono alle particelle incidenti.

Tipicamente come unità di misura vengono utilizzati i cm^2 , ma per questioni pratiche è stata introdotta una nuova unità di misura specifica, chiamata *barn*:

$$1 \text{ barn} = 1 \cdot 10^{-24} cm^2 \quad (2.29)$$

sono spesso utilizzati anche suoi sottomultipli, come il *millibarn* ($1 \text{ mb} = 10^{-27} cm^2$).

La sezione d'urto è utilizzata quindi per caratterizzare la probabilità di una determinata reazione nucleare; essa dipende dall'energia della particella incidente e dal tipo di nucleo bersaglio. In genere una stima teorica della sezione d'urto risente dei limiti di conoscenza della struttura nucleare e quindi non sempre garantisce una precisa accuratezza per scopi pratici; pertanto è consuetudine fare riferimento a valori ottenuti in maniera sperimentale. Le sezioni d'urto per le principali reazioni di interesse biomedico possono essere trovate tabulate in vari riferimenti bibliografici; un'importante raccolta di questo tipo di dati è stata pubblicata dalla *IAEA* (*International Atomic Energy Agency*, [13]). In questa raccolta, per esempio, è possibile trovare i valori relativi di sezione d'urto per la reazione:



Tali dati sono derivati da un'accurata analisi di differenti risultati sperimentali e quindi certificati.

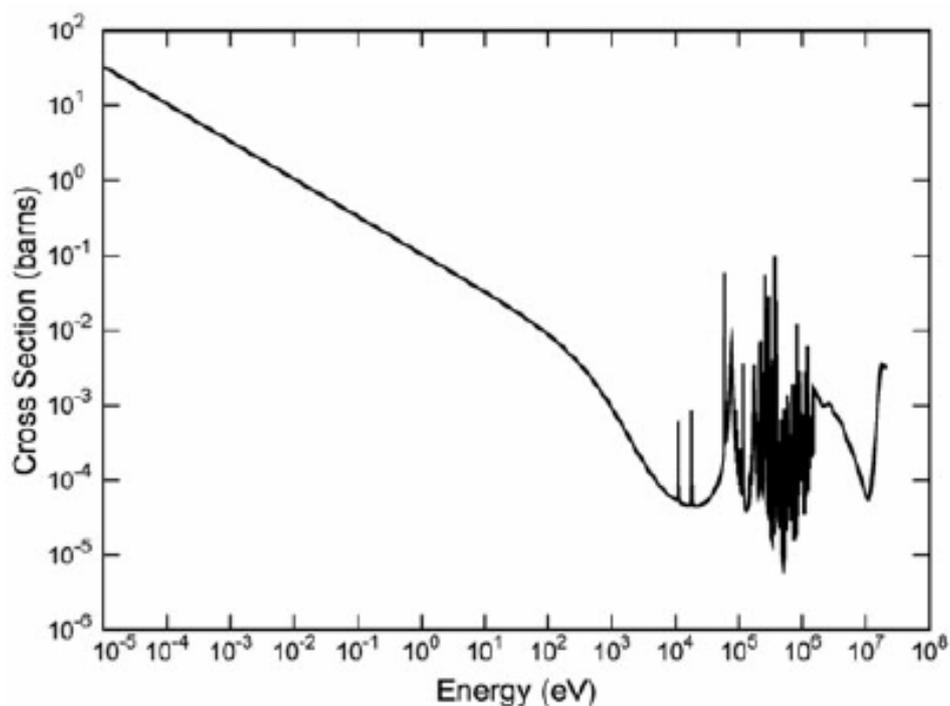
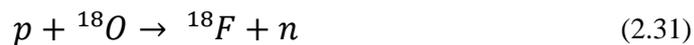


Figura 15: Grafico della sezione d'urto per la reazione $^{40}\text{Ar}(n,\gamma)^{41}\text{Ar}$ (IAEA [6])

2.3 Attivazione neutronica secondaria

Il processo di attivazione neutronica consiste, principalmente, nell'induzione di radioattività in materiali sottoposti a un flusso di neutroni, i quali vengono catturati dai nuclei atomici che costituiscono il materiale bersaglio; tali nuclei passano in uno stato eccitato e successivamente decadono emettendo particelle come protoni, neutroni o particelle α . Per esempio si prenda in considerazione la tipica reazione che viene sfruttata in ambito di Medicina Nucleare per la produzione del radionuclide ^{18}F :



Nella reazione 2.31, oltre alla produzione di ^{18}F , vengono emessi anche neutroni; tali particelle possono attivare qualsiasi sostanza vicina rendendola radioattiva e potenzialmente pericolosa.

In generale il processo di attivazione neutronica di un materiale consiste nella produzione di uno o più tipi di radionuclidi. Se un determinato radionuclide viene prodotto tramite attivazione neutronica e allo stesso tempo sta decadendo secondo la sua costante di decadimento, allora il numero di atomi radioattivi presenti nel campione ad un istante di tempo t sarà uguale alla differenza tra il rate di produzione e il rate di decadimento. Matematicamente il processo può essere scritto come:

$$\frac{dN(t)}{dt} = \Phi\sigma n - \lambda N(t) \quad (2.32)$$

dove:

- Φ flusso di neutroni (*neutroni/cm²·s*);
- σ è la sezione d'urto dei neutroni (*cm²*);
- n rappresenta il numero di atomi bersaglio (approssimazione: costante durante l'irraggiamento);
- λ è la costante di decadimento di un determinato tipo di radionuclide (*min⁻¹*);
- $N(t)$ è il numero di atomi radioattivi all'istante t .

L'equazione 2.32 è un'equazione differenziale lineare e può essere risolta integrando per parti:

$$\int \frac{dN(t)}{\Phi\sigma n - \lambda N(t)} = \int dt \quad (2.33)$$

Dunque la soluzione dell'equazione 2.33 risulta essere:

$$N(t) = \frac{\Phi\sigma n}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (2.34)$$

Definendo l'attività come il numero di decadimenti per unità di tempo, è possibile scrivere l'eq. 2.34 in termini di attività tramite la relazione:

$$A(t) = \lambda N(t) = \Phi\sigma n (1 - e^{-\lambda t}) \quad (2.35)$$

Se il tempo di irraggiamento è molto lungo rispetto al tempo di dimezzamento del radionuclide in questione, si raggiungerà la cosiddetta condizione di saturazione, ovvero:

$$A(t \gg T_{1/2}) = A_{sat} = \Phi\sigma n \quad (2.36)$$

In condizione di saturazione, il termine di produzione e quello di decadimento dell'equazione 2.32 sono in equilibrio; questo vuol dire che il numero di nuclei radioattivi prodotti è uguale a quello dei nuclei radioattivi che decadono.

In genere, per questioni pratiche, l'attività a saturazione è espressa tramite una grandezza chiamata *saturation yield*, definita come:

$$Y_{sat} = \frac{A_{sat}}{I} \quad (2.37)$$

dove I è la corrente del fascio.

L'unità di misura di questa grandezza è espressa in Bq/A o più frequentemente vengono utilizzati il $GBq/\mu A$ e il $mCi/\mu A$.

Quindi è possibile esprimere l'attività prodotta ad un determinato istante di tempo t tramite la relazione:

$$A(t) = Y_{sat} \cdot I \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \quad (2.38)$$

Tutte le caratteristiche della produzione sono racchiuse all'interno del termine di *saturation yield* (sezione d'urto della reazione, caratteristiche del materiale irraggiato ed energia delle particelle incidenti), mentre il tempo di irraggiamento e la corrente del fascio incidente sono espresse direttamente nell'equazione.

L'andamento tipico di questo processo è rappresentato nel grafico di figura 16, in cui viene rappresentata l'attività prodotta normalizzata per l'attività di saturazione in funzione del tempo di irraggiamento.

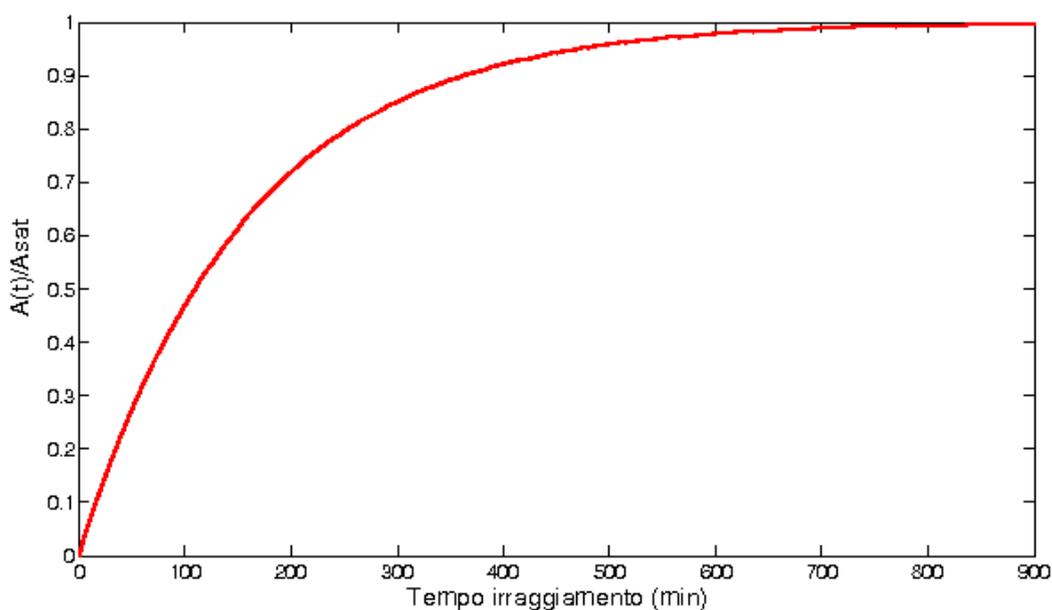


Figura 16: Andamento dell'attività relativa di un generico radionuclide in funzione del tempo di irraggiamento

Capitolo 3

Attivazione neutronica dell'aria intorno a un ciclotrone per uso biomedico

Nei processi di produzione di radionuclidi mediante ciclotrone, la possibilità di attivazione dell'aria durante l'irraggiamento e di rilascio nell'ambiente esterno è una delle problematiche di interesse per la corretta radioprotezione di un impianto.

E' necessario eseguire una stima preventiva dei diversi fattori di rischio, tra cui in particolare l'eventuale rilascio di contaminanti radioattivi nell'ambiente; ciò è richiesto nell'ambito del processo per l'ottenimento delle necessarie autorizzazioni.

In fase di esercizio, durante la normale routine, sono inoltre necessari controlli periodici per soddisfare i requisiti della Normativa vigente (Dlgs 230/1995); per i radionuclidi a breve tempo di dimezzamento, tali requisiti prevedono un valore di soglia per la "non rilevanza radiologica" a un livello di concentrazione di radioattività di 1 *Bq/g*.

Le misure di sorveglianza periodica sono necessarie per garantire la sicurezza sia degli ambienti di lavoro per gli operatori sanitari che per la popolazione locale e l'ambiente circostante.

In particolare, l'aria presente intorno ad un ciclotrone diventa radioattiva nel momento in cui le particelle secondarie, emesse durante la produzione di determinati radionuclidi (p.e. ^{11}C e ^{18}F), interagiscono con essa attraverso reazioni nucleari.

In questo capitolo verranno affrontati argomenti relativi all'attivazione dell'aria presente nel bunker di un ciclotrone per effetto dei neutroni. Tale meccanismo viene descritto, in una prima parte, dal punto di vista teorico attraverso la costruzione di un modello che servirà per valutare l'attività a saturazione per alcuni radionuclidi prodotti in aria. Successivamente, verrà posta l'attenzione sui neutroni secondari emessi da un ciclotrone (facendo riferimento al *GE PETtrace*) e le possibili reazioni nucleari che possono avvenire tra essi e gli atomi dell'aria.

3.1 Modello teorico

Il modello che descrive l'attivazione neutronica dell'aria all'interno di un bunker di un ciclotrone in una situazione operativa realistica, presenta delle differenze rispetto a quello descritto nel capitolo precedente; infatti, per stimare l'attivazione dell'aria, occorre considerare anche il ruolo del sistema di ventilazione del locale di installazione (*Birattari* [3]). Infatti, in una situazione realistica, non si ha praticamente mai l'installazione di un acceleratore in locali isolati ed ermeticamente sigillati; ciò per un insieme di aspetti, sia dal punto di vista del controllo delle condizioni termigrometriche, sia per aspetti convenzionali di salubrità ed igienicità degli ambienti.

Occorre quindi valutare il processo di diluizione dell'aria radioattiva con aria pulita, svolto dal sistema di condizionamento, attraverso l'introduzione di una grandezza, definita come il numero di ricambi d'aria per unità di tempo:

$$m = \frac{\text{ricambi d'aria (unità di volume)}}{\text{unità di tempo (h)}} \quad (3.1)$$

Tale definizione è relativa al modello fisico utilizzato in questo lavoro; nella normativa tecnica sugli impianti di ventilazione e condizionamento si possono trovare definizioni operative leggermente differenti.

Tenendo in considerazione la diluizione dell'aria all'interno del bunker tramite il sistema di ventilazione, è necessaria una modifica del modello di attivazione neutronica descritta dall'equazione 2.32. Matematicamente:

$$\frac{dN(t)}{dt} = \Phi\sigma n - \lambda N(t) - mN(t) \quad (3.2)$$

dove:

- Φ è il flusso di neutroni (*neutroni/cm²·s*);
- σ è la sezione d'urto di reazione dei neutroni (*cm²*);
- n rappresenta il numero di atomi bersaglio (approssimazione: costante durante l'irraggiamento);
- λ è la costante di decadimento di un determinato tipo di radionuclide (*min⁻¹*);
- $N(t)$ è il numero di atomi radioattivi all'istante t ;
- m sono i ricambi d'aria per unità di tempo nel locale;

Nell'equazione 3.2, oltre ad aver considerato i termini classici di produzione e decadimento, è stato introdotto un nuovo termine che descrive la diminuzione dei nuclei radioattivi all'interno del locale dovuta all'introduzione di volumi d'aria pulita da parte del sistema di ventilazione.

Riscrivendo la formula come:

$$\frac{dN(t)}{dt} = \Phi\sigma n - (\lambda + m)N(t) \quad (3.3)$$

La soluzione dell'equazione è del tipo:

$$N(t) = Ae^{-(\lambda+m)t} + B \quad (3.4)$$

Prendendo come condizione iniziale $N(0) = 0$, la soluzione generale diventa:

$$N(t) = \frac{\Phi\sigma n}{(\lambda + m)} \cdot [1 - e^{-(\lambda+m)t}] \quad (3.5)$$

L'equazione 3.5 può essere scritta in termini di attività tramite la relazione:

$$A(t) = \lambda \cdot N(t) = \lambda \cdot \frac{\Phi\sigma n}{(\lambda + m)} \cdot [1 - e^{-(\lambda+m)t}] \quad (3.6)$$

Le modifiche sul modello per la presenza di un sistema di ventilazione, sono state eseguite introducendo un'effettiva costante di decadimento λ' , che tiene conto sia del processo fisico di decadimento sia della ventilazione:

$$\lambda' = \lambda + m \quad (3.7)$$

In questo caso, l'attività a saturazione con ventilazione, diventa:

$$A'_{sat} = \frac{\lambda \cdot A_{sat}}{(\lambda + m)} \quad (3.8)$$

3.2 Sorgente di neutroni

All'interno di un bunker di un ciclotrone per impiego biomedico, la principale sorgente di attivazione dell'aria è data dall'emissione di flussi di neutroni secondari durante i tipici processi di produzione di radionuclidi.

In particolare, con il ciclotrone *GE PETtrace* l'attivazione dell'aria è dovuta essenzialmente ai neutroni prodotti durante l'irraggiamento di acqua arricchita ($H_2^{18}O$) con protoni da 16.5 MeV. Presso l'Ospedale Sant'Orsola il protocollo di lavoro tipico prevede irraggiamenti a un corrente di fascio di 60 μA , con una frequenza giornaliera dalle ore 06:00 fino alle ore 08:00 circa.

I neutroni veloci prodotti nelle reazioni nucleari dai protoni del fascio, interagiscono con gli atomi dell'aria nel percorso tra target e parete del bunker; nel materiale a basso numero atomico medio (calcestruzzo) delle pareti del bunker, i neutroni vengono gradualmente termalizzati; i neutroni termici diffondono nuovamente all'interno del volume d'aria del bunker e possono ulteriormente dare luogo a reazioni nucleari. L'identificazione dei probabili processi nucleari che possono avvenire tra neutroni e atomi dell'aria è possibile solo se si ha a disposizione il loro spettro energetico.

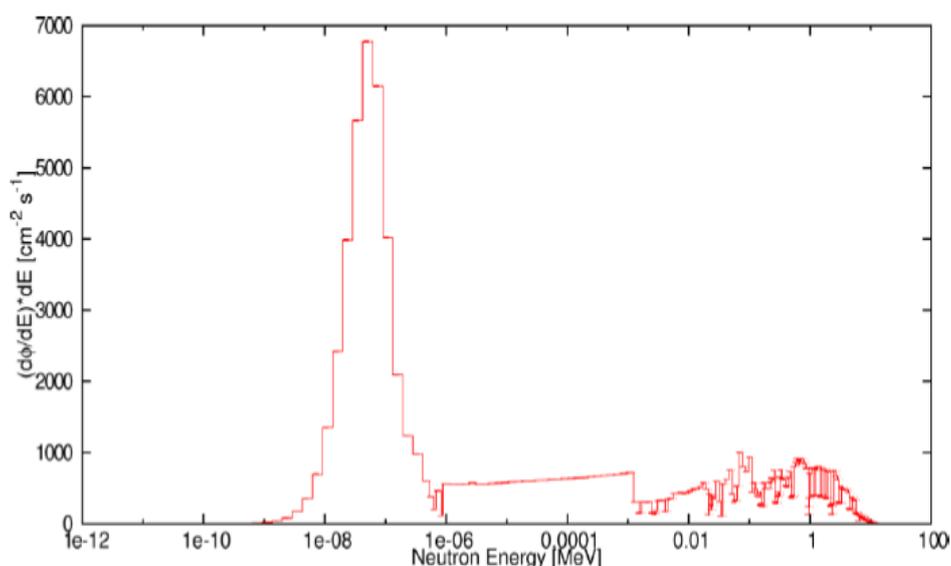


Figura 17: Spettro energetico dei neutroni all'interno del bunker del ciclotrone *GE PETtrace*
(A. Infantino [7],[8])

Negli ultimi anni sono stati eseguiti diversi studi, principalmente tramite simulazioni Monte Carlo, per ottenere lo spettro energetico dei neutroni all'interno del bunker, emessi durante la produzione di ^{18}F . Alcuni dei risultati ottenuti sono raffigurati in figura 17 (A. Infantino [7],[8]).

I risultati di questi studi mostrano come i neutroni siano emessi con un picco di energia intorno a 1-2 MeV e in seguito, propagandosi all'interno del bunker e interagendo con le pareti, perdano la loro energia fino a raggiungere valori termici intorno a 10^{-7} MeV.

3.3 Sistema di ventilazione

Il sistema di ventilazione è una componente fondamentale dell'impiantistica dei locali di un Laboratorio di Radiofarmacia PET con ciclotrone: esso deve garantire adeguate condizioni di sicurezza sia per il personale, sia per le apparecchiature installate e sia per gli ambienti esterni. Secondo le normative di legge, nei locali in cui sono presenti sorgenti radioattive non sigillate è necessario realizzare un sistema di depressione crescente (maggiore nei locali con più alto rischio) in modo da confinare una possibile contaminazione. Il meccanismo del sistema di ventilazione si basa sulla regolazione di flussi d'aria verso l'interno e verso l'esterno dei locali attraverso apparecchiature che garantiscono l'entrata (*Mandata*) o l'uscita (*Ripresa*) di determinati volumi d'aria in un certo tempo. In genere, i livelli di ricambi d'aria dipendono dal tipo di locale: 2-5 ricambi/ora per quelli a basso rischio; 5-20 ricambi/ora per i locali con rischio più elevato. Inoltre l'aria, prima dell'immissione nell'ambiente esterno, deve essere filtrata attraverso dei filtri ad elevata efficienza; solitamente vengono impiegati filtri *HEPA* (*High Efficiency Particulate Air filter*) per il trattenimento di particolati ed eventualmente filtri ai carboni attivi per l'intrappolamento di gas.

Ai fini di questo lavoro, è bene considerare il sistema di ventilazione dell'aria all'interno del locale bunker del ciclotrone *GE PETtrace* dell'Ospedale Sant'Orsola per avere una stima del fattore di diluizione m utilizzato nel modello teorico, precedentemente descritto, per il calcolo dell'attività dell'aria prodotta dai neutroni

secondari. Il sistema di mandata dell'aria all'interno del bunker è impostato ad una portata d'aria in ingresso di $1200 \text{ m}^3/\text{h}$; il condotto di estrazione è collegato anche al vano tecnico posteriore alle celle schermate nel Laboratorio in cui si esegue la sintesi dei radiofarmaci. Per garantire opportuni valori di depressione nei locali, il sistema di ripresa dell'aria nel camino è impostato ad un valore di portata di estrazione di $2390 \text{ m}^3/\text{h}$ (figura 18); di questi una parte sono estratti dal bunker, un'altra sono estratti dal vano retro celle ed i restanti derivano dall'aria prelevata da perdite nel circuito di aspirazione.

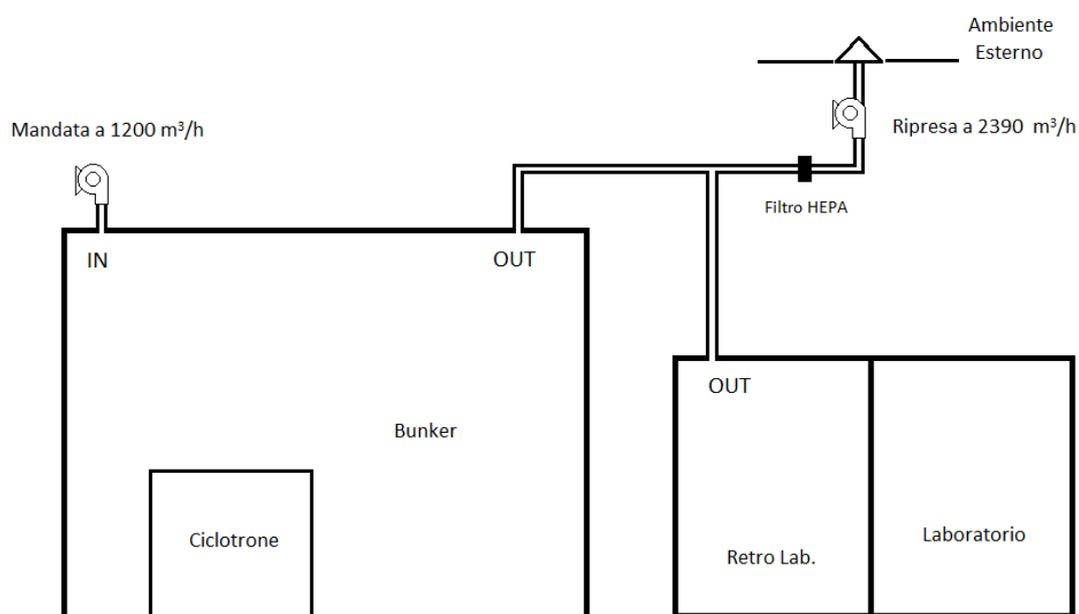


Figura 18: Rappresentazione schematica del sistema di mandata e ripresa dell'aria all'interno del bunker

Il volume del bunker e del ciclotrone è:

BUNKER	CICLOTRONE
$V = (105.0 \pm 0.5) \text{ m}^3$	$V = (3.00 \pm 0.1) \text{ m}^3$

Tabella 4: Volume del bunker e del ciclotrone GE PETtrace

3.3 Possibili reazioni di attivazione neutronica dell'aria

L'aria dell'atmosfera terrestre, a livello del suolo, è costituita principalmente da una miscela di gas composta per il 78% di azoto (N_2), per il 21% di ossigeno (O_2), per il 0.934% di argon (Ar) e per il 0.066% di anidride carbonica (CO_2) (i valori percentuali sono espressi in frazione molare, [9]).

Le modalità con cui i neutroni interagiscono con questi elementi sono molteplici, ma per effettuare una valutazione di attività indotta nell'aria è possibile considerare le reazioni riportate in tabella anche in riferimento all'articolo di Birattari [3].

Elemento	Tipo di reazione	Q-valore
^{14}N	$^{14}N(n,2n)^{13}N$	- 10.55 MeV
^{16}O	$^{16}O(n,2n)^{15}O$	- 15.66 MeV
^{16}O	$^{16}O(n,p)^{16}N$	- 9.64 MeV
^{40}Ar	$^{40}Ar(n,\alpha)^{37}S$	- 2.49 MeV
^{40}Ar	$^{40}Ar(n,p)^{40}Cl$	- 6.71 MeV
^{40}Ar	$^{40}Ar(n,\gamma)^{41}Ar$	+ 6.10 MeV

Tabella 5: Possibili reazioni di attivazione neutronica in aria

Queste reazioni mostrano tutte un *Q-valore* negativo e quindi per avvenire l'energia del neutrone incidente deve essere tale da superare quella di soglia; l'unica reazione esotermica, ovvero senza soglia, è quella in cui il neutrone viene catturato dall' ^{40}Ar con la conseguente produzione di ^{41}Ar .

Considerando gli spettri energetici dei neutroni emessi durante la produzione di ^{18}F attraverso il ciclotrone *GE PETtrace*, l'unica reazione che ha una probabilità significativa è proprio quella esotermica poichè i neutroni secondari vengono emessi

con una energia media intorno a 1-2 MeV (spettro neutroni figura 17); la frazione di neutroni con energia superiore a 3 MeV è molto ridotta e quindi la probabilità di osservare la produzione dei radionuclidi con Q -valore negativo è praticamente trascurabile. In linea di principio è quindi ragionevole aspettarci che la produzione di ^{41}Ar sia l'unico processo significativo di attivazione dell'aria nel locale bunker del Sant'Orsola, che avviene secondo la reazione nucleare:



Capitolo 4

Rivelatori a semiconduttore e Spettrometria γ

4.1 Spettrometria Gamma

La spettrometria gamma è una tecnica di analisi che consente di determinare la distribuzione energetica di fotoni γ emessi dai radionuclidi; essa permette quindi l'analisi qualitativa dei radionuclidi presenti in un campione. Inoltre, tramite la taratura in efficienza del sistema di misura, è possibile eseguire anche l'analisi quantitativa determinando l'attività dei radionuclidi identificati nel campione analizzato.

Uno spettrometro gamma è costituito generalmente da:

- Sistema di rivelazione: il rivelatore (detector) e la schermatura;
- Unità di alta tensione per il rivelatore;
- Sistema di analisi degli impulsi: preamplificatore, amplificatore e convertitore analogico-digitale (ADC).
- Sistema di registrazione, visualizzazione e analisi dei dati.

Il funzionamento si basa sulla interazione della radiazione incidente con il volume sensibile del rivelatore attraverso le modalità tipiche di interazione tra fotone e materia (effetto Fotoelettrico, effetto Compton, produzione di coppie e scattering coerente). Gli impulsi elettrici in uscita dal rivelatore, creati in maniera differente in funzione del tipo di rivelatore utilizzato, vengono amplificati e adattati per la successiva analisi, mantenendo la proporzionalità tra ampiezza del segnale ed energia ceduta dal fotone al rivelatore. Gli impulsi amplificati sono inviati ad un convertitore Analogico-Digitale (ADC) a cui è associato un Analizzatore Multicanale (MCA). L'ADC classifica i segnali in predeterminati intervalli di ampiezza, convertendo ogni segnale in un numero proporzionale, corrispondente al canale del MCA in cui verrà memorizzato il conteggio. I dati memorizzati in ogni canale vengono trasmessi ad un computer e analizzati attraverso software dedicati.

4.1.1 Struttura di uno spettro gamma

La forma di un generico spettro gamma dipende dalle modalità con cui la radiazione incidente interagisce con il rivelatore:

- **Fotopico o Picco di assorbimento totale:** avviene quando la radiazione incidente cede tutta la sua energia al rivelatore tramite un singolo processo fotoelettrico oppure tramite interazioni multiple. La distribuzione che si dovrebbe ottenere è una funzione delta centrata in corrispondenza del valore energetico della radiazione; quello che in realtà si ottiene, a causa della natura stocastica dei processi, è una distribuzione gaussiana centrata sul valore di energia del fotone gamma.
- **Distribuzione Continuo Compton:** è rappresentata da una parte dello spettro che corrisponde ad un trasferimento parziale di energia dei fotoni gamma al rivelatore tramite processi singoli o multipli di diffusione Compton. La distribuzione Compton di uno spettro è caratterizzata da un massimo che corrisponde ai processi di interazione in cui fotoni gamma vengono retrodiffusi con angolo di 180° .

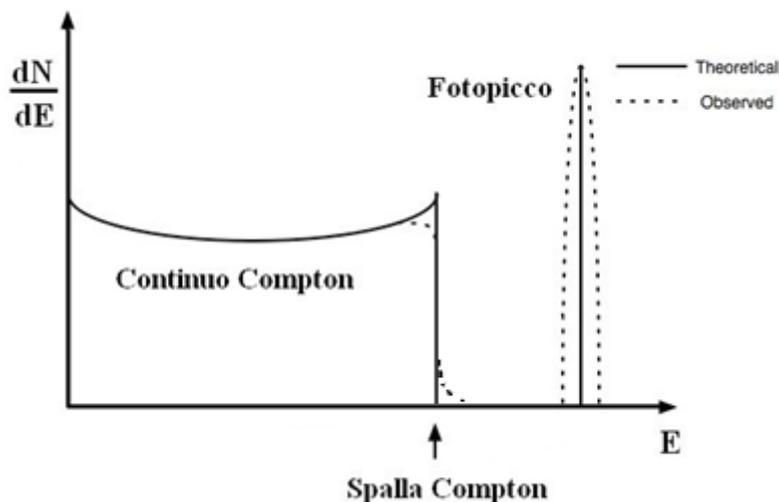


Figura 19: Forma tipica di uno spettro gamma in funzione del tipo di interazione dei fotoni incidenti con il rivelatore

Oltre che dalle differenti modalità di interazione la forma dello spettro dipende anche dalla dimensione del rivelatore. In genere, i cristalli utilizzati in spettrometria gamma hanno una dimensione dell'ordine di qualche cm comparabile al libero cammino medio delle radiazioni gamma secondarie.

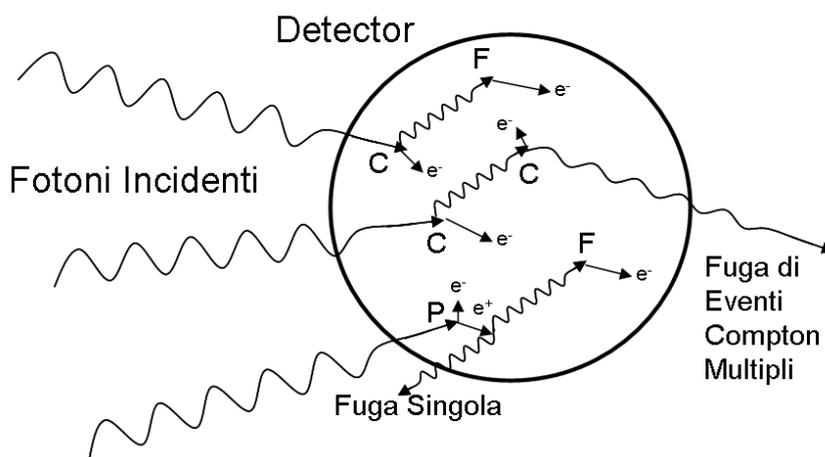


Figura 20: Rivelatore di dimensioni intermedie

In questi casi, può succedere che i fotoni secondari riescano a uscire dal rivelatore e quindi che non tutta l'energia del fotone primario venga depositata sul cristallo.

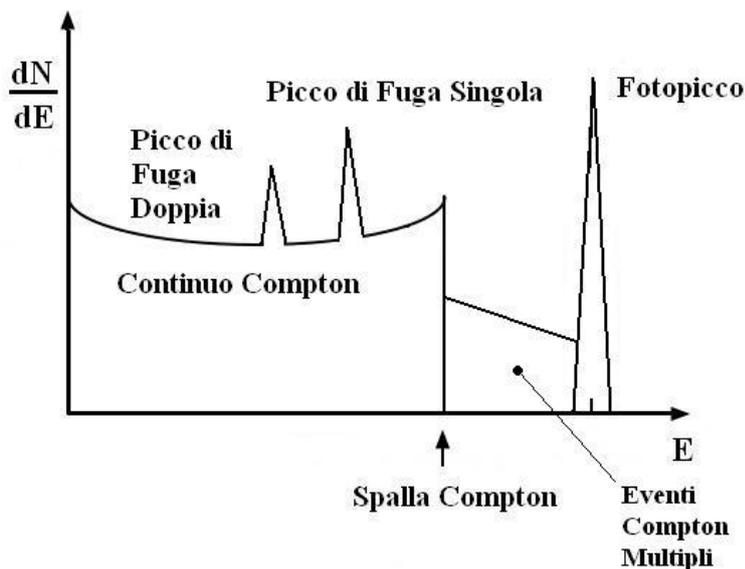


Figura 21: Esempio di Spettro gamma di un rivelatore di dimensioni intermedie

In figura 21 è possibile osservare la zona corrispondente agli eventi Compton multipli prima del picco di assorbimento totale. Inoltre, se la produzione di coppie è energeticamente possibile, potrebbe accadere che uno o entrambi i fotoni di annichilazione possano sfuggire dal rivelatore. Nel caso in cui un fotone di annichilazione riesca a uscire dal rivelatore si ottiene un picco detto di "fuga singola"; mentre nell'altro caso appare un picco detto di "fuga doppia".

4.1.2 Risoluzione energetica

La risoluzione energetica è definita come la minima differenza di energia affinché il sistema di rivelazione riesca a discriminare due eventi di energia diversa. In genere una valutazione di questa proprietà viene eseguita attraverso lo studio della risposta del rivelatore ad una sorgente monoenergetica di radiazione. In un rivelatore ideale, i picchi di emissione della sorgente dovrebbero corrispondere a funzioni delta di Dirac centrate attorno ai valori energetici dei fotoni emessi. In realtà gli effetti stocastici,

l'elettronica, le interferenze e altri tipi di possibili processi in grado di modificare la misura, portano alla rivelazione di un picco il cui andamento in funzione dell'energia può essere descritto mediante una funzione gaussiana.

La Risoluzione è definita come la larghezza a metà altezza del picco, chiamata anche *FWHM* (*Full Width at Half Maximum*); solitamente la risoluzione può essere scritta anche come:

$$R = \frac{FWHM}{H_0} \cdot 100 \quad (4.1)$$

dove H_0 rappresenta l'ampiezza del picco.

Le possibili cause di fluttuazioni della funzione di risposta del rivelatore sono:

- Rumore statistico: dipende dalla natura discreta del segnale; la carica generata dalla radiazione sul rivelatore è determinata da un numero discreto di portatori di carica e quindi soggetta a variazioni casuali da evento a evento. Assumendo che il processo di formazione di ogni portatore di carica è descritto da una distribuzione poissoniana, una stima del rumore statistico è data dalla deviazione standard σ della distribuzione.
- Rumore elettronico: dipende dalle fluttuazioni di corrente che circolano nei circuiti elettronici che costituiscono l'apparato di misura; maggiore è il numero di componenti che costituiscono la catena elettronica maggiore sarà la probabilità di origine del disturbo elettronico.
- Fluttuazione nella raccolta di carica: dipende dalla possibile perdita o raccolta incompleta di portatori di carica e dalle caratteristiche del rivelatore.

4.1.3 Efficienza

L'efficienza di rivelazione è un parametro di fondamentale importanza utilizzato per mettere in relazione il numero di impulsi registrati dall'apparato di misura con il numero di fotoni effettivamente emessi dalla sorgente. In generale, non tutta la

radiazione emessa dalla sorgente fornisce un impulso di risposta nel rivelatore, ma è bene considerare diversi fattori:

- geometria di acquisizione: è legata alla porzione Ω dell'angolo solido totale 4π sottesa tra rivelatore e sorgente; stabilisce la frazione di radiazioni incidenti emesse dalla sorgente sul rivelatore.
- assorbimento da parte dei materiali: la radiazione emessa può essere attenuata dai materiali interposti tra sorgente e volume di rivelazione, ma può avvenire anche autoassorbimento nel caso in cui si utilizzano sorgenti estese.
- capacità del rivelatore di attenuare le radiazioni all'interno del volume sensibile di rivelazione.
- tempo di risposta: è legato alla capacità dell'apparato di misura di distinguere eventi vicini nel tempo.

Considerando questi processi è possibile definire *efficienza intrinseca totale* $\varepsilon_T(E)$ come:

$$\varepsilon_T(E) = \frac{\text{numero fotoni rivelati}}{\text{numero fotoni sul rivelatore}} \quad (4.2)$$

Il prodotto tra la geometria di conteggio e l'*efficienza intrinseca totale* definisce la cosiddetta *efficienza intrinseca della sorgente* $\Omega\varepsilon_T(E)$, che descrive la frazione di fotoni emessi dalla sorgente effettivamente rivelati.

L'*efficienza di picco*, che tiene conto di tutti i fattori, è definita come:

$$\varepsilon_p(E) = R(E)\Omega\varepsilon_T(E) \quad (4.3)$$

dove $R(E)$ (*rapporto picco su totale*) rappresenta la frazione dei fotoni di una determinata energia che hanno prodotto una interazione registrata nel picco di assorbimento totale rispetto al numero di fotoni che hanno prodotto una interazione

qualsiasi. In genere l'efficienza ε è rappresentata dall'*efficienza di picco* e ricopre un ruolo fondamentale nell'analisi di spettrometria gamma.

4.1.4 Tempo morto

La registrazione di un evento da parte del sistema di misura non è istantanea, ma richiede un certo intervallo di tempo durante il quale l'apparato rimane inattivo; tale intervallo prende il nome di *tempo morto*. Esso rappresenta la distanza minima temporale che deve separare due eventi affinché questi vengano registrati separatamente.

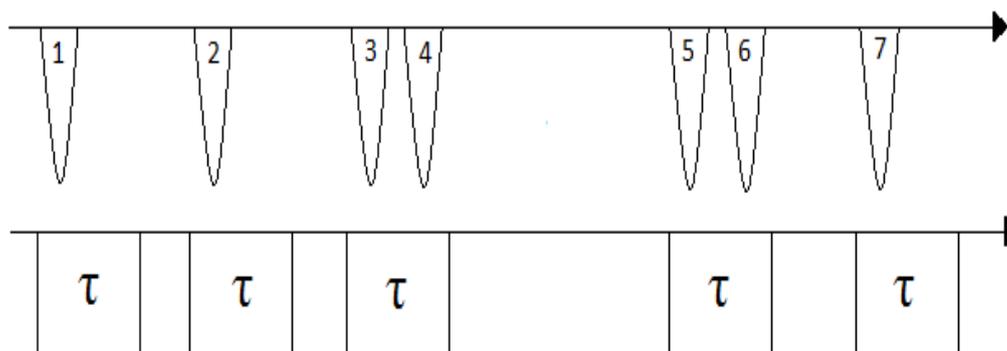


Figura 22: Rappresentazione schematica del tempo morto

4.2 Rivelatori a semiconduttore

Negli ultimi anni l'evoluzione tecnologica nel campo dei materiali allo stato solido ha portato alla realizzazione di cristalli a semiconduttore di media-grande dimensione, che sono entrati a far parte di una nuova classe di rivelatori di radiazione, chiamati appunto i rivelatori a semiconduttore. Le proprietà conduttive e strutturali di questi materiali possono essere descritte attraverso la *Teoria delle Bande*.

Secondo il modello a bande il legame tra gli atomi del materiale determina una struttura energetica in cui si dispongono gli elettroni dei singoli atomi: la banda a più bassa energia, chiamata banda di valenza, in cui risiedono gli elettroni degli atomi legati nel reticolo e la banda a più alta energia, chiamata banda di conduzione, nella quale gli elettroni sono liberi di migrare lungo il cristallo. Queste due strutture sono separate da un intervallo energetico chiamato *bandgap* E_g , che determina principalmente le proprietà elettriche del materiale (figura 23).

Il meccanismo di conduzione di cariche si ottiene applicando un opportuno campo elettrico entro il materiale semiconduttore; gli elettroni che hanno ricevuto dalla radiazione incidente un'energia sufficiente per passare dalla banda di valenza a quella di conduzione e le lacune che si sono formate nella banda di valenza per la fuoriuscita di elettroni, sono in grado di migrare rispettivamente verso l'elettrodo positivo e quello negativo. In questo modo si induce un segnale di corrente la cui ampiezza è proporzionale all'energia depositata dal fotone incidente.

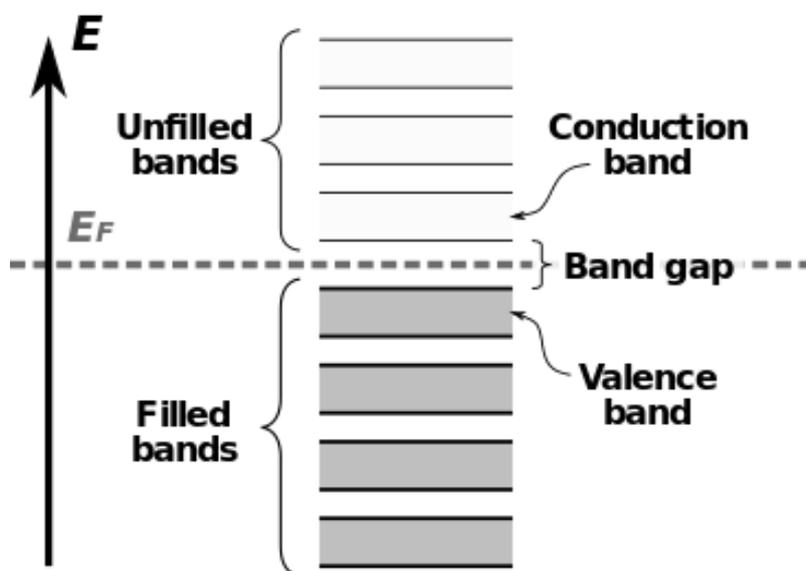


Figura 23: Rappresentazione schematica della struttura a bande di un semiconduttore

Indipendentemente dal materiale semiconduttore utilizzato come rivelatore, le principali caratteristiche richieste per la realizzazione di spettrometri a elevate prestazioni con una buona risoluzione ed un'elevata efficienza di conteggio possono essere riassunte in:

- Un elevato numero atomico Z in modo da garantire una maggior probabilità di interazione tra radiazione e atomo e favorire il processo di assorbimento fotoelettrico.
- Un valore di energia del *bandgap* che garantisca da una parte un'alta resistività e basse correnti di fuga e dall'altra una soglia di ionizzazione non troppo elevata necessaria per la creazione di coppie elettrone-lacuna ($< 5 \text{ eV}$).
- Cristalli con una elevata purezza, senza difetti, con caratteristiche omogenee e di dimensioni adeguate. La richiesta di questi fattori garantisce buone proprietà di trasporto della carica e basse correnti di fuga.

Il grande vantaggio dei rivelatori a semiconduttore rispetto a quelli a scintillazione è quello di avere un'elevata risoluzione energetica, e quindi la possibilità di distinguere picchi energetici che altrimenti non sarebbe possibile distinguere (figura 24).

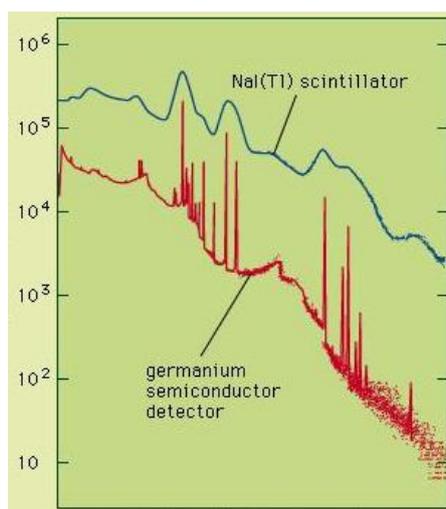


Figura 24: Confronto della risposta di un rivelatore al Germanio con quello di uno scintillatore allo Ioduro di Sodio NaI(Tl)

4.2.1 Rivelatori HPGe

Lo sviluppo delle tecnologie nel trattamento di materiali semiconduttori ha permesso la produzione di cristalli al Germanio di elevata purezza e di dimensioni relativamente grandi che si prestano alla realizzazione di rivelatori con elevate prestazioni. Il Germanio, con un numero atomico $Z=32$, si colloca in una zona intermedia tra i rivelatori proporzionali (gas di riempimento tra $Z=1$ e $Z=8$) e i rivelatori a scintillazione (p.e. NaI con $Z=11$ e $Z=53$). Inoltre, l'energia necessaria per creare una coppia elettrone-lacuna è di circa 3 eV rispetto ai circa 100 eV per produrre una scintillazione; dunque, a parità di energia ceduta dalle radiazioni, i rivelatori al Germanio sono in grado di produrre una risposta maggiore rispetto agli altri strumenti di rivelazione.

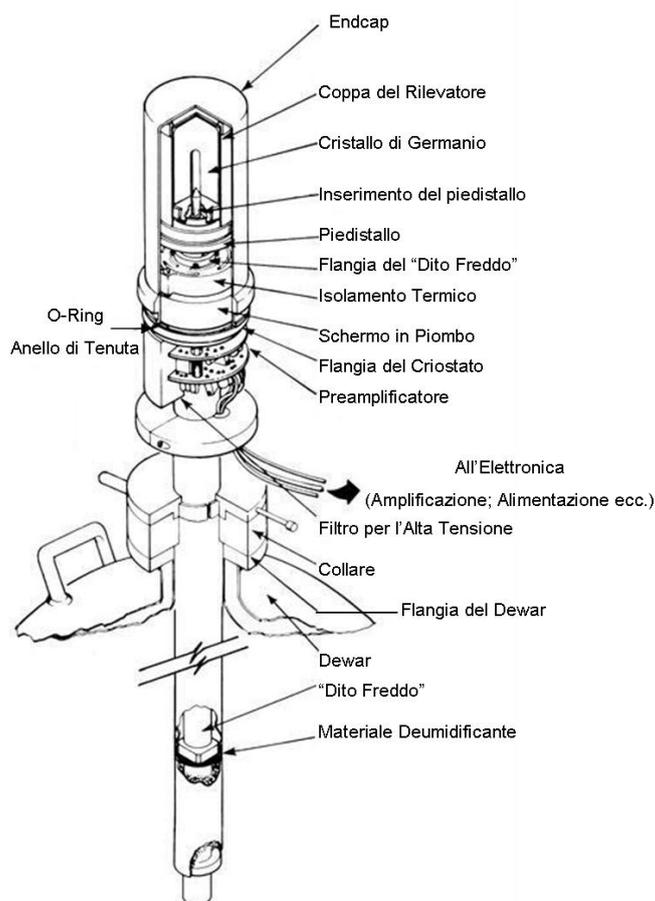


Figura 25: Schema di un rivelatore HPGe coassiale

Per garantire queste caratteristiche è necessario disporre di un elevato grado di purezza del cristallo e di opportune apparecchiature di raffreddamento, utilizzate anche per ridurre la corrente di fuga dovuta al moto dei portatori di carica liberati per effetto termico.

In genere, i rivelatori HPGe sono montati su un criostato di tipo *Dewar* contenente azoto liquido che mantiene l'apparato a temperature ottimali per un corretto funzionamento. Il contatto termico con il refrigerante è garantito attraverso un "Dito Freddo" in rame. Le configurazioni di montaggio maggiormente diffuse presentano il rivelatore montato superiormente sul criostato in linea verticale e un pozzetto di schermatura posizionato attorno al cristallo.

La schermatura ha lo scopo di ridurre al minimo i conteggi di fondo che derivano da diverse fonti di radiazione: radioattività naturale, radioattività della superficie terrestre, radiazione cosmica e possibili radionuclidi nei costituenti delle pareti del laboratorio; il materiale comunemente utilizzato per le schermatura dei rivelatori è piombo.

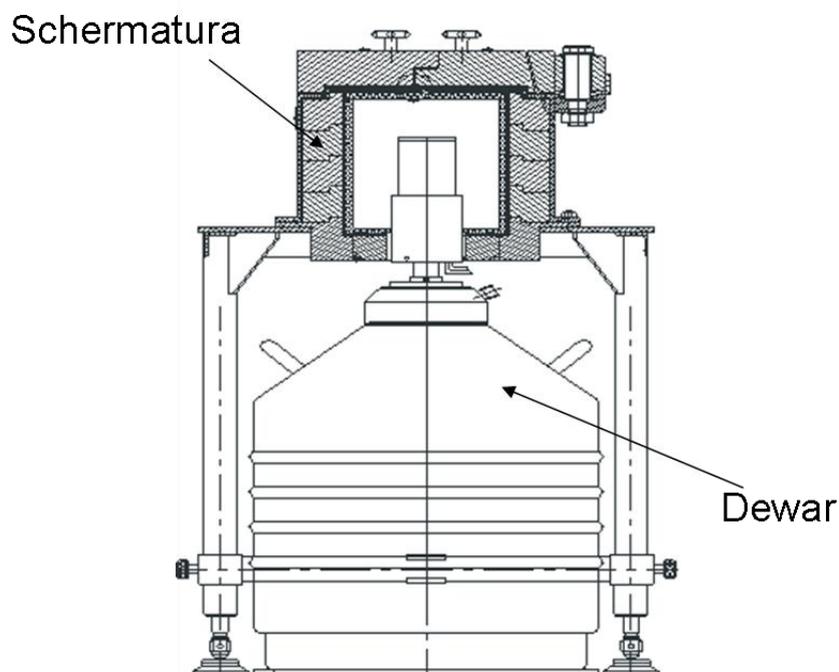


Figura 26: Schermatura del rivelatore e sistema refrigerante

4.3 Caratteristiche e procedure di calibrazione dello spettrometro in uso

L'apparato di spettrometria gamma attualmente in uso presso il Laboratorio del Servizio di Fisica Sanitaria dell'Ospedale Sant'Orsola-Malpighi è un analizzatore multicanale con rivelatore al Germanio iperpuro (HPGe) raffreddato ad azoto liquido, avente una efficienza relativa del 30% a 1332 keV ed una risoluzione energetica di 1.8 keV a 1332 keV. Gli impulsi di corrente sono gestiti da un sistema di acquisizione su personal computer mediante controller *Canberra AIM556*, connesso al processore digitale *Canberra DSP 9660* che funge da amplificatore e convertitore analogico-digitale (ADC). Gli spettri che si ottengono dall'apparato sono elaborati tramite il pacchetto *Genie 2000* fornito da *Canberra*.



Figura 27: Apparati di spettrometria gamma presso il Laboratorio di Radiofarmacia dell'Ospedale Sant'Orsola-Malpighi

Il range di conversione in energia dei 4000 canali è impostato fra 30 keV e 2 MeV con un rapporto keV/canale pari a 0.5.

4.3.1 Calibrazione in efficienza

La calibrazione in efficienza di una catena spettrometrica viene effettuata in maniera sperimentale mediante l'utilizzo di miscele di sorgenti gamma certificate in varie geometrie di misurazione.

In un laboratorio di Radiofarmacia le tipiche geometrie di misurazione utilizzate sono: puntiforme, provetta da 1 cm³, provetta da 5 cm³, bicchiere da 50 cm³ e beaker di Marinelli da 450 e 1000 cm³.

L'efficienza di picco è calcolata come il rapporto tra il numero di conteggi rivelati dal sistema e la frequenza di emissione della sorgente all'energia corrispondente al picco, nota dalla certificazione:

$$\varepsilon_p(E) = \frac{A_{netta}(E)}{r(E)} \quad (4.4)$$

dove A_n rappresenta l'area netta per unità di tempo di un picco ad energia E (numero di conteggi rivelati dal sistema) e $r(E)$ è la frequenza di emissione del campione alla stessa energia.

Le sorgenti impiegate per la calibrazione in efficienza contengono tipicamente una miscela di radionuclidi caratterizzati da picchi ben isolati e da una distribuzione che ricopre quasi completamente lo spettro di energie di interesse. Un esempio di radionuclidi contenuti in una sorgente multigamma è riportato in tabella 6.

Radionuclidi	Energia (keV)	Yield	T $\frac{1}{2}$
^{241}Am	59.540	0.3592	432.6 anni
^{109}Cd	88.033	0.0362	461.4 giorni
^{57}Co	122.060	0.8551	271.8 giorni
^{57}Co	136.473	0.1071	271.8 giorni
^{139}Ce	165.857	0.7990	137.641 giorni
^{51}Cr	320.083	0.0987	27.703 giorni
^{113}Sn	391.698	0.6497	115.09 giorni
^{85}Sr	514.004	0.9850	64.85 giorni
^{137}Cs	661.657	0.8499	30.05 anni
^{88}Y	898.036	0.9390	106.626 giorni
^{60}Co	1173.228	0.9985	5.271 anni
^{60}Co	1332.492	0.9998	5.271 anni
^{88}Y	1836.052	0.9932	106.626 giorni

Tabella 6: Tipici radionuclidi presenti nelle sorgenti multigamma

Ai fini di questo lavoro, è bene porre l'attenzione sul processo di calibrazione di efficienza di rivelazione per misurazioni con geometria con beaker di Marinelli da 1000 cm^3 (figura 28).

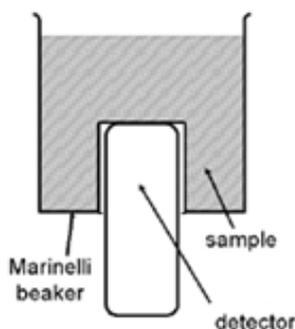


Figura 28: Geometria di misura con Beaker di Marinelli da 1000 cm^3

La calibrazione in efficienza dello spettrometro al Germanio iperpuro del Laboratorio di Radiofarmacia dell'Ospedale Sant'Orsola è stata effettuata seguendo le direttive

IEC 61452 ([10]) mediante una sorgente multipicco certificata per la geometria di acquisizione di figura 28. Tale processo di calibrazione consiste di diverse fasi operative:

- Riempimento del beaker di Marinelli ad un volume finale di 1000 cm^3 con una soluzione liquida costituita da acqua e da 1 cm^3 di soluzione multipicco certificata. La soluzione multigamma utilizzata, prodotta e certificata dai laboratori L.E.A. (*Laboratoire Etalons d'Activitè*) contiene i seguenti radionuclidi con frequenza di emissione nota:



Tipo di sorgente	9ML01-ELMB45
Massa di soluzione contenuta nella provetta da 1 cm^3	1.016 g
Data di riferimento	25/09/2013

Figura 29: Sorgente multipicco in soluzione in una provetta da 1 cm^3

Radionuclide	Flusso fotoni (n.fot./s·g) su 4π	Incertezza relativa %
^{241}Am	$5.07 \cdot 10^2$	± 3
^{109}Cd	$4.25 \cdot 10^2$	± 4
^{57}Co	$6.54 \cdot 10^2$	± 3.5
^{57}Co	$8.19 \cdot 10^1$	± 3.5
^{139}Ce	$5.91 \cdot 10^2$	± 3
^{51}Cr	$1.070 \cdot 10^3$	± 3.5
^{113}Sn	$1.314 \cdot 10^3$	± 3
^{85}Sr	$2.161 \cdot 10^3$	± 3
^{137}Cs	$2.308 \cdot 10^3$	± 3
^{88}Y	$4.07 \cdot 10^3$	± 3
^{60}Co	$3.90 \cdot 10^3$	± 3
^{60}Co	$3.90 \cdot 10^3$	± 3
^{88}Y	$4.30 \cdot 10^3$	± 3

Tabella 7: Radionuclidi presenti nella sorgente multipicco utilizzata e rispettivo flusso di fotoni al $\text{s}^{-1}\text{g}^{-1}$ su 4π (dati forniti dai laboratori L.E.A.)

- Misurazione del campione mediante la catena spettrometrica e calcolo dell'efficienza di ogni picco ottenuto tramite la relazione 4.4.
- Interpolazione dei valori sperimentali di efficienza in funzione dell'energia mediante funzioni logaritmiche polinomiali, imponendo condizioni di continuità.

Il risultato dell'interpolazione è la curva di calibrazione in efficienza in funzione dell'energia per misurazioni spettrometriche eseguite con beaker di Marinelli riempiti con soluzioni liquide per un volume di 1000 cm^3 .

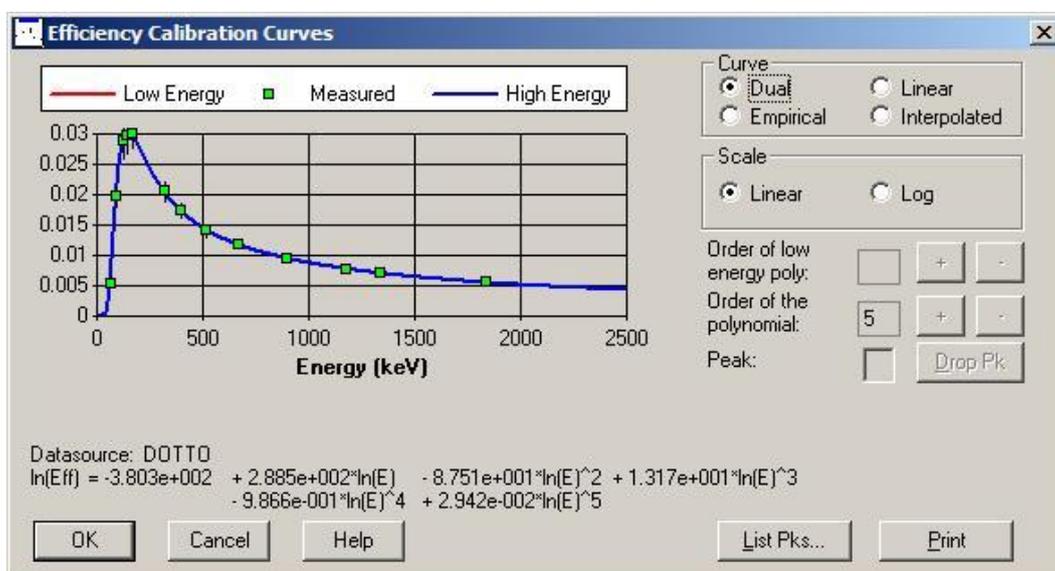


Figura 30: Curva di calibrazione in efficienza per geometria di misura con beaker di Marinelli da 1000 cm^3 riempito con soluzioni liquide

L'interpretazione dell'andamento della curva di efficienza di figura 30 è il seguente: a basse energie solo una frazione dei fotoni prodotti dalla sorgente riesce a raggiungere il volume sensibile del rivelatore; con l'aumentare dell'energia, il numero di fotoni che il sistema riesce a rivelare aumenta fino ad arrivare ad un massimo di efficienza intorno a 100-150 keV; ad energie superiori, l'efficienza di rivelazione diminuisce in

maniera progressiva poichè aumenta il numero di fotoni che riesce a sfuggire al rivelatore a causa della diminuzione del coefficiente di assorbimento lineare.

4.3.2 Correzione dell'efficienza con il software

LabSOCS/ISOCS

In alcune situazioni specifiche risulta difficile ottenere, in maniera sperimentale, una accurata calibrazione in efficienza poichè le sorgenti in esame hanno una densità diversa rispetto alla sorgente di calibrazione, sono non liquide oppure la loro geometria di misurazione differisce leggermente da quelle standard. In genere, per questo tipo di casi, vengono utilizzati software dedicati che calcolano matematicamente la calibrazione in efficienza dello spettrometro come per esempio LabSOCS/ISOCS.

Il software LabSOCS/ISOCS, fornito da *Canberra* e convalidato da diversi studi presenti in letteratura (*F.L. Bronson* [11]), permette di eseguire la calibrazione in efficienza di un rivelatore mediante algoritmi analitici richiedendo all'utente una caratterizzazione del rivelatore in uso, una descrizione della geometria di misura e la definizione di alcuni parametri fisici (p.e. tipo di materiale, densità dei materiali, ...).

Per soddisfare queste richieste, LabSOCS/ISOCS fornisce un tool per l'utente (*Geometry Composer*) in cui è possibile definire la geometria dell'apparato e i parametri fisici (densità e tipo dei materiali, densità della sorgente,...) e genera, in tempo reale, un rendering 3D della situazione geometrica descritta per avere un controllo grafico immediato.

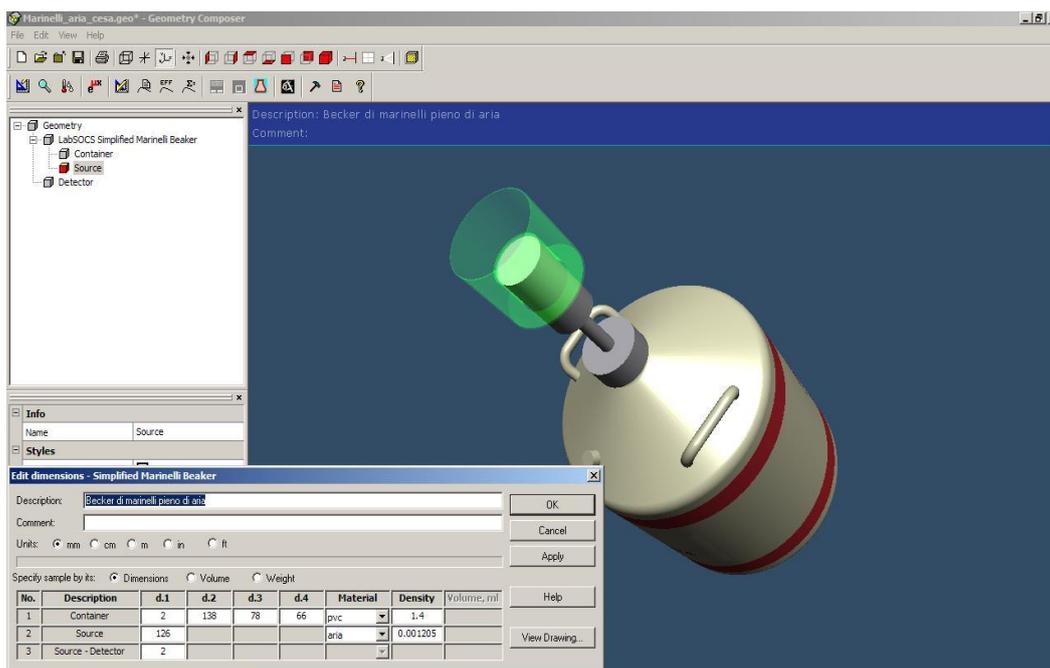


Figura 31: Tool del software LabSocs/ISOCS utilizzato per definire la geometria e il settaggio di vari parametri.

In questo lavoro di tesi, le misure effettuate con lo spettrometro sono state eseguite utilizzando un beaker di Marinelli riempito completamente d'aria. A tal proposito, è stato necessario eseguire una correzione della curva di calibrazione in efficienza ottenuta con la metodica sperimentale di figura 30; il motivo principale della correzione è dovuto essenzialmente al diverso volume in gioco e alla diversa densità del campione rispetto alla sorgente utilizzata per la calibrazione e quindi un differente comportamento per quanto riguarda il fenomeno di autoassorbimento.

Mediante il software LabSOCS/ISOCS è stata calcolata la curva di calibrazione in efficienza di rivelazione dopo aver descritto opportunamente, tramite il tool *Geometry Composer*, le caratteristiche geometriche del beaker e il tipo di materiali che costituiscono lo stesso beaker (PVC), la sorgente (aria) e il rivelatore.

La curva di calibrazione di efficienza ottenuta è rappresentata in figura 32.

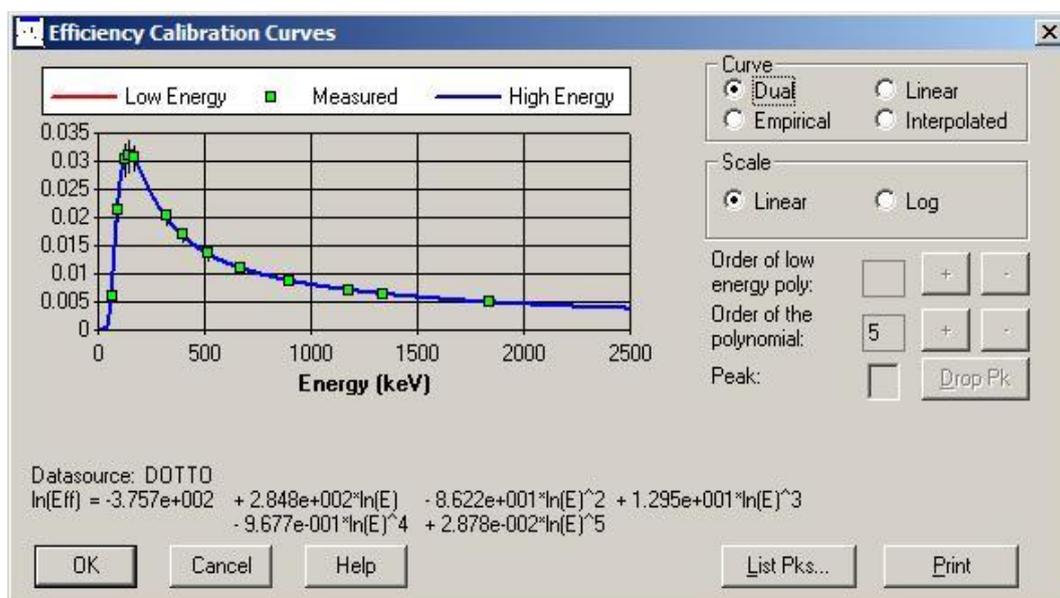


Figura 32: Curva di calibrazione in efficienza ottenuta mediante LabSOCS/ISOCS per geometria di misura con beaker di Marinelli riempito completamente di aria.

4.4 Analisi quantitativa dello spettro gamma

L'elaborazione degli spettri gamma viene eseguita mediante il pacchetto *Genie 2000* fornito da *Canberra* in cui sono implementati algoritmi che permettono, in maniera semiautomatica, l'identificazione e l'analisi quantitativa di determinati radionuclidi presenti nel campione.

In seguito all'acquisizione di uno spettro e al riconoscimento di vari picchi al suo interno, si pone il problema di attribuire ogni picco ad un determinato radionuclide. A questo scopo vengono utilizzate librerie in cui sono inseriti i dati dei radionuclidi che presumibilmente sono presenti nel campione in esame. In genere in un libreria sono presenti una serie di dati tipici per la caratterizzazione di un radionuclide: nome, tempo di dimezzamento, energia di emissione dei picchi gamma, yield di emissione dei picchi gamma ed eventualmente altri parametri.

L'identificazione dei radionuclidi presenti all'interno del campione avviene mediante un confronto tra i valori di emissione inseriti nella libreria con quelli trovati nello

spettro. Dopo aver identificato i radionuclidi presenti nel campione, è possibile calcolare l'attività associata a ciascun picco.

L'attività A viene calcolata mediante la seguente relazione:

$$A = \frac{A_n}{t \cdot y \cdot \varepsilon(E)} \cdot f_d \cdot f_a \cdot f_n \quad (4.5)$$

dove:

- A_n rappresenta l'area netta del picco
- t è il tempo di acquisizione
- $\varepsilon(E)$ è l'efficienza di picco associato al valore di energia di interesse
- y rappresenta la frequenza di emissione del picco gamma (*yield*)
- f_d è il termine correttivo del decadimento del radionuclide durante la misura
- f_a è il termine correttivo dell'autoassorbimento entro il campione
- f_n rappresenta eventuali fattori correttivi.

L'incertezza associata al valore di Attività dipende dalle incertezze dei parametri utilizzati nella relazione 4.5.

L'incertezza associata al valore di area netta dipende dall'incertezza sul singolo valore di conteggio di ogni canale che costituisce il picco. I conteggi di eventi su un determinato canale seguono ragionevolmente una distribuzione di Poisson e quindi è possibile associare come incertezza la deviazione standard dei conteggi che equivale alla radice quadrata dei conteggi stessi. Per un valore di conteggio C_i su un canale, l'incertezza è pari a $\sigma_i = \sqrt{C_i}$.

In generale, l'incertezza associata a conteggi di ogni singolo canale tiene conto anche della sottrazione con i conteggi di fondo; quindi, l'incertezza associata ai conteggi di un singolo canale è:

$$\sigma'_i = \sqrt{\sigma_i^2 + \sigma_B^2} \quad (4.6)$$

dove σ_B è l'incertezza associata ai conteggi di fondo.

L'errore associato alla misura di area netta, dipende dall'incertezza sui conteggi di ogni singolo canale che costituisce un determinato picco; l'errore associato al valore di attività calcolato tramite la relazione 4.5 può essere scritto come:

$$\sigma_A = A \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{A_n}}{A_n}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_t}{t}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_\varepsilon}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_y}{y}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_f}{f}\right)^2} \quad (4.7)$$

dove A_n e σ_{A_n} sono rispettivamente i valori di area netta del picco e l'incertezza associata, t e σ_t sono rispettivamente il tempo di acquisizione e l'errore associato, ε e σ_ε sono l'efficienza di picco e la relativa incertezza associata, y e σ_y sono rispettivamente lo yield del picco di interesse e l'errore associato e f e σ_f sono rispettivamente il fattore di correzione e l'incertezza ad esso associata.

Capitolo 5

Misure sperimentali di ^{41}Ar : Materiali e metodi

5.1 Introduzione

Il potenziale rilascio di radioattività nell'atmosfera dovuto all'utilizzo di acceleratori di particelle, come ad esempio il ciclotrone, potrebbe essere una fonte di rischio per la popolazione locale e l'ambiente circostante. I ciclotroni sono utilizzati in campo biomedico per la produzione di radionuclidi prevalentemente emettitori di positroni per la PET. Lo studio e la caratterizzazione di questo tipo di apparecchiature sono necessari per progettare adeguati sistemi di protezione; in particolare, considerando il ciclo di lavoro quotidiano dell'acceleratore, è importante la valutazione dell'attivazione dei materiali di costruzione e dell'aria ambiente.

Richiamando quanto introdotto nel capitolo 3, durante la normale routine di produzione di ^{18}F mediante ciclotrone, il processo più rilevante di attivazione dell'aria è la formazione di ^{41}Ar ($T_{1/2} = 109.32$ minuti) causato dall'interazione del flusso di neutroni secondari, prodotti durante l'irraggiamento, con gli atomi di ^{40}Ar presenti in aria secondo la reazione:



L' ^{41}Ar è un radionuclide che decade β/γ ; le sue linee caratteristiche di emissione gamma sono:

Radionuclide	Energy gamma rays (keV)	Yield (%)
^{41}Ar	1293.587	99.1
	1677.198	0.0052

Tabella 8: Dati relativi all'emissione di raggi gamma del ^{41}Ar

(fonte: *nucleardata.lund* [12])

In questo lavoro di tesi sono stati progettati e realizzati diversi sistemi di campionamento per eseguire una campagna di misurazione diretta di concentrazione di ^{41}Ar in diverse sedi di campionamento mediante l'utilizzo del modello teorico descritto nel capitolo 3; infine sulla base delle misurazioni eseguite è stata stimata la dose rilasciata in atmosfera e valutato un eventuale impatto ambientale.

5.2 Metodi di lavoro

In riferimento a quanto già accennato nel capitolo 3 sull'impianto di ventilazione, la mandata dell'aria all'interno del bunker è impostata ad una portata d'aria in ingresso di $1200 \text{ m}^3/\text{h}$; il condotto di estrazione è collegato, oltre che al bunker, anche al vano tecnico posteriore alle celle schermate nel Laboratorio in cui si esegue la sintesi dei radiofarmaci. Per garantire opportuni valori di depressione nei locali, il sistema di ripresa dell'aria nel camino è impostato ad un valore di portata di estrazione di $2390 \text{ m}^3/\text{h}$ (figura 33); di questi una parte sono estratti dal bunker, un'altra sono estratti dal vano posteriore del Laboratorio di sintesi ed i restanti derivano dall'aria prelevata da perdite nel circuito di aspirazione.

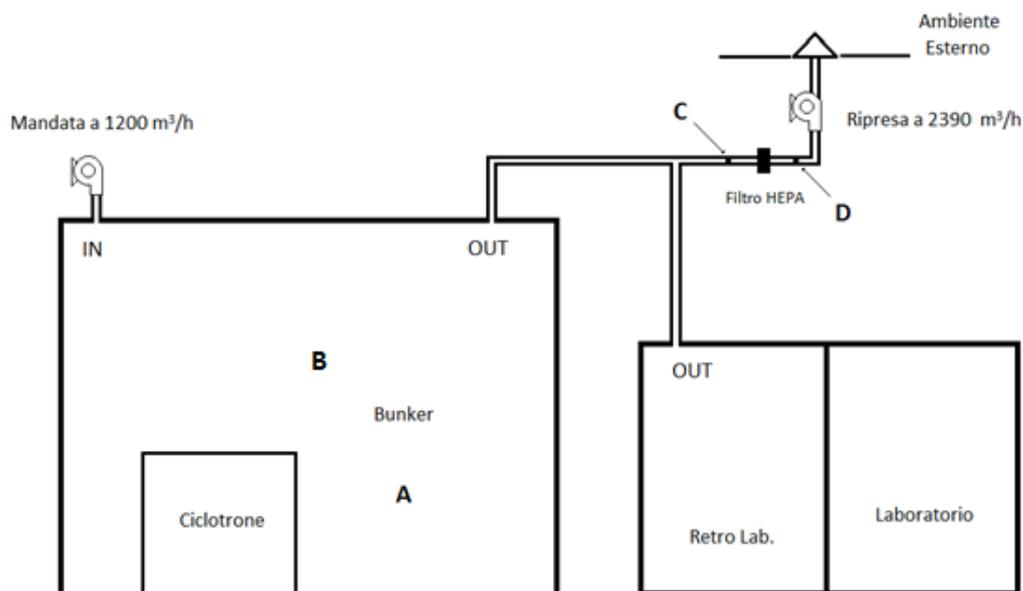


Figura 33: Rappresentazione schematica dell'impianto di ventilazione

Al fine di caratterizzare e determinare la concentrazione di attività di ^{41}Ar prodotta durante la normale procedura di produzione di ^{18}F mediante il ciclotrone tenendo in considerazione il sistema di ventilazione della struttura, è stata adottata una determinata linea procedurale di lavoro.

In riferimento all'equazione 3.6 definita nel capitolo 3, l'attività ad un istante di tempo t all'interno del bunker è definita mediante la formula:

$$A(t) = \lambda \cdot \frac{Y_{sat} \cdot I}{(\lambda + m)} \cdot [1 - e^{-(\lambda+m)t}] \quad (5.2)$$

dove:

- Y_{sat} è lo yield a saturazione in aria ferma ($\text{Bq}/\text{dm}^3 \cdot \mu\text{A}$)
- I è la corrente del fascio
- λ è la costante di decadimento dell' ^{41}Ar
- m sono i ricambi d'aria per unità di tempo all'interno del bunker

Dall'equazione 5.2 è possibile dare una stima del fattore m dell'interno bunker, tramite la valutazione della grandezza Y_{sat} in aria ferma e dell'attività di ^{41}Ar ad un istante di tempo t presente all'interno del bunker. Questi due parametri sono stati stimati attraverso due differenti set di misure di campionamento che saranno descritte nei prossimi paragrafi.

La stima del fattore m del bunker permette la valutazione della portata di estrazione dell'aria dal bunker mediante:

$$Portata_{estr.bunk} = m_{stim} \cdot V_{bunk} \quad (5.3)$$

Sulla base dei dati tecnici e sapendo che il condotto di estrazione dell'aria è collegato anche al vano tecnico posteriore del Laboratorio di sintesi dei radiofarmaci, è ragionevole aspettarci che, nel punto C di figura 33, la concentrazione di attività di ^{41}Ar risulti diminuita rispetto all'interno del bunker, poichè l'aria radioattiva viene diluita con aria pulita rispetto a un fattore di diluizione F_1 , determinabile attraverso l'equazione:

$$F_1 = \frac{Portata_{estr.bunk}}{Portata_{estr.camino}} \quad (5.4)$$

Nel punto C di figura 33, l'attività ad un istante di tempo t è determinata tramite la formula:

$$A(t) = F_1 \cdot \frac{\lambda \cdot Y_{sat} \cdot I}{\lambda + m} \cdot [1 - e^{-(\lambda+m)t}] \quad (5.5)$$

A conferma di quanto appena spiegato, è stato eseguito un set di prelievi d'aria nel punto C mediante una procedura di campionamento che sarà descritta nel prossimo paragrafo e misurata l'attività di ogni campione a tempo di fine irraggiamento. Tali

misurazioni hanno permesso la stima del valor medio di Y'_{sat} che può essere espresso come:

$$Y'_{sat} = F_1 \cdot \frac{\lambda \cdot Y_{sat}}{\lambda + m} \quad (5.6)$$

Quindi, è stato calcolato per questo set di misurazioni il fattore di diluizione F_1 come:

$$F_1 = \frac{(\lambda + m) \cdot Y'_{sat}}{\lambda \cdot Y_{sat}} \quad (5.7)$$

Infine è stato eseguito un set di prelievi di aria all'interno del condotto di estrazione dopo il filtro (punto D) per valutare l'effetto di intrappolamento del filtro stesso sull'⁴¹Ar mediante la stessa procedura di campionamento dei prelievi del punto C.

In questo punto, l'equazione che descrive l'attività ad un istante di tempo t può essere modificata introducendo un fattore F_2 che rappresenta l'intrappolamento di radioattività nel filtro.

L'equazione diventa:

$$A(t) = F_1 \cdot F_2 \cdot \frac{\lambda \cdot Y_{sat} \cdot I}{\lambda + m} \cdot [1 - e^{-(\lambda+m)t}] \quad (5.8)$$

Utilizzando la stessa procedura del punto precedente è stata data una stima del prodotto dei due fattori tramite:

$$F_1 \cdot F_2 = \frac{(\lambda + m) \cdot Y'_{sat}}{\lambda \cdot Y_{sat}} \quad (5.9)$$

5.3 Setup sperimentale e metodologia di misura

5.3.1 Stima dello Y_{sat} in aria ferma

La stima dello Y_{sat} in aria ferma per la produzione di ^{41}Ar all'interno del bunker è stata eseguita attraverso un set di campionamenti con un beaker di Marinelli (Volume di riempimento pari a 1.41 dm^3) sigillato e riempito completamente di aria. Tale beaker è stato posizionato all'interno del bunker, durante la produzione di routine di ^{18}F , in una serie di punti ben definiti come rappresentato in figura 34; il beaker è stato sigillato in modo da simulare l'assenza di ventilazione.

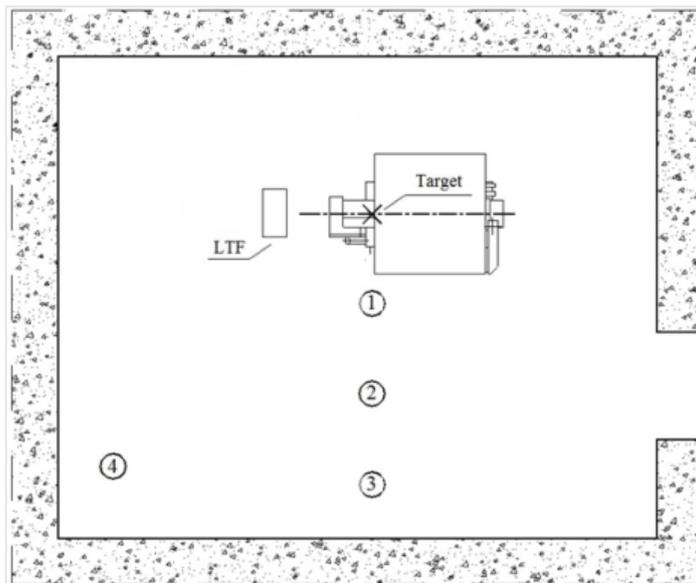


Figura 34: Punti di campionamento dentro il bunker

Nei punti 1,2,3,4, il beaker è stato posizionato rispettivamente ad una distanza dal target di 1,2,3,4 metri e ad una altezza uguale a quella del target utilizzato nell'irraggiamento. Queste posizioni sono state scelte in modo da poter stimare un valore medio di yield a saturazione in aria ferma del processo di produzione di ^{41}Ar all'interno del bunker.

Alla fine di ogni irraggiamento, dopo aver aspettato circa venti minuti per poter entrare all'interno del bunker e prelevare il campione, il beaker è stato portato

tempestivamente nel Laboratorio del Servizio di Fisica Sanitaria per eseguire la misurazione con lo spettrometro gamma di caratteristiche già discusse nel capitolo precedente. Per tutte le misurazioni è stato impostato un tempo di acquisizione pari a 3600 secondi (1 ora).

Una estesa serie di misure di questo tipo era già stata eseguita in precedenza dal gruppo di ricerca del Servizio di Fisica Sanitaria (A. Infantino [7]); pertanto si è ripetuta solo una breve serie di misure per confermare quanto già misurato.

5.3.2 Misure di attività di ^{41}Ar nei punti B, C e D

Le misure eseguite nelle differenti sedi di misurazione (punti B,C,D di figura 33) sono state eseguite mediante un unico sistema di campionamento; tale sistema è stato realizzato per avere la capacità di ripetere misurazioni in condizioni prestabilite e per essere facilmente adattabile e trasportabile nei diversi punti di campionamento.

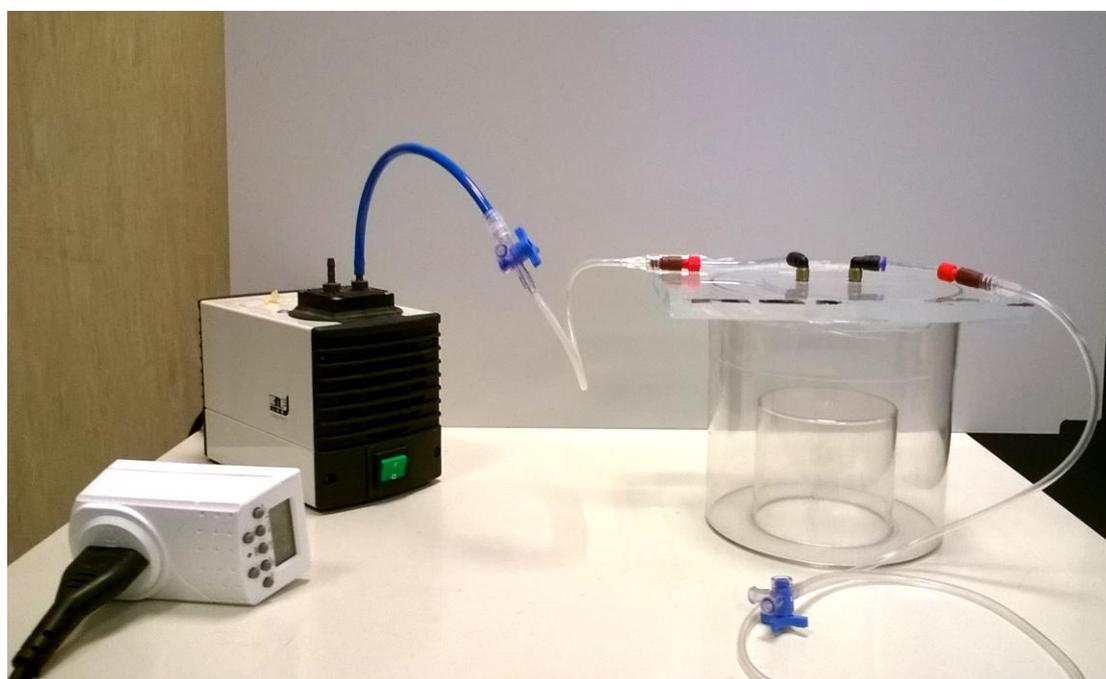


Figura 35: Sistema di campionamento

Il sistema rappresentato in figura 35 è costituito dai seguenti apparati:

- Un Beaker di Marinelli di PVC sigillato con due ingressi (IN-OUT) utili per l'immissione e l'estrazione di aria all'interno del beaker stesso; il volume totale di riempimento è $(1.41 \pm 0.03) \text{ dm}^3$;
- una pompa di estrazione dell'aria, collegabile all'ingresso OUT del beaker con una portata di estrazione pari a $2 \text{ dm}^3/\text{min}$;
- due sistemi a valvola a tre vie, uno posizionato nell'ingresso IN e l'altro in quello OUT del beaker, utilizzati per poter intrappolare l'aria entro il beaker o farla fluire liberamente;
- una presa programmabile per permettere automaticamente l'accensione e lo spegnimento del sistema in determinate ore della giornata.

In ogni sede di misura, si è cercato di adattare il sistema di campionamento in modo da avere condizioni ripetibili di misurazione.

INTERNO BUNKER

Il prelievo di aria all'interno del bunker è stato effettuato sfruttando l'unico punto di accesso nel momento in cui il ciclotrone è in funzione, ovvero un foro adibito al passaggio dei cavi di alimentazione. Sfruttando questo foro è stato possibile posizionare un tubo all'interno del bunker a circa un metro e mezzo dal target e ad un'altezza pari a quella del target; questo punto di prelievo è stato selezionato in modo da essere in una zona ideale lontano dai bocchettoni di estrazione e immissione dell'aria. L'altra estremità del tubo è stata collegata al sistema di campionamento collocato nel locale confinante al bunker.

CONDOTTO PRIMA DEL FILTRO e CONDOTTO DOPO IL FILTRO

Il prelievo dell'aria all'interno dei condotti di estrazione nei due differenti punti di campionamento, è stato eseguito sfruttando appositi fori per il posizionamento di

sonde; quando non utilizzati, questi fori di campionamento sono di norma chiusi mediante dei tappi. I fori hanno permesso di posizionare un sistema di tubi in plastica rigida raccordati in maniera tale da poter prelevare l'aria perpendicolarmente alla sezione trasversale della canna fumaria, in modo da campionare isocineticamente il flusso di aria in uscita e allo stesso tempo da potersi adattare facilmente al sistema di campionamento. Nelle immagini 36, 37, 38 sono raffigurati rispettivamente il progetto, l'apparato finale e l'apparato montato nel camino.

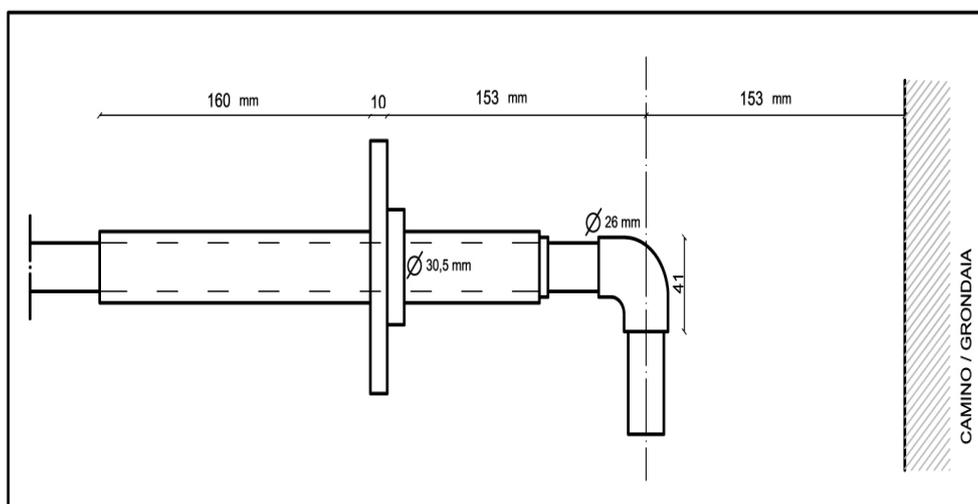


Figura 36: Progetto di realizzazione dell'apparato

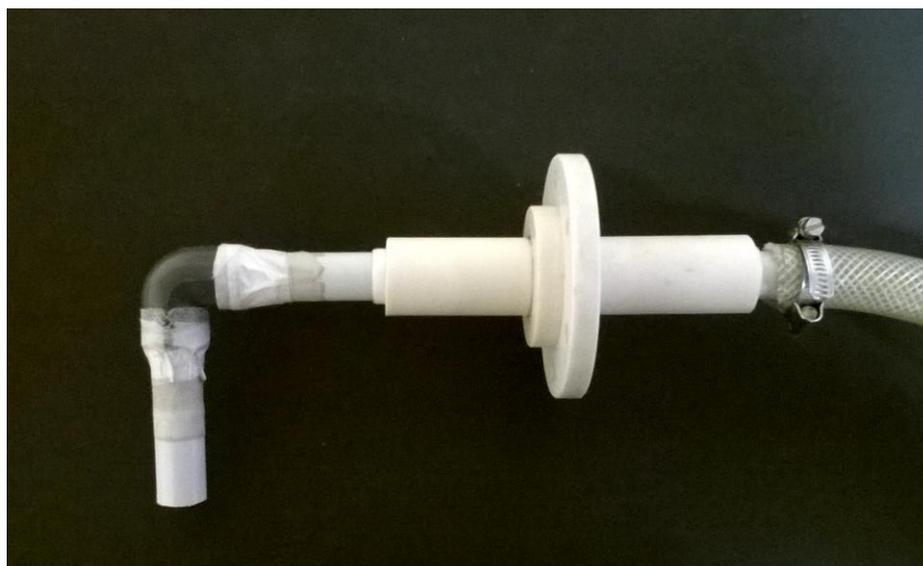


Figura 37: Apparato assemblato finale



Figura 38: Apparato montato nel condotto di estrazione dell'aria

Presso i Laboratori di Radiofarmacia dell'Ospedale Sant'Orsola-Malpighi la produzione di ^{18}F mediante il ciclotrone avviene quotidianamente; il ciclotrone viene messo in funzione alle ore 06:00 e finisce il suo ciclo di irraggiamento quando viene prodotta la quantità di attività prestabilita, circa alle ore 8:00. Per evitare uno spreco di risorse, in particolare del materiale bersaglio (H_2^{18}O), le misurazioni sono state eseguite in questa fascia oraria mattutina.

L'accensione del sistema di campionamento, nelle tre possibili sedi di prelievo, è stata predisposta per le ore 07:00 di ogni mattina dal Lunedì al Venerdì; l'orario scelto è stato stabilito in corrispondenza del momento in cui la formazione di ^{41}Ar , all'interno del bunker, raggiunge una condizione di saturazione, tenuto conto dell'effetto del sistema di ventilazione sulla produzione del radionuclide.

Infatti, secondo l'equazione 3.6 del capitolo 3, è stato eseguito uno studio preliminare sul tempo necessario per raggiungere la condizione di saturazione:

$$A(t) = A'_{sat} \cdot [1 - e^{-(\lambda+m)t}] \quad (3.6)$$

dove:

- $\lambda = \ln(2)/T_{1/2}$ è la costante di decadimento del ^{41}Ar
- m sono i ricambi all'ora all'interno del bunker. E' stato stimato preliminarmente un m compreso tra i 10 e i 15 ricambi all'ora.

Allora:

$$\frac{A(t)}{A'_{sat}} = [1 - e^{-(\lambda+m)t}] \quad (5.10)$$

Costruendo un grafico con in ascissa il tempo e in ordinata il rapporto tra l'attività prodotta e l'attività a saturazione, è possibile dare una stima ragionevole del tempo necessario per giungere alla saturazione:

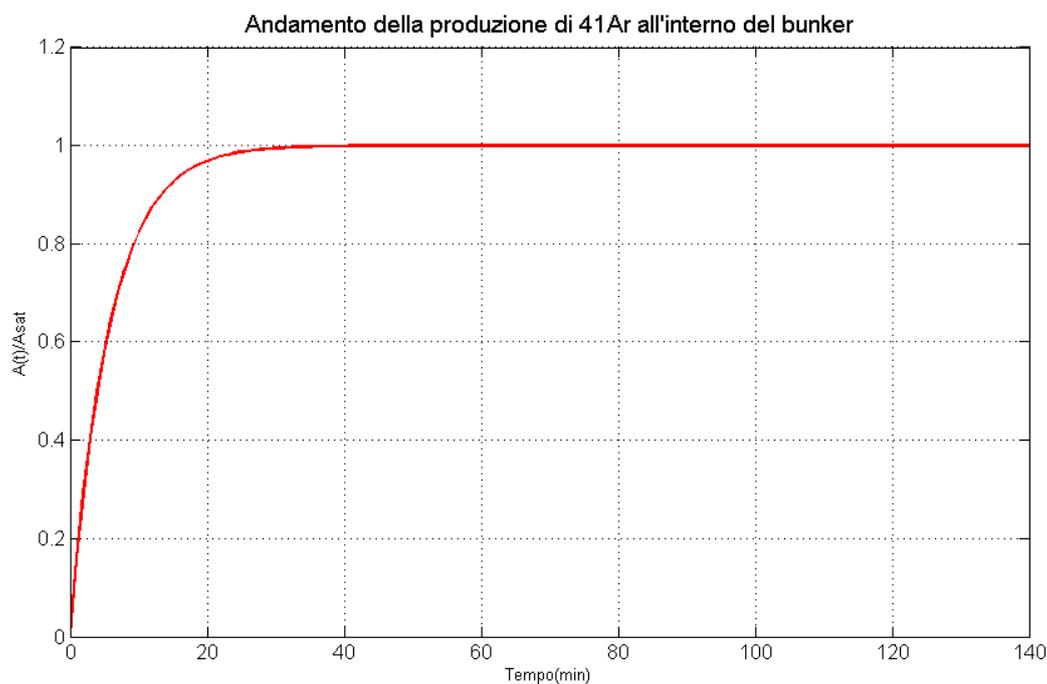


Figura 39: Rapporto tra attività di ^{41}Ar e Attività a saturazione in funzione del tempo

Dal grafico di figura 39, è possibile concludere che la condizione di saturazione è sicuramente raggiunta dopo un intervallo di 60 minuti circa e quindi adeguato per l'inizio del campionamento.

L'orario stabilito per la fine del campionamento è stato impostato alle ore 07:45, in modo tale, attraverso il flussaggio continuo durante il tempo di prelievo, da permettere un riempimento completo del beaker con aria rappresentativa di quella proveniente dalla specifica sede.

Conclusa la procedura di ogni campionamento per ognuno dei punti di misura, il beaker di Marinelli è stato chiuso mediante il sistema di valvole a tre vie e portato nel laboratorio del Servizio di Fisica Sanitaria per eseguire la misurazione con la spettrometria gamma di caratteristiche già discusse nel capitolo precedente.

Tutti i campioni sono stati analizzati impostando un tempo di acquisizione pari a 3600 secondi (1 ora).

Capitolo 6

Risultati

Nel capitolo 6 verranno presentati i risultati delle prove sperimentali effettuate; in particolare si farà riferimento ai valori ottenuti nelle misurazioni nei diversi punti di campionamento: interno del bunker, condotto dell'aria prima e dopo il filtro. Inoltre, verrà confrontato il fattore di diluizione F_1 ottenuto con le differenti metodiche adottate e valutato l'effetto del filtro mediante la stima del fattore F_2 . Infine, sulla base delle misurazioni eseguite, si darà una valutazione sull'eventuale impatto radiologico dovuto al rilascio di ^{41}Ar nell'ambiente circostante.

6.1 Stima del parametro m all'interno del bunker

6.1.1 Risultati di Y_{sat} in aria ferma

È stato eseguito un set di due misurazioni per ogni punto di misura (figura 34) per un totale di otto campionamenti; come previsto, in tutti i campioni analizzati, l'unico radionuclide identificato è stato l' ^{41}Ar .

Un tipico spettro ottenuto nell'analisi con la spettrometria gamma è rappresentato in figura 40.

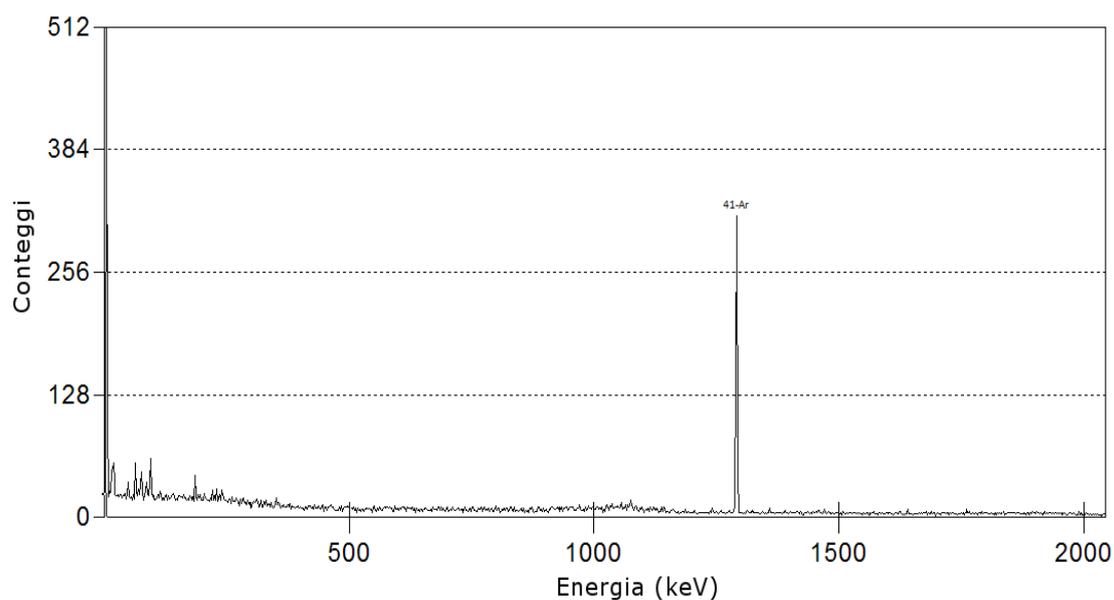


Figura 40: Tipico spettro ottenuto di un beaker di Marinelli riempito d'aria posto dentro il bunker del ciclotrone

Mediante il software *Genie 2000* è stata calcolata l'attività di ^{41}Ar presente all'interno di ogni campione in riferimento al tempo di fine bombardamento (*EOB - End of Beam*); i risultati ottenuti sono riportati in tabella 9.

Posizione	Giorno	Orario di fine bombardamento	Tempo di irraggiamento (minuti)	Attività a <i>EOB</i> (Bq)
1	20/10/2015	07:47:10	104	(101 ± 5)
	12/02/2016	07:51:14	102	(99 ± 5)
2	26/01/2016	07:41:13	99	(97 ± 5)
	02/02/2016	07:46:19	90	(105 ± 5)
3	03/02/2016	07:54:29	105	(115 ± 6)
	04/02/2016	07:48:36	109	(120 ± 7)
4	10/02/2016	07:48:42	104	(128 ± 7)
	11/02/2016	07:37:20	91	(123 ± 6)

Tabella 9: Valori di attività di ^{41}Ar misurati in ogni campione

L'incertezza associata ad ogni misurazione è stata calcolata direttamente dal software mediante la formula definita nell'equazione 4.7.

Considerando i parametri tipici di ciascun irraggiamento del ciclotrone, tra cui il tempo di irraggiamento e la corrente del fascio, per ogni misurazione è stato calcolato il valore di yield a saturazione in aria ferma normalizzato per il volume del beaker mediante l'equazione 6.1.

$$Y_{sat} = \frac{A(t_{EOB})}{I \cdot V_{beak}} \cdot \frac{1}{[1 - e^{-\lambda \cdot t_{EOB}}]} \quad (6.1)$$

dove:

- $V_{beak} = (1.41 \pm 0.03) dm^3$ ed è lo stesso per tutte le misurazioni.
- $\lambda = \ln(2)/T_{1/2}$ è la costante di decadimento del ^{41}Ar con $T_{1/2} = 109.34 \text{ min}$.

I risultati ottenuti sono riportati in tabella 10.

Posizione	Corrente (μA)	Tempo di irraggiamento (minuti)	Attività a EOB (Bq)	Y_{sat} [Bq/ ($\mu A \cdot dm^3$)]
1	(54 \pm 3)	104	(101 \pm 5)	(2.7 \pm 0.2)
	(55 \pm 3)	102	(99 \pm 5)	(2.7 \pm 0.2)
2	(58 \pm 3)	99	(97 \pm 5)	(2.5 \pm 0.2)
	(57 \pm 3)	90	(105 \pm 5)	(3.0 \pm 0.2)
3	(54 \pm 3)	105	(115 \pm 6)	(3.1 \pm 0.2)
	(54 \pm 3)	109	(120 \pm 7)	(3.2 \pm 0.3)
4	(54 \pm 3)	104	(128 \pm 7)	(3.5 \pm 0.3)
	(54 \pm 3)	91	(123 \pm 6)	(3.7 \pm 0.3)

Tabella 10: Valori di Y_{sat} in aria ferma normalizzati per il volume del beaker

in cui:

- l'incertezza associata alla corrente del fascio è pari al 5% del valore.
- L'incertezza associata allo yield a saturazione in aria ferma di ogni campione è stata calcolata propagando l'errore tramite il metodo delle derivate parziali, tenendo conto delle incertezze della corrente del fascio, del volume del beaker e dell'attività misurata; sono state trascurate le incertezze associate alla costante di decadimento e al tempo di irraggiamento.

$$\sigma_{Y_{sat}} = \sqrt{\left(\frac{\partial Y_{sat}}{\partial A(t_{EOB})} \cdot \sigma_{A(t_{EOB})}\right)^2 + \left(\frac{\partial Y_{sat}}{\partial I} \cdot \sigma_I\right)^2 + \left(\frac{\partial Y_{sat}}{\partial V_{beak}} \cdot \sigma_{V_{beak}}\right)^2} \quad (6.2)$$

Il valore medio di Y_{sat} delle misure di tabella 10 è:

$$\overline{Y_{sat}} = (3.0 \pm 0.4) \frac{Bq}{dm^3 \cdot \mu A} \quad (6.3)$$

dove come incertezza associata al valore medio è stata considerata la deviazione standard delle misurazioni.

Tale risultato è in perfetto accordo, entro le incertezze sperimentali, con quello ottenuto nel lavoro eseguito in precedenza (A. Infantino [7]).

6.1.2 Campionamenti all'interno del bunker

All'interno del bunker, nel punto B, sono stati eseguiti 6 campionamenti d'aria mediante il sistema di campionamento; come previsto, in tutti i campioni analizzati, l'unico radionuclide identificato è l' ^{41}Ar .

Un tipico spettro ottenuto nell'analisi con la spettrometria gamma è rappresentato in figura 41.

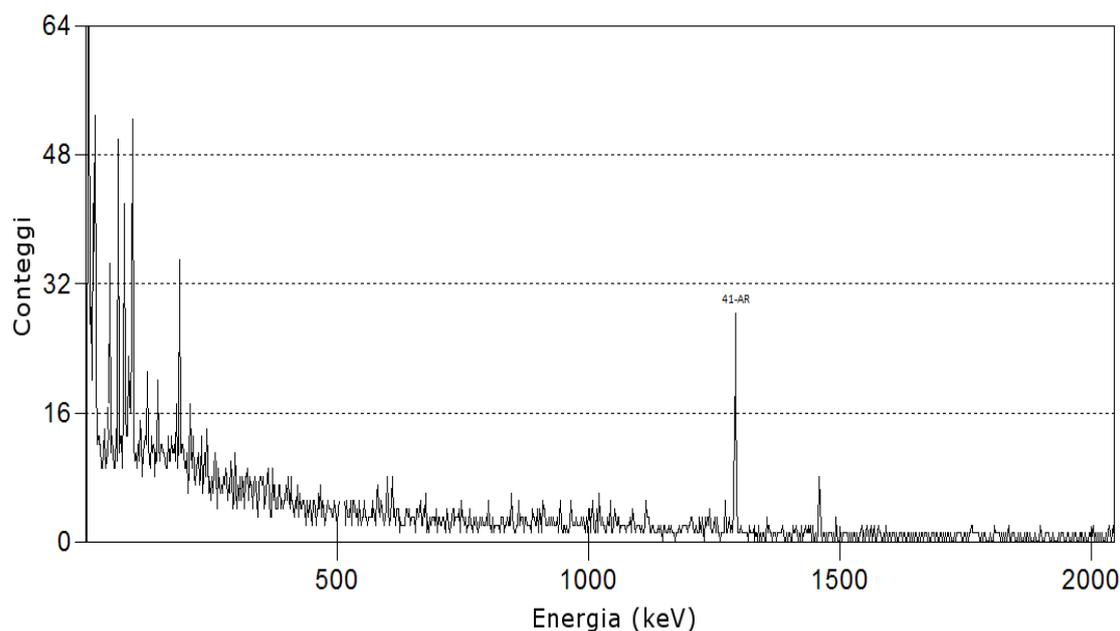


Figura 41: Tipico spettro ottenuto per i prelievi d'aria all'interno del bunker

Nello spettro, oltre ad essere presente il picco dell' ^{41}Ar , sono presenti ulteriori picchi; tali picchi sono caratteristici di radionuclidi che compongono il fondo naturale come: ^{214}Bi (emissione gamma a 609.34 keV), ^{40}K (emissione gamma a 1460.80 keV) ed altri con picchi di emissione a basse energie.

Mediante il software *Genie 2000* è stata calcolata l'attività di ^{41}Ar presente all'interno di ogni campione in riferimento al tempo di fine bombardamento (*EOB*) normalizzata per il volume del beaker.

I risultati ottenuti sono riportati in tabella 11.

Giorno	Corrente del fascio (μA)	Tempo di irraggiamento (minuti)	$A(t_{EOB})/V_{beak}$ (Bq/dm^3)
18/01/2016	(58 ± 3)	101	(5.0 ± 0.5)
19/01/2016	(59 ± 3)	102	(5.3 ± 0.4)
20/01/2016	(58 ± 3)	81	(5.2 ± 0.5)
22/01/2016	(58 ± 3)	89	(4.9 ± 0.5)
25/01/2016	(54 ± 3)	104	(4.9 ± 0.4)
02/03/2016	(54 ± 3)	101	(4.7 ± 0.4)

Tabella 11: Valori sperimentali di $A(t_{eob})/V_{beak}$ di ogni campione

dove:

- $V_{beak} = (1.41 \pm 0.03) \text{ dm}^3$
- L'incertezza associata alla corrente del fascio è pari al 5% del valore.
- L'incertezza associata all'attività a tempo di fine bombardamento normalizzata per il volume del beaker è stata calcolata propagando l'errore. Inoltre è stato considerato un errore sistematico di campionamento del 3%.

$$\sigma_{A(t_{EOB})/V_{beak}} = A(t_{EOB})/V_{beak} \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{A(t_{EOB})}}{A(t_{EOB})}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{V_{beak}}}{V_{beak}}\right)^2 + (err_{sist})^2} \quad (6.4)$$

Sulla base delle misure eseguite e del parametro di Y_{sat} in aria ferma calcolato precedentemente, per ognuno dei campionamenti è stato stimato il fattore m (ricambi d'aria/ora) dell'interno del bunker come soluzione dell'equazione 5.2. Poichè l'equazione non è risolvibile con i metodi standard risolutivi è stata data una soluzione mediante il metodo numerico risolutivo di Newton (o delle tangenti).

I valori ottenuti sono riportati in tabella 12.

Giorno	m (ricambi/ora)
18/01/2016	(13.0 ± 0.7)
19/01/2016	(12.1 ± 0.6)
20/01/2016	(12.3 ± 0.7)
22/01/2016	(13.1 ± 0.7)
25/01/2016	(12.2 ± 0.5)
02/03/2016	(12.5 ± 0.6)

Tabella 12: Valori stimati di m all'interno del bunker per ogni campionamento

L'incertezza associata ad ogni valore di m è stata calcolata considerando i valori minimi e massimi della Y_{sat} in aria ferma definiti dall'intervallo dall'errore associato.

La stima del valor medio di m dell'interno bunker risulta essere:

$$m = (12.5 \pm 0.5) \text{ ricambi/ora} \quad (6.5)$$

dove come incertezza al valore medio è stata associata metà della differenza tra il valore massimo e il valore minimo del campione.

6.2 Stima della portata di estrazione d'aria dal bunker e fattore F_1

La stima della portata di estrazione d'aria dal bunker è stata eseguita avendo a disposizione il volume del bunker e i ricambi d'ora all'interno del bunker m :

- Volume bunker effettivo (senza ciclone) = $(102.0 \pm 2.0) m^3$
- $m = (12.5 \pm 0.5) \text{ ricambi/ora}$

Il risultato ottenuto è:

$$P_{estr.bunker} = m \cdot V_{bunk} = (1275 \pm 60) \text{ m}^3/h \quad (6.6)$$

dove l'incertezza associata è stata calcolata mediante la formula:

$$\sigma_{P_{estr.bunker}} = P_{estr.bunker} \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_m}{m}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{V_{bunk}}}{V_{bunk}}\right)^2} \quad (6.7)$$

Sulla base del valore ottenuto, è stato stimato il fattore F_1 di diluizione che descrive la diminuzione di attività nel condotto di estrazione prima del filtro.

La portata di estrazione dell'aria nel camino è pari a $(2390 \pm 120) \text{ m}^3/h$ e quindi la stima di F_1 risulta essere

$$F_1 = \frac{P_{estr.bunk}}{P_{estr.camino}} = (0.53 \pm 0.04) \quad (6.8)$$

dove l'incertezza associata è stata calcolata secondo la formula:

$$\sigma_{F_1} = F_1 \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{P_{estr.bunk}}}{P_{estr.bunk}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{P_{estr.camino}}}{P_{estr.camino}}\right)^2} \quad (6.9)$$

6.3 Stima del fattore $F1$ dai campionamenti prima del filtro

6.3.1 Stima dello Y'_{sat} per le misurazioni prima del filtro

All'interno del condotto di estrazione dell'aria prima del filtro (punto C) sono stati eseguiti 12 prelievi mediante il sistema di campionamento; in tutti i campioni analizzati, l'unico radionuclide identificato è stato l' ^{41}Ar .

Un tipico spettro ottenuto nell'analisi con la spettrometria gamma è rappresentato in figura 42.

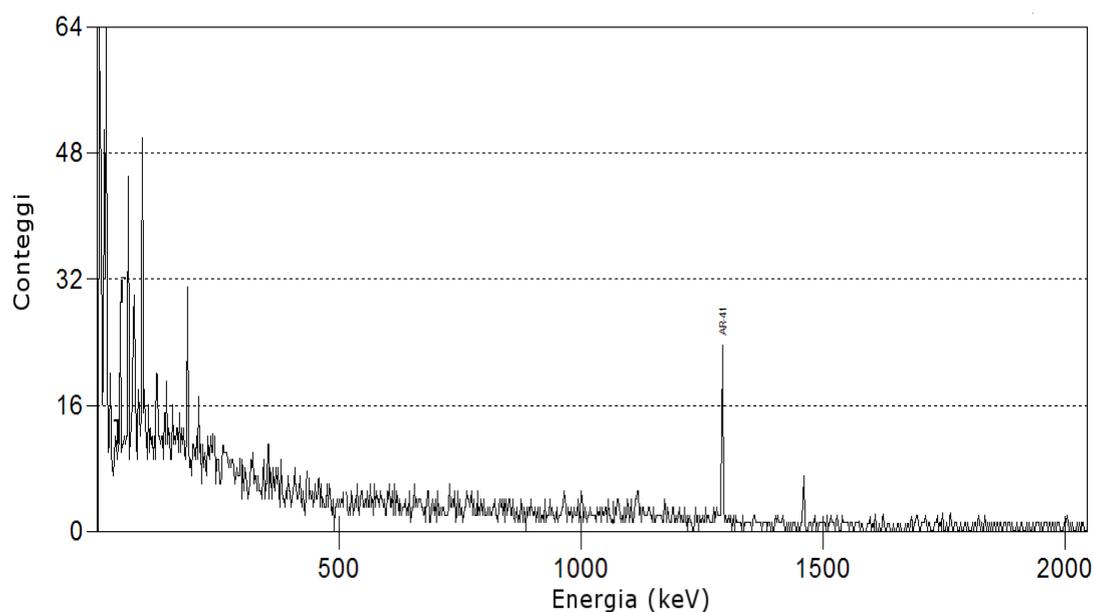


Figura 42: Tipico spettro ottenuto per i prelievi d'aria nel condotto di estrazione prima del filtro

Mediante il software *Genie 2000* è stata calcolata l'attività di ^{41}Ar presente all'interno di ogni campione in riferimento al tempo di fine bombardamento (*EOB*).

I risultati ottenuti sono riportati in tabella 13.

Giorno	Corrente del fascio (μA)	Orario di fine bombardamento	Tempo di irraggiamento (minuti)	Attività ad <i>EOB</i> (Bq)
04/12/2015	(57 \pm 3)	07:57:45	107	(2.6 \pm 0.7)
09/12/2015	(53 \pm 3)	07:53:26	94	(3.6 \pm 0.6)
10/12/2015	(54 \pm 3)	07:51:40	94	(2.9 \pm 0.4)
11/12/2015	(59 \pm 3)	07:54:45	106	(4.7 \pm 0.6)
21/12/2015	(59 \pm 3)	07:50:41	96	(2.7 \pm 0.5)
23/12/2015	(57 \pm 3)	07:55:20	97	(3.8 \pm 0.4)
08/01/2016	(58 \pm 3)	07:52:29	100	(4.2 \pm 0.5)
11/01/2016	(59 \pm 3)	07:54:12	90	(4.3 \pm 0.5)
12/01/2016	(59 \pm 3)	08:01:20	111	(3.7 \pm 0.5)
13/01/2016	(54 \pm 3)	07:58:15	105	(3.6 \pm 0.5)
14/01/2016	(59 \pm 3)	07:46:08	104	(4.2 \pm 0.6)
15/01/2016	(59 \pm 3)	07:46:00	103	(3.3 \pm 0.6)

Tabella 13: Valori di attività di ^{41}Ar misurati in ogni campione

in cui:

- l'incertezza associata alla corrente del fascio è pari al 5% del valore.
- L'incertezza associata all'attività di ^{41}Ar presente in ogni campione è stata calcolata direttamente dal software Genie 2000 mediante la formula definita nell'equazione 4.7.

Per ogni misurazione è stato calcolato lo yield a saturazione in $\text{Bq}/(\text{dm}^3 \cdot \mu\text{A})$ mediante la formula:

$$Y'_{sat} = \frac{A(t_{EOB})}{I \cdot V_{beak}} \cdot \frac{1}{[1 - e^{-(\lambda+m) \cdot t_{EOB}}]} \quad (6.10)$$

dove:

- $V_{beak} = (1.41 \pm 0.03)dm^3$ ed è lo stesso per tutti campionamenti
- $m = (12.5 \pm 0.5)$ ricambi/ora.

I valori ottenuti sono riportati in tabella 14.

Giorno	Corrente del fascio (μA)	Tempo di irraggiamento (min)	Y'_{sat} [Bq/ ($\mu A \cdot dm^3$)]
04/12/2015	(57 \pm 3)	107	(0.032 \pm 0.009)
09/12/2015	(53 \pm 3)	94	(0.047 \pm 0.009)
10/12/2015	(54 \pm 3)	94	(0.038 \pm 0.006)
11/12/2015	(59 \pm 3)	106	(0.056 \pm 0.008)
21/12/2015	(59 \pm 3)	96	(0.033 \pm 0.006)
23/12/2015	(57 \pm 3)	97	(0.047 \pm 0.006)
08/01/2016	(58 \pm 3)	100	(0.051 \pm 0.007)
11/01/2016	(59 \pm 3)	90	(0.052 \pm 0.007)
12/01/2016	(59 \pm 3)	111	(0.045 \pm 0.007)
13/01/2016	(54 \pm 3)	105	(0.047 \pm 0.007)
14/01/2016	(59 \pm 3)	104	(0.051 \pm 0.008)
15/01/2016	(59 \pm 3)	103	(0.040 \pm 0.007)

Tabella 14: Valori ottenuti di Y'_{sat} per le misurazioni nel condotto di estrazione prima del filtro

dove l'incertezza associata allo yield a saturazione di ogni misura è stata calcolata propagando l'errore tramite il metodo delle derivate parziali, tenendo conto delle incertezze della corrente del fascio, del volume del beaker, dell'attività misurata e del fattore m ; non è stata considerata l'incertezza del tempo di irraggiamento poichè trascurabile.

Matematicamente:

$$\sigma_{Y'_{sat. mis}} = \sqrt{\left(\frac{\partial Y'_{sat}}{\partial A(t_{EOB})} \cdot \sigma_{A(t_{EOB})}\right)^2 + \left(\frac{\partial Y'_{sat}}{\partial I} \cdot \sigma_I\right)^2 + \left(\frac{\partial Y'_{sat}}{\partial V_{beak}} \cdot \sigma_{V_{beak}}\right)^2 + \left(\frac{\partial Y'_{sat}}{\partial m} \cdot \sigma_m\right)^2} \quad (6.11)$$

Inoltre è stato considerato un errore sistematico sul campionamento del 3%.

$$\sigma_{Y'_{sat}} = Y'_{sat} \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{Y'_{sat.mis}}}{Y'_{sat}}\right)^2 + (err_{sist})^2} \quad (6.12)$$

Il valore medio stimato di Y'_{sat} delle misure di tabella 14 è:

$$\overline{Y'_{sat}} = (0.045 \pm 0.002) \frac{Bq}{dm^3 \cdot \mu A} \quad (6.13)$$

dove come incertezza è stato considerato l'errore standard della media.

6.3.2 Stima del fattore F_I

Sulla base dei valori ottenuti sperimentalmente, è stata eseguita una stima del fattore F_I in modo da poter essere confrontata con il valore stimato precedentemente con l'altro tipo di metodica.

Per il calcolo del fattore F_I sono stati utilizzati i seguenti valori sperimentali:

- $m = (12.5 \pm 0.5)$ ricambi/ora
- Y_{sat} in aria ferma = $(3.0 \pm 0.4) Bq/dm^3 \cdot \mu A$
- Y'_{sat} prima del filtro = $(0.045 \pm 0.002) Bq/dm^3 \cdot \mu A$

La stima del fattore F_1 è:

$$F_1 = \frac{Y'_{sat}}{Y_{sat}} \cdot \frac{\lambda + m}{\lambda} = (0.51 \pm 0.07) \quad (6.14)$$

dove l'incertezza associata è stata calcolata propagando l'errore tramite il metodo delle derivate parziali (eq. 6.15) tenendo conto delle incertezze di tutte le grandezze e trascurando quella della costante di decadimento dell' ^{41}Ar .

$$\sigma_{F_1} = \sqrt{\left(\frac{\partial F_1}{\partial Y'_{sat}} \cdot \sigma_{Y'_{sat}}\right)^2 + \left(\frac{\partial F_1}{\partial Y_{sat}} \cdot \sigma_{Y_{sat}}\right)^2 + \left(\frac{\partial F_1}{\partial m} \cdot \sigma_m\right)^2} \quad (6.15)$$

Il fattore di diluizione F_1 stimato risulta essere compatibile, entro le incertezze, con quello trovato con l'altra metodica e quindi convalida il ragionamento fatto; sulla base di questo confronto è possibile affermare che la concentrazione di attività nel condotto di estrazione prima del filtro diminuisce effettivamente di un fattore F_1 rispetto all'interno del bunker.

6.4 Stima del fattore $F_1 \cdot F_2$ dai campionamenti dopo il filtro

6.4.1 Stima dello Y'_{sat} per le misurazioni dopo il filtro

All'interno del condotto di estrazione dell'aria dopo il filtro (punto D) sono stati eseguiti 13 prelievi mediante il sistema di campionamento; in tutti i campioni analizzati, l'unico radionuclide identificato è stato l' ^{41}Ar .

Un tipico spettro ottenuto nell'analisi con la spettrometria gamma è rappresentato in figura 43.

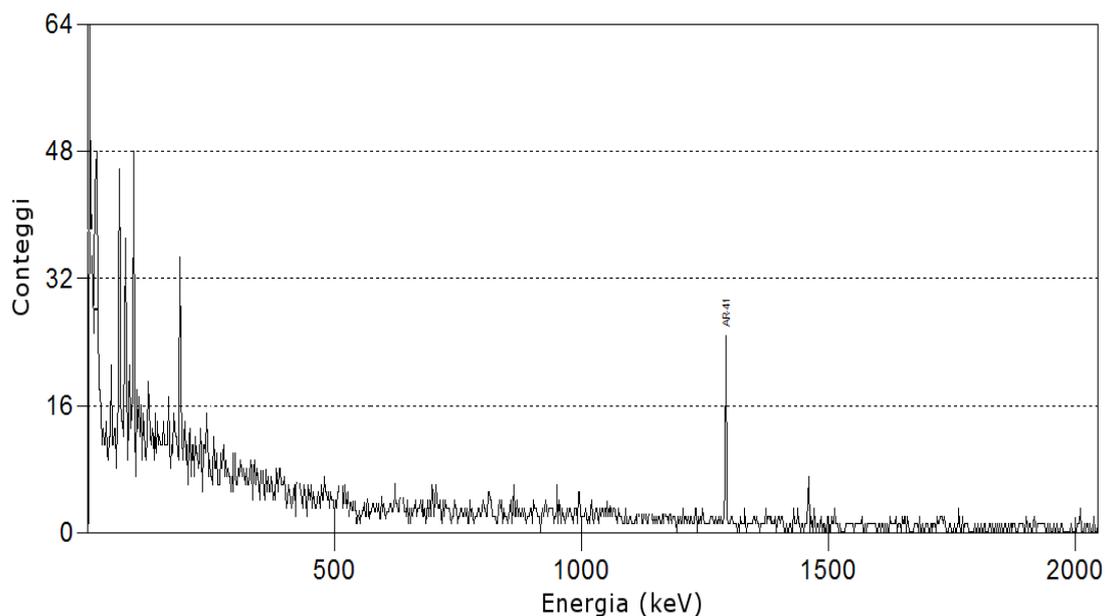


Figura 43: Tipico spettro ottenuto per i prelievi d'aria nel condotto di estrazione dopo il filtro

Mediante il software *Genie 2000* è stata calcolata l'attività di ^{41}Ar presente all'interno di ogni campione in riferimento al tempo di fine bombardamento (*EOB*).

I risultati ottenuti sono riportati in tabella 15.

Giorno	Corrente del fascio (μA)	Orario di fine bombardamento	Tempo di irraggiamento (minuti)	Attività ad <i>EOB</i> (Bq)
30/10/2015	(59 \pm 3)	07:54:24	110	(4.6 \pm 0.5)
06/11/2015	(58 \pm 3)	07:53:59	99	(4.2 \pm 0.5)
09/11/2015	(53 \pm 3)	07:49:24	85	(3.8 \pm 0.4)
10/11/2015	(59 \pm 3)	07:54:34	103	(4.2 \pm 0.5)
11/11/2015	(53 \pm 3)	07:46:22	102	(2.7 \pm 0.5)
12/11/2015	(58 \pm 3)	07:49:15	87	(2.9 \pm 0.5)
17/11/2015	(59 \pm 3)	07:52:26	99	(4.3 \pm 0.6)
18/11/2015	(54 \pm 3)	07:46:32	95	(2.9 \pm 0.4)
20/11/2015	(58 \pm 3)	07:46:22	99	(3.6 \pm 0.6)
23/11/2015	(47 \pm 2)	07:54:45	105	(2.5 \pm 0.6)
25/11/2015	(58 \pm 3)	07:55:59	84	(3.2 \pm 0.5)
26/11/2015	(53 \pm 3)	07:57:14	98	(3.1 \pm 0.5)
03/12/2015	(57 \pm 3)	07:54:24	102	(3.7 \pm 0.5)

Tabella 15: Valori di attività di ^{41}Ar misurati in ogni campione

in cui:

- l'incertezza associata alla corrente del fascio è pari al 5% del valore.
- L'incertezza associata all'attività di ^{41}Ar presente in ogni campione è stata calcolata direttamente dal software *Genie 2000* mediante la formula definita nell'equazione 4.7.

Seguendo la metodica del paragrafo precedente, per ogni misurazione è stato calcolato lo yield a saturazione in $Bq/(dm^3 \cdot \mu A)$ attraverso l'equazione 6.10 dove:

- $V_{beak} = (1.41 \pm 0.03)dm^3$ ed è lo stesso per tutti campionamenti
- $m = (12.5 \pm 0.5)$ ricambi/ora.

I risultati ottenuti sono riportati nella seguente tabella:

Giorno	Corrente del fascio (μA)	Tempo di irraggiamento (min)	Y'_{sat} [Bq/ ($\mu A \cdot dm^3$)]
30/10/2015	(59 ± 3)	110	(0.055 ± 0.007)
06/11/2015	(58 ± 3)	99	(0.051 ± 0.007)
09/11/2015	(53 ± 3)	85	(0.050 ± 0.007)
10/11/2015	(59 ± 3)	103	(0.050 ± 0.007)
11/11/2015	(53 ± 3)	102	(0.036 ± 0.007)
12/11/2015	(58 ± 3)	87	(0.035 ± 0.007)
17/11/2015	(59 ± 3)	99	(0.052 ± 0.008)
18/11/2015	(54 ± 3)	95	(0.038 ± 0.006)
20/11/2015	(58 ± 3)	99	(0.044 ± 0.007)
23/11/2015	(47 ± 2)	105	(0.038 ± 0.009)
25/11/2015	(58 ± 3)	84	(0.039 ± 0.006)
26/11/2015	(53 ± 3)	98	(0.042 ± 0.007)
03/12/2015	(57 ± 3)	102	(0.046 ± 0.007)

Tabella 16: Valori ottenuti di Y'_{sat} per le misurazioni nel condotto di estrazione dopo del filtro

dove l'incertezza associata allo yield a saturazione di ogni misura è stata calcolata propagando l'errore tramite il metodo delle derivate parziali, tenendo in considerazione le incertezze associate alla corrente del fascio, al volume del beaker,

all'attività misurata e al fattore m ; non è stata considerata l'incertezza del tempo di irraggiamento poichè trascurabile. Matematicamente:

$$\sigma_{Y'_{sat.mis}} = \sqrt{\left(\frac{\partial Y'_{sat}}{\partial A(t_{EOB})} \cdot \sigma_{A(t_{EOB})}\right)^2 + \left(\frac{\partial Y'_{sat}}{\partial I} \cdot \sigma_I\right)^2 + \left(\frac{\partial Y'_{sat}}{\partial V_{beak}} \cdot \sigma_{V_{beak}}\right)^2 + \left(\frac{\partial Y'_{sat}}{\partial m} \cdot \sigma_m\right)^2} \quad (6.16)$$

Inoltre è stato considerato un errore sistematico sul campionamento del 3%.

$$\sigma_{Y'_{sat}} = Y'_{sat} \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{Y'_{sat.mis}}}{Y'_{sat}}\right)^2 + (err_{sist})^2} \quad (6.17)$$

Il valore medio stimato di Y'_{sat} delle misure di tabella 16 è:

$$\overline{Y'_{sat}} = (0.044 \pm 0.002) \frac{Bq}{dm^3 \cdot \mu A} \quad (6.18)$$

dove come incertezza è stato considerato l'errore standard della media.

6.4.2 Stima del fattore $F_1 \cdot F_2$

Sulla base dei valori ottenuti sperimentalmente, è stata eseguita una stima del fattore $F_1 \cdot F_2$ in modo da valutare l'effetto di intrappolamento di attività nel filtro.

Per il calcolo di questo fattore sono stati utilizzati i seguenti valori sperimentali:

- $m = (12.5 \pm 0.5)$ ricambi/ora
- Y_{sat} in aria ferma = $(3.0 \pm 0.4) Bq/dm^3 \cdot \mu A$
- Y'_{sat} dopo il filtro = $(0.044 \pm 0.002) Bq/dm^3 \cdot \mu A$

La stima risulta essere:

$$F_1 \cdot F_2 = \frac{Y'_{sat}}{Y_{sat}} \cdot \frac{\lambda + m}{\lambda} = (0.50 \pm 0.07) \quad (6.19)$$

dove l'incertezza associata è stata calcolata propagando l'errore tramite il metodo delle derivate parziali (eq. 6.20) tenendo conto delle incertezze di tutte le grandezze e trascurando quella della costante di decadimento dell' ^{41}Ar .

$$\sigma_{F_1 \cdot F_2} = \sqrt{\left(\frac{\partial F_1 \cdot F_2}{\partial Y'_{sat}} \cdot \sigma_{Y'_{sat}}\right)^2 + \left(\frac{\partial F_1 \cdot F_2}{\partial Y_{sat}} \cdot \sigma_{Y_{sat}}\right)^2 + \left(\frac{\partial F_1 \cdot F_2}{\partial m} \cdot \sigma_m\right)^2} \quad (6.20)$$

Il fattore stimato risulta essere compatibile, entro le incertezze, con il valore di F_1 stimato con le altre due metodiche sperimentali.

Dunque è possibile concludere che l'effetto di intrappolamento del filtro sull' ^{41}Ar è sostanzialmente nullo sulla base delle misurazioni eseguite.

6.5 Rilascio di ^{41}Ar nell'ambiente

La formazione di ^{41}Ar , durante l'irraggiamento del ciclotrone *GE PETtrace* installato presso il Policlinico Sant'Orsola-Malpighi per la produzione di ^{18}F , è stata studiata in modo da stimare il rilascio di questo radionuclide in atmosfera e valutare un possibile impatto radiologico nelle zone limitrofe alla struttura.

Sulla base dei campionamenti effettuati nel condotto di estrazione dell'aria in prossimità del bocchettone di uscita, la concentrazione di attività di ^{41}Ar , per un tipico irraggiamento della durata di un'ora ad una corrente di circa $60 \mu\text{A}$, è risultata essere di circa 6 MBq .

Una valutazione dell'impatto radiologico del rilascio di ^{41}Ar in atmosfera è stata eseguita attraverso il software *Hot Spot 3.0.2* (Homann & Aluzzi [13]). Tale software, rilasciato dai laboratori del *Department of Energy* degli USA ed ampiamente validato,

permette di valutare l'impatto ambientale di un rilascio in atmosfera di materiali radioattivi, secondo diversi modelli, come quelli di rilascio aeriforme a pennacchio o di rilascio a seguito di incendio. In particolare, nel nostro caso si è utilizzato il modello a pennacchio gaussiano e, nel codice del software, sono inclusi i coefficienti di dose per irraggiamento, incorporazione e risospensione basati sulle pubblicazioni ICRP ([14]).

Inoltre, sono state considerate le condizioni meteorologiche prevalenti nell'area bolognese, sulla base delle rivelazioni eseguite dall'Agenzia Regionale per la Protezione dell'Ambiente (ARPA) dell'Emilia Romagna.

La figura 44 mostra graficamente i risultati per la condizione di riferimento media, ovvero caratterizzata da stabilità atmosferica (Classe D di Pasquill-Gifford, [15]) e una velocità del vento alla quota di rilascio pari a 1 m/s.

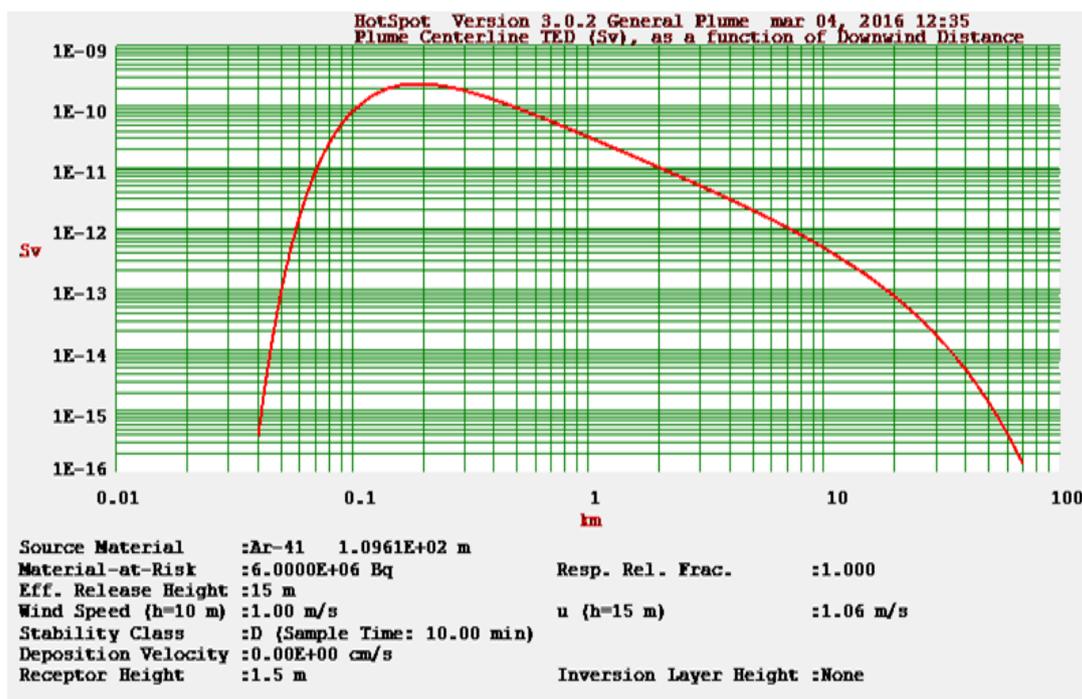


Figura 44: Valutazione dell'impatto radiologico del rilascio di ⁴¹Ar in atmosfera per un generico individuo della popolazione per un irraggiamento.

Si può vedere come i risultati siano espressi come *Dose Efficace Totale (Total Effective Dose - TED)*, ovvero risultante dall'insieme di irraggiamento, incorporazione ed effetti di risospensione, in funzione della distanza dal punto di emissione. Il valore stimato del massimo valore di *TED* è di $2.39 \cdot 10^{-10}$ Sv per un rilascio tipico di un'ora con attività totale rilasciata pari a 6 MBq, ovvero l'attività risultante dalle misure di concentrazione illustrate in questo lavoro.

Ora, il carico di lavoro totale di un ciclotrone molto utilizzato come quello dell'Ospedale Sant'Orsola-Malpighi, è inferiore a 800 irraggiamenti all'anno e ciò include, non solo le produzioni prolungate di alta attività, ma anche i brevi bombardamenti di prova e di manutenzione (svolti a basse correnti di fascio).

Quindi, anche assumendo che tutti i bombardamenti siano svolti per almeno un'ora ad alta corrente e prevedano un rilascio come quello citato, ipotesi del tutto cautelativa, ne risulta che il valore massimo di *TED* per il gruppo critico della popolazione, ovvero i soggetti più esposti, è di $0.19 \mu\text{Sv/anno}$.

Tale valore di dose si può ritenere trascurabile in confronto al livello di "non rilevanza radiologica", ovvero il valore soglia di $10 \mu\text{Sv/anno}$ definito dalla Normativa di legge (Dlgs n.230/95).

L'esercizio di un ciclotrone come quello dell'Ospedale Sant'Orsola-Malpighi ha quindi una ridotta ricaduta su ciascun individuo della popolazione. Tenuto conto della vasta gamma di benefici che la disponibilità della PET comporta per la popolazione, si capisce come tale pratica sia considerata come del tutto giustificata.

Conclusioni

Nell'utilizzo di ciclotroni per uso biomedico, l'attivazione dell'aria durante l'irraggiamento e il suo conseguente rilascio nell'ambiente esterno rappresenta una delle problematiche nell'ambito della radioprotezione. In particolare, durante la normale routine di produzione di ^{18}F mediante ciclotrone, il processo più rilevante di attivazione dell'aria è la formazione di ^{41}Ar ($T_{1/2}=109.34$ minuti, $Yield \beta = 100\%$). Questo processo è causato dall'interazione dei neutroni secondari prodotti durante l'irraggiamento con gli atomi di ^{40}Ar presenti nell'ambiente.

In questo lavoro di tesi, svolto presso il Policlinico Sant'Orsola-Malpighi di Bologna, per caratterizzare la variazione della concentrazione di attività di ^{41}Ar nel passaggio dal bunker all'ambiente esterno, è stata effettuata un'estesa campagna di misurazioni in diverse sedi lungo il seguente percorso: interno del bunker, condotto di estrazione dell'aria prima e dopo il filtro *HEPA*.

Le misurazioni eseguite all'interno del bunker hanno permesso il calcolo dello yield a saturazione in aria ferma e la quantificazione della concentrazione di attività di ^{41}Ar all'interno del bunker con aria in movimento. Lo yield a saturazione in aria ferma è risultato essere pari a $(3.0 \pm 0.4) Bq/(dm^3 \cdot \mu A)$ confermando il risultato di uno studio analogo precedente (A. Infantino [7]). I valori ottenuti della concentrazione di attività di ^{41}Ar e lo yield a saturazione in aria ferma sono stati utilizzati per stimare il numero di ricambi d'aria per unità di tempo all'interno del bunker; ne è risultato un valore pari a $(12.5 \pm 0.5) ricambi/h$.

Tale grandezza è servita per stimare sperimentalmente la portata di estrazione dell'aria dal bunker stesso; ne è derivato un valore di $(1275 \pm 60) m^3/h$.

Tenendo conto che l'aria all'interno del condotto di estrazione nel camino, oltre a provenire dal bunker, deriva anche dal vano posteriore del Laboratorio di Sintesi dei

Radiofarmaci, è ragionevole affermare che la concentrazione di attività di ^{41}Ar risulti diminuita rispetto a quella del bunker. Quindi dal rapporto tra il valore stimato della portata di estrazione del bunker e quello, noto dai dati tecnici, della portata di estrazione del camino (pari a $2390 \text{ m}^3/\text{h}$) è stata calcolata questa diminuzione di attività, denominata fattore di diluizione F_1 . Ne è risultato un valore di (0.53 ± 0.04) .

Per confermare sperimentalmente il valore di F_1 , sono stati analizzati ulteriori campioni d'aria prelevati direttamente all'interno del condotto di estrazione prima del filtro; il valore sperimentale ottenuto è (0.51 ± 0.07) . I due valori trovati risultano compatibili entro le incertezze sperimentali.

Per quanto riguarda i prelievi d'aria all'interno del condotto di estrazione dopo il filtro, le misure sperimentali hanno portato a stimare un'efficacia nulla del filtro *HEPA* per l'intrappolamento di ^{41}Ar . Infatti il prodotto del fattore $F_1 \cdot F_2$, dove F_2 rappresenta l'intrappolamento di radioattività del filtro, è risultato essere uguale a (0.50 ± 0.07) e quindi compatibile, entro le incertezze sperimentali, con i valori di F_1 calcolati con le precedenti metodiche; questo dimostra una efficacia nulla di intrappolamento di ^{41}Ar nel filtro.

Infine, sulla base dei valori sperimentali di attività di ^{41}Ar ottenuti per questo set di misurazioni in prossimità del bocchettone di rilascio nell'ambiente esterno è stato stimato il valore massimo di *TED* (*Dose Efficace Totale*), risultato essere pari a $2.39 \cdot 10^{-10}$ *Sievert* per un'ora di irraggiamento ad una corrente di fascio di $60 \mu\text{A}$.

Considerando che un carico di lavoro di un ciclotrone molto utilizzato, come quello dell'Ospedale Sant'Orsola-Malpighi, sia inferiore agli 800 irraggiamenti all'anno e assumendo che tutti i bombardamenti siano svolti per almeno un'ora ad alta corrente (ipotesi del tutto cautelativa), il valore massimo di *TED* stimato per il gruppo critico della popolazione è risultato essere di $0.19 \mu\text{Sv/anno}$.

Tale valore di dose risulta essere molto inferiore rispetto alla soglia di "non rilevanza radiologica" di $10 \mu\text{Sv/anno}$ definita dalla Normativa legislativa (Dlgs 230/95).

In termini di paragone esplicativo, si può ricordare come anche attività ampiamente accettate e ritenute non radiologicamente preoccupanti, come i voli ad alta quota, comportino livelli di dose dell'ordine di $3 - 5 \mu\text{Sv/ora}$. In conclusione, l'esercizio di un ciclotrone, come quello dell'Ospedale Sant'Orsola-Malpighi, ha quindi una ricaduta su ciascun individuo paragonabile a quella di un volo della durata di pochi minuti.

Tenuto conto della vasta gamma di benefici che la disponibilità della diagnostica PET comporta per la popolazione, si capisce come tale pratica sia considerata del tutto giustificata.

Bibliografia

- [1] J.H. Chao, W.S. Liu, C.Y. Chen, "Estimation of Argon-41 concentrations in the vicinity of a high energy medical accelerator", *Radiation Measurements*, Vol. 42, 2007, pp.1538-1544

- [2] B. Lauritzen, et al.; "Atmospheric dispersion of argon-41 from a nuclear research reactor: measurements and modelling of plume geometry and gamma radiation field", *International Journal of Environment and Pollution* 20(1-6), 2003, pp. 47-54

- [3] C. Birattari, M. Bonardi, A. Ferrari, M. Silari; "Neutron activation of air by a biomedical cyclotron and an assessment of dose to neighbourhood populations", *Radiation Protection Dosimetry* 14, 1985, pp. 311-319

- [4] M. Marengo; "La fisica in Medicina Nucleare"; *Patron Editore*, Bologna 2001

- [5] *The OECD Nuclear Energy Agency (NEA)*, Databank on website, "[http:// www.oecd-nea.org/dbdata/data/mass-evals1995/mass_rmd_mas95.txt](http://www.oecd-nea.org/dbdata/data/mass-evals1995/mass_rmd_mas95.txt)"

- [6] *International Atomic Energy Agency (IAEA)*, Evaluated Nuclear Data File (ENDF), "<http://www.nds.iaea.org/exfor/endl.htm>"

- [7] Infantino, L. Valtieri, G. Cicoria, et al; "Experimental measurement and Monte Carlo assessment of Argon-41 production in a PET cyclotron facility", *Physica Medica*, Volume 31, Dicembre 2015, pp. 991-996
- [8] Infantino; "Advanced aspects of radiation protection in the use of particle accelerators in the medical field", *Università di Bologna, Dottorato di ricerca in Ingegneria Energetica, Nucleare e del Controllo Ambientale*, 2015 Bologna
- [9] *Wikipedia website*, sezione Aria: " <https://it.wikipedia.org/wiki/Aria>"
- [10] IEC, "Nuclear instrumentation-measurement of gamma-ray emission rates of radionuclide - calibration and use of germanium spectrometers", *IEC standard 61452*, Ginevra 1995
- [11] F.L. Bronson; "Validation of the accuracy of the LabSOCS software for mathematical efficiency calibration of Ge detectors for typical laboratory samples", *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 255 No. 1, 2003, pp. 137-141
- [12] S.Y.F. Chu, L.P. Ekstrom, R.B. Firestone, *WWW Table of radioactive Isotopes*, database version 1999, website:"<http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>"
- [13] S.G. Homann, F. Aluzzi; "HOTSPOT Health Physics Codes Version 3.0.2 User'sGuide", LLNL-SM-636474, Livermore: *National Atmospheric Release Advisory Center, Lawrence Livermore National Laboratory*
- [14] *International Commission of Radiological Protection ICRP*: "The 2007 Recommendations of the International Commission on radiological Protection", *ICRP Publication 103*, Ann. ICRP 37 (2-4), 2007
- [15] F. Pasquill; "The estimation of the dispersion of windborne material", *The Meteorological Magazine*, Vol.90 No. 1063, pp. 33-49

- [16] K. Strijckmans; "The isochronous cyclotron: principles and recent developments", *Computerized Medical Imaging and Graphics* 25, 2001, pp. 69-78
- [17] C. Birattari, A. Ferrari, C.J. Parnell, M. Silari; "The environmental release of radioactive gases produced by neutron activation of air with the new Hammersmith cyclotron", *Radiation Protection Dosimetry* 19(3), 1987, pp. 183-186
- [18] K.S. Krane; "Introductory Nuclear Physics", *Wiley*, 1987
- [19] *GE Medical System*; "PETTrace Reference Manual-rev 3", 2004
- [20] *National Institute of Standards and Technology (NIST)* website, "<http://www.nist.gov>"
- [21] "Genie 2000 3.0 Customization Tools Manual", *Canberra Industries, Inc*
- [22] "Genie 2000 3.0 Operations Manual", *Canberra Industries, Inc*
- [23] O.A. Bezshyyko, L.O. Golinka-Bezshyyko, I.M. Kadenko; "Argon Activation in air at medical cyclotron RDS ECLIPSE during production of ^{18}F ", *Problems of atomic science and technology*, n.5 2009, pp.37-39
- [24] K. Biju, C. Sunil, P.K. Sakar; "Estimation of ^{41}Ar production in a 0.1-1.0-GeV proton accelerator vaults using FLUKA Monte Carlo code", *Radiation Protection Dosimetry* 157(3), 2013, pp.437-441
- [25] F. Gutermuth, H. Wildermuth, T. Radon, G. Fehrenbacher; "Radiation impact caused by activation of air from the future GSI accelerator facility FAIR", *Radiation Protection Dosimetry* 115 (1-4), 2005, p. 299
- [26] E. Segrè; "Nuclei e particelle", *Zanichelli editore*, Bologna

- [27] K. Debertin, R.G. Helmer; "Gamma and X-ray spectrometry with semiconductor detectors", *North Holland editore*, 1988
- [28] NCRP, "Radiation Protection for Particle Accelerator Facilities", Bethesda: *National Council on Radiation Protection and Measurements*, NCRP Report n.144,2003