

## Report conclusivo del progetto

### COME - COpper MEasurement

Il progetto COME – COpper MEasurement, approvato in Dotazioni CSN3 ad LNL per l'anno 2016, ha come obiettivo la misura della sezione d'urto della reazione nucleare  $^{70}\text{Zn}(p,x)^{67}\text{Cu}$ . Accordi preliminari con il centro di ricerca e produzione di radionuclidi ARRONAX (*Accelerator for Research in Radiochemistry and Oncology at Nantes Atlantic*) hanno permesso di effettuare cinque irraggiamenti durante l'anno 2016; in Tabella 1 sono riportate le caratteristiche di ogni irraggiamento.

N° Irraggiamento	Data Irraggiamento	Energia Protoni (MeV)	Durata Irraggiamento (s)	Corrente media (nA)
1	23/02/2016	70.3	5390	98.8
2	06/04/2016	56.0	5396	100.4
3	10/05/2016	61.0	4895	110.5
4	07/06/2016	68.0	5406	100.7
5	20/06/2016	48.0	7270	102.5

Tabella 1. Parametri principali degli irraggiamenti effettuati presso il centro ARRONAX (Nantes, Francia)

In ogni turno di misura è stato utilizzato un bersaglio di tipo *stacked-foils* (rappresentazione grafica in Figura 1), in modo da poter ottenere più punti sperimentali a diverse energie in un unico irraggiamento. Ogni bersaglio contiene un primo *target foil* di  $^{70}\text{Zn}$ , seguito da un *foil* che ha funzione di *monitor* e *catcher* (solitamente in alluminio, tranne per il quinto irraggiamento in cui si sono utilizzati *foils monitor* in nichel), un *degrader* in alluminio (spessore totale circa 2 mm), un secondo *target foil* di  $^{70}\text{Zn}$  con relativo *foil monitor/catcher* ed infine un *foil* di  $^{63}\text{Cu}$ . Quest'ultimo *foil* è necessario per la produzione di  $^{61}\text{Cu}$ , il radionuclide di riferimento per gli isotopi del rame nella successiva separazione radiochimica.

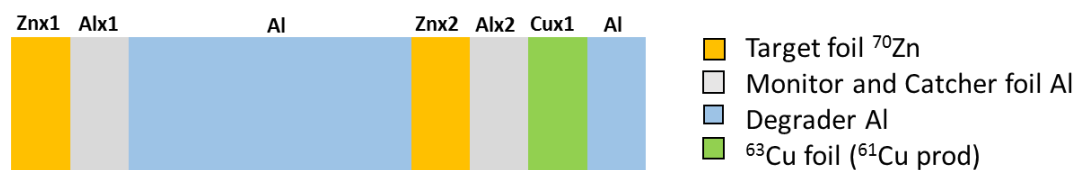


Figura 1. Rappresentazione grafica di bersaglio stacked-foils

Per misurare la sezione d'urto della reazione nucleare  $^{70}\text{Zn}(p,x)^{67}\text{Cu}$  si deve applicare ai *foils* irraggiati una procedura di separazione radiochimica con lo scopo di separare gli elementi chimici Cu/Ga. Tale procedura è necessaria poiché nel bersaglio di  $^{70}\text{Zn}$  viene co-prodotto il radionuclide  $^{67}\text{Ga}$ , che come il  $^{67}\text{Cu}$  decade in  $^{67}\text{Zn}$ , emettendo quindi le stesse righe di emissione  $\gamma$  (Tabella 2). Inoltre, dato che  $^{67}\text{Ga}$  e

$^{67}\text{Cu}$  hanno simile emivita (rispettivamente 78.28 e 61.83 ore), non è possibile aspettare che uno dei due decada per dedurre l'attività dell'altro radioisotopo.

Energy [keV]	Cu-67 Intensity	Ga-67 Intensity
91.266 5	7.0 1	3.11 4
93.311 5	16.1 2	38.81 3
184.577 10	48.7 3	21.41 1
208.951 10	0.115 5	2.46 1
300.219 10	0.797 11	16.64 12
393.529 10	0.220 8	4.56 24
494.166 15		0.0684 14
703.106 15		0.0105 9
794.381 15		0.0540 18
887.688 15		0.148 3

Tabella 2. Caratteristiche radiazione- $\gamma$  emessa nei decadimenti di Cu-67e Ga-67 (Nuclear Data Sheets 106, 159 (2005)).

## Rendicontazione economica del progetto COME

Tabella 3 riporta le assegnazioni del progetto COME (Dotazioni CSN3 LNL) ad inizio 2016.

Sez. & Surf.	MISS			CON			ALTRICONS			SEM			TRA			PUB			MAN			INV			APP			LIC-SW			SPSERVIZI			TOTALE		
	Sj	Dot.	Ant.	Sj	Dot.	Ant.	Sj	Dot.	Ant.	Sj	Dot.	Ant.	Sj	Dot.	Ant.	Sj	Dot.	Ant.	Sj	Dot.	Ant.	Sj	Dot.	Ant.	Sj	Dot.	Ant.	Sj	Dot.	Ant.						
LNL	15.0			17.0									3.0																		35					
	9.0	2.0		13.0									0.0	3.0																22.0	5.0	0				
TOTALE	15			17									3																	35	0					
		15			17			0		0			3		0		0				0				0					35						
	9	2	0	0	13	0	0						0	3	0	0														22	5.0	0.0	0.0			
					11.0										3.0		0.0		0.0		0.0			0.0		0.0					27.0					

Tabella 3. Assegnazioni del progetto COME (Dotazione CSN3 – LNL) per l'anno 2016.

I fondi di missione assegnati al progetto COME sono stati 9 k€ + 2 k€ SJ, sbloccati a Luglio 2016, previo invio di un report di attività svolte; nello stesso report si è chiesto e realizzato lo sblocco di 3 k€ per trasporti, poi successivamente stornati alla voce consumo.

Il totale dei fondi di missione (11 k€) non ha coperto le spese totali effettuate e pertanto, per completare i turni di irraggiamento, è stato chiesto un contributo esterno presso LNL. Come preventivato in fase di discussione del progetto COME, la durata di ogni missione è legata alla fase preparatoria all'irraggiamento (preparazione bersaglio, allineamento su linea di fascio, preparazione procedura radiochimica), alla giornata di irraggiamento, alla successiva giornata di processamento radiochimico ed infine alla conseguente fase di acquisizioni con spettrometria- $\gamma$ ; normalmente, per ogni irraggiamento, si sono acquisiti circa 25-30 spettri in circa 5 giorni. I dettagli di ogni missione sono

riportati in Tabella 4, che include anche una missione preparatoria, effettuata a Gennaio 2016, necessaria all'organizzazione dei successivi turni di misura presso ARRONAX.

I fondi di consumo assegnati al progetto COME sono stati 13 k€; considerando lo storno successivo (da trasporti a consumo) si considera un totale di 16 k€. La voce consumo è stata interamente spesa nel corso del 2016: circa 13k€ per l'acquisto di materiale arricchito (Zn-70) e circa 3 k€ di materiale di consumo vario (*foils* ad arricchimento naturale, materiale radiochimico ecc.).

I fondi assegnati al progetto COME (totale 27 k€) sono stati interamente spesi e per le spese di missione, come già accennato, si è dovuto richiedere un contributo esterno.

Missione	Data	N°. giorni	N°. persone
0	10-13/01/2016	3	1
1	20-27/02/2016	8	3
2	02-10/04/2016	9	3
3	8-15/05/2016	8	3
4	5-12/06/2016	8	4
5	19-24/06/2016	6	3

Tabella 4. Dettagli di ogni missione effettuata presso ARRONAX.

## Costruzioni e realizzazioni effettuate

### 1. Sviluppo ed ottimizzazione procedura di separazione radiochimica

La procedura sviluppata prevede non solo la separazione tra gli elementi Cu/Ga (necessaria per la misura della attività di Cu-67 e Ga-67 prodotta nel bersaglio), ma anche la separazione degli isotopi di zinco, in modo da poter studiare prossimamente il processo di recupero del materiale arricchito ( $^{70}\text{Zn}$ ). Questa procedura di separazione radiochimica è stata sviluppata presso l'Università degli Studi di Ferrara in collaborazione con il reparto di Medicina Nucleare dell'Ospedale Sant'Orsola di Bologna.

In Figura 2 sono rappresentati alcuni passaggi fondamentali del processo radiochimico sviluppato:

- A. Scioglimento del *foil* Cu-63 in  $\text{HNO}_3$  6M ed evaporazione della soluzione;
- B. Completata l'evaporazione, viene aggiunto HCL 10M e si ripete l'evaporazione;
- C. Completata la seconda evaporazione, viene aggiunto HCL 10M;
- D. Un'aliquota della soluzione HCL 10M contenente il *foil* Cu-63 viene aggiunta alla soluzione HCL 10M dove è stato sciolto il *foil* Zn-70; si ottiene così la soluzione detta "MIX", contenente tutti gli isotopi di rame, gallio e zinco;
- E. Per separare gli isotopi del gallio dalla soluzione "MIX" si utilizza una resina a scambio cationico AG50W-X4 in grado di trattenere gli isotopi del gallio (Ga-66 e Ga-67) e lasciare fluire gli isotopi di rame e zinco;

F. La soluzione "xGa" (ottenuta dall'eluizione della resina AG50W-X4 con Acetone/HCl 0.05M) viene mescolata utilizzando un vortex per garantire l'omogeneità della soluzione stessa, naturalmente composta da due fasi;

G. La soluzione non trattenuta dalla resina, contenente gli isotopi di rame e zinco, viene fatta evaporare e poi viene aggiunto HCl 2M;

H. Per separare gli isotopi Cu/Zn si utilizza una resina a scambio anionico AG1-X8 in grado di trattenere gli isotopi dello zinco (Zn-62, Zn-65, Zn-69 e zinco naturale) e lasciare fluire gli isotopi del rame (Cu-61, Cu-64 e Cu-67) nella soluzione "xCu"; la soluzione "xZn" si ottiene dall'eluizione della resina AG1-X8 con HCl 0.005M.

Tutti i *monitor foils* (sia alluminio che nichel) sono stati disciolti in HCl 10M.

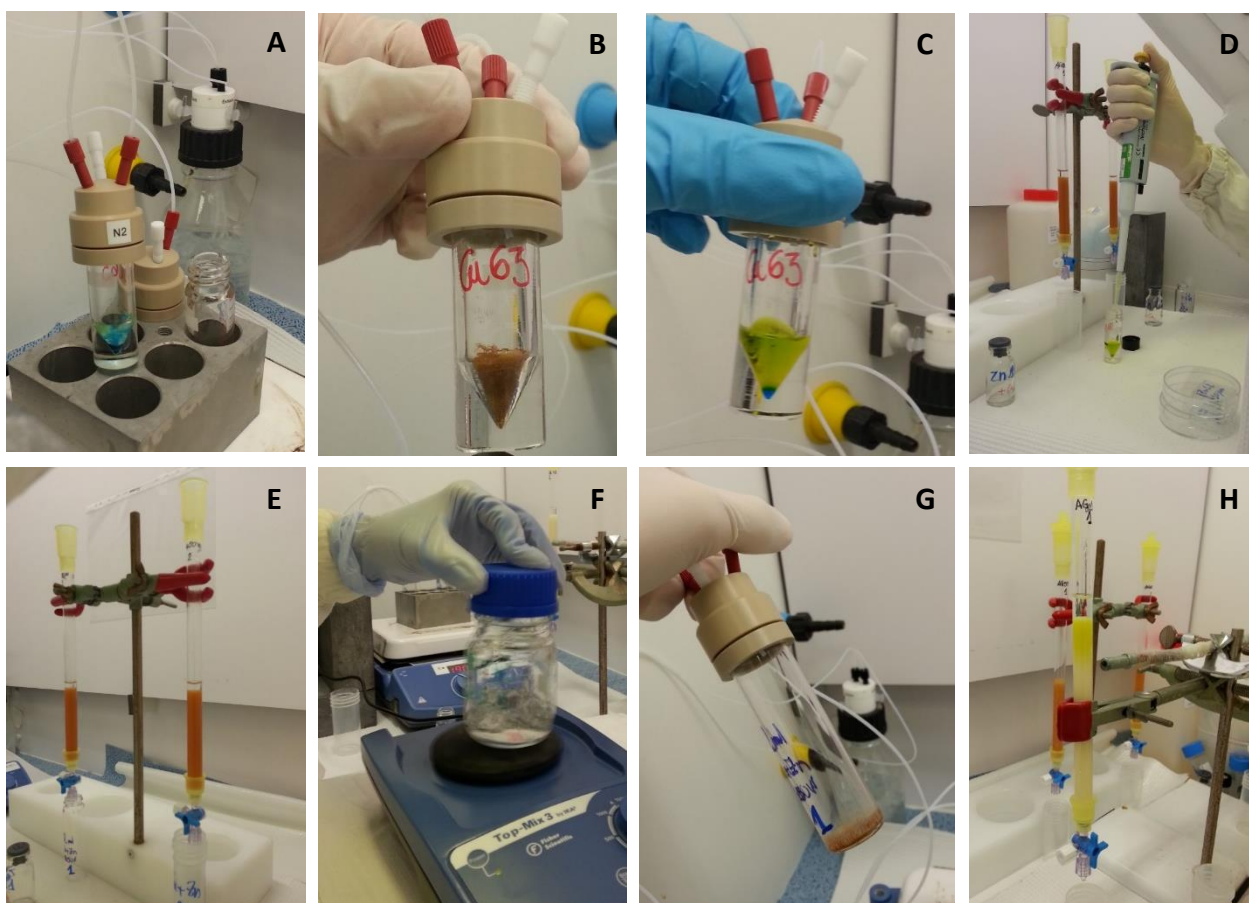


Figura 2. Fotografie del processo radiochimico applicato dopo ogni turno di irraggiamento ad Arronax

## 2. Realizzazione *foils* e porta-target per il bersaglio di tipo *stacked-foils*

Tutti i *foils* di arricchimento naturale (alluminio e nichel) utilizzati negli irraggiamenti sono stati acquistati dello spessore desiderato presso ditte specializzate; i *foils* di materiale arricchito ( $^{70}\text{Zn}$  e  $^{63}\text{Cu}$ ) sono stati realizzati per laminazione (Laboratorio bersagli, LNL). Tutti i *foils* sono stati tagliati in modo da ottenere cerchi di diametro 12 mm (utilizzando fustelle di dimensioni appropriate) ed il loro spessore calcolato misurandone diametro (calibro digitale) e peso (bilancia di precisione); Figura 3 mostra un set di *foils* prima dell'irraggiamento.

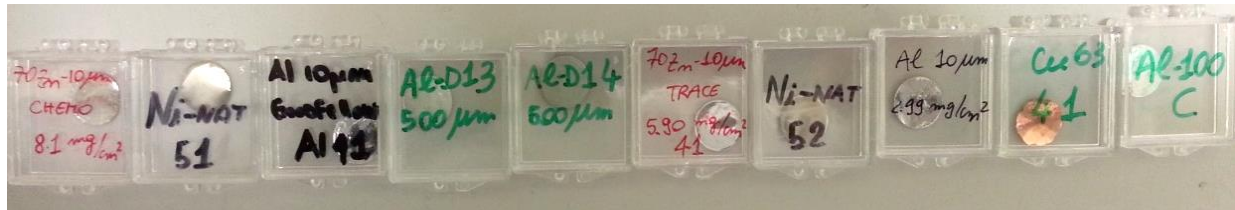


Figura 3. Fotografia dei foils utilizzati nel quinto ed ultimo irraggiamento presso ARRONAX.

Presso l'officina meccanica dei LNL è stato anche progettato e realizzato un porta-bersaglio *ad hoc* per i *foils* realizzati, compatibile con il sistema di supporto del *target* installato presso Arronax (Figura 4).



Figura 4. Fotografia del porta-bersaglio realizzato presso l'officina meccanica dei LNL.

## 3. Realizzazione collimatore in grafite e relativo supporto

Presso l'officina meccanica dei LNL è stato progettato e realizzato anche un collimatore in grafite (diametro 9 mm) e relativo supporto (Figura 2) da utilizzare presso la linea di fascio ad ARRONAX, in modo da garantire l'irraggiamento della sola superficie dei *target foils*, minimizzando l'attivazione del porta-bersaglio.



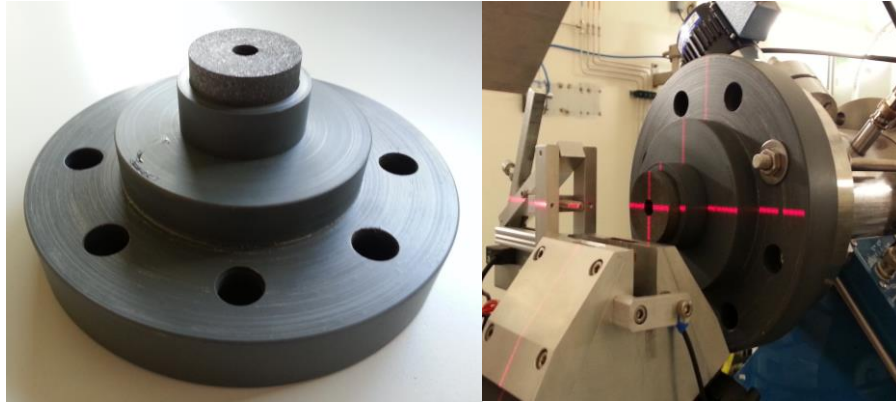


Figura 5. Fotografia del collimatore e relativo supporto realizzati presso LNL ed installati ad ARRONAX.

Ad ARRONAX abbiamo avuto il supporto del personale tecnico per l'allineamento del collimatore e del bersaglio sulla linea di fascio (Figura 5), l'installazione e la preparazione del materiale radiochimico, la calibrazione del rivelatore utilizzato per le misure di spettrometria- $\gamma$ .

## Spettrometria- $\gamma$ , analisi dati e calcolo della sezione d'urto

Tutti gli spettri sono stati acquisiti con il rivelatore HPGe installato ad ARRONAX (Figura 6), utilizzando due diverse geometrie: per la soluzione "MIX" (contenente tutti i radionuclidi, prima della separazione radiochimica) si è utilizzata una distanza di 19 cm dal rivelatore, mentre per tutte le altre soluzioni (xCu, xGa, xZn e *monitor foils*) si è posto il campione a contatto con il rivelatore. Per entrambe le geometrie si è misurata l'efficienza del rivelatore, utilizzando un campione di soluzione contenente diversi radionuclidi con attività certificata (soluzione di riferimento fornita dal centro ARRONAX).

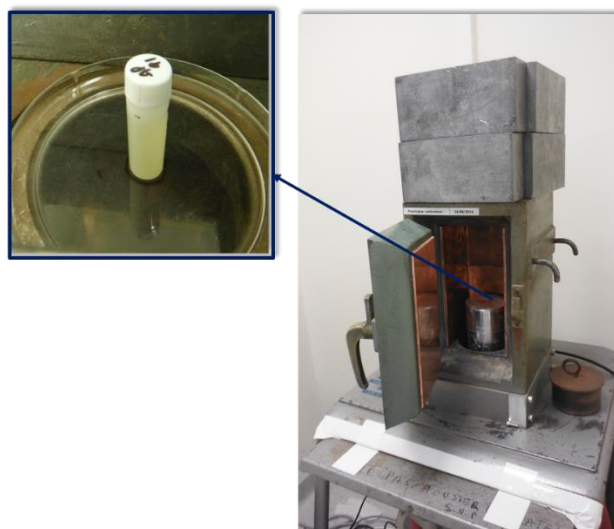


Figura 6. Fotografia del rivelatore HPGe utilizzato per la misura di tutti i campioni.

Alcuni esempi di spettri acquisiti sono mostrati in Figura 7: la soluzione “MIX” (A), xCu (B), xGa (C) e la soluzione xZn (D); dalla diversa forma degli spettri, dalla presenza o meno di righe caratteristiche, si può notare anche qualitativamente che la procedura radiochimica è in grado di separare i vari elementi.

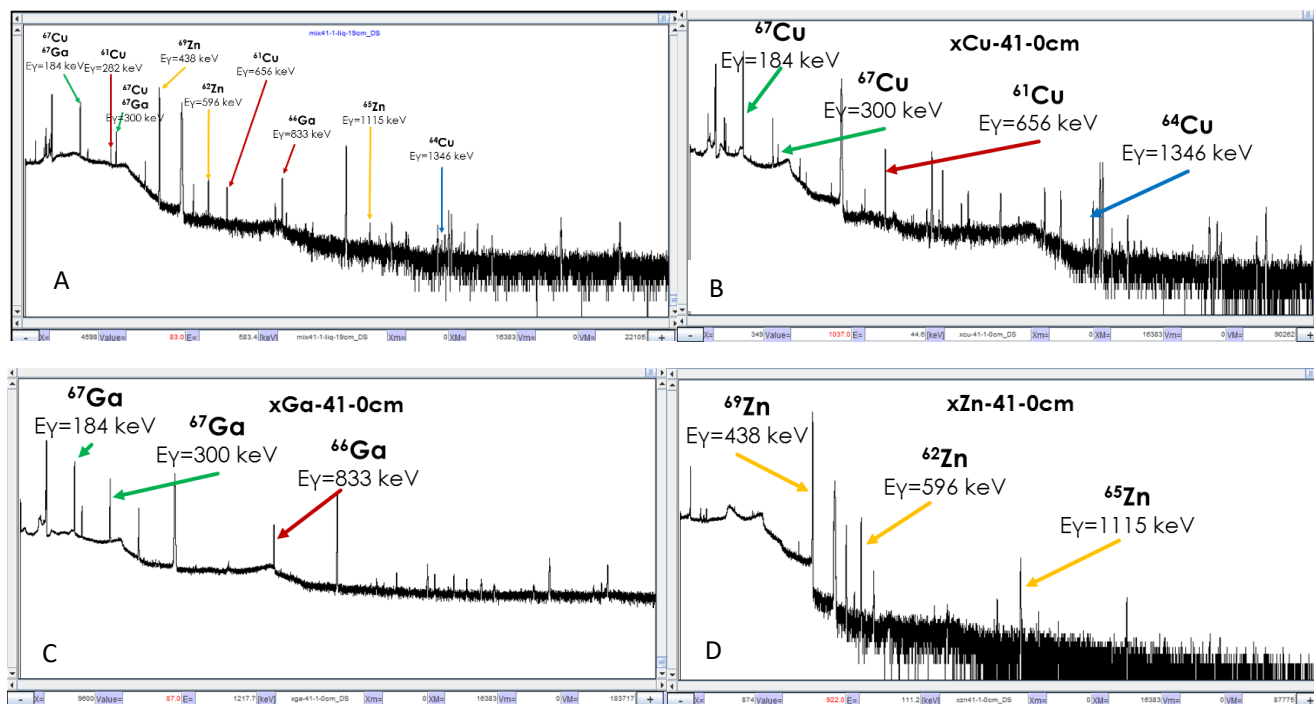


Figura 7. Esempi di alcuni spettri acquisiti durante i turni di misura: soluzione MIX (A), xCu (B), xGa (C) e xZn (D).

Utilizzando i radionuclidi traccianti, Cu-61 per gli isotopi del rame (Cu-67, Cu-64) e Ga-66 per il gallio (Ga-67), si può calcolare l’efficienza della procedura radiochimica e dedurre quindi l’attività dei radionuclidi d’interesse prima della separazione  $Act^I_{nuclide}$  (Equazione 1):

$$Act^I_{tracer} : Act^I_{nuclide} = Act^F_{tracer} : Act^F_{nuclide} \rightarrow Act^I_{nuclide} = Act^F_{nuclide} \cdot \frac{Act^I_{tracer}}{Act^F_{tracer}}$$

Equazione 1

In ogni turno di irraggiamento si sono misurati l’efficienza di separazione ed il recupero dei vari elementi, ripetendo quindi le acquisizioni spettrometriche per ogni soluzione.

In tutti i turni d’irraggiamento nella soluzione xGa non si è mai trovata alcuna riga-γ del tracciante del rame (Cu-61) emergere dal fondo di radiazione; dunque si è assunto che i conteggi relativi alle righe-γ riportate in Tabella 2 fossero interamente dovuti all’attività di Ga-67, senza alcuna contaminazione di Cu-67. Al contrario, nelle soluzioni xCu si è trovata la presenza della principale riga-γ del Ga-66, il tracciante del gallio; dal confronto dell’attività del Ga-66 nella soluzione xCu e nella soluzione MIX si può dedurre che circa l’1-2% dell’attività di Ga-66 non venga trattenuta nella resina e che quindi vi sia una contaminazione di gallio (anche Ga-67) nella soluzione xCu. Per questo motivo nell’analisi dati degli spettri della soluzione xCu, non si attribuisce al solo Cu-67 la presenza delle righe-γ riportate in Tabella 2, ma si procede con il metodo detto *Branching Ratio*.

Come riportato in Equazione 2, il numero di conteggi  $C$  di ogni riga- $\gamma$  caratteristica presente nei vari spettri è proporzionale all'attività del radionuclide al momento della misura  $Act_m$ ; inoltre, è possibile dedurre l'attività di ogni isotopo  $Act_m$  conoscendo l'efficienza  $\varepsilon$  del rivelatore per la data energia, l'intensità  $I$  della riga- $\gamma$  in esame (database NNDC - National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, based on ENSDF and the Nuclear Wallet Cards) ed il tempo  $t_L$  della misura spettroscopica effettuata (*Live Time*).

$$C = Act_m \varepsilon I t \rightarrow C = k \cdot Act_m \rightarrow Act_m = \frac{C}{\varepsilon I t}$$

Equazione 2

Il metodo detto *Branching Ratio* si applica all'analisi dati della soluzione xCu e considera la contaminazione di gallio in alcune righe- $\gamma$  dello spettro (rispettivamente 184 keV e 300 keV); per calcolare l'attività dei due radionuclidi di interesse, Cu-67 e Ga-67, si considera il sistema di due equazioni e due incognite riportato in Equazione 3:

$$\begin{cases} C_{Tot}^{184} = k_1 Act_{Cu67}^{184} + k_2 Act_{Ga67}^{184} \\ C_{Tot}^{300} = k_3 Act_{Cu67}^{300} + k_4 Act_{Ga67}^{300} \end{cases} \rightarrow Act_{Ga67} = \frac{k_1 C_{Tot}^{300} - k_3 C_{Tot}^{184}}{k_4 k_1 - k_3 k_2}; Act_{Cu67} = \frac{k_4 C_{Tot}^{184} - k_2 C_{Tot}^{300}}{k_4 k_1 - k_3 k_2}$$

Equazione 3

Dunque nell'analizzare i dati degli spettri delle soluzioni xCu si è applicato il metodo *Branching Ratio*, in modo da tenere in conto nel calcolo dell'attività di Cu-67 la contaminazione, seppure minima, di Ga-67.

Una volta calcolata l'attività  $Act_m$  di ogni radionuclide al momento della misura, è possibile calcolare l'attività dello stesso isotopo alla fine di un irraggiamento istantaneo (*End Of Instantaneous Bombardment*)  $Act_{EOIB}$ , correggendo per il tempo di decadimento  $t_D$  intercorso tra la fine dell'irraggiamento e l'inizio della misura spettroscopica, per la durata della misura stessa  $t_R$  (*Real Time*) e per la durata dell'irraggiamento  $t_{IRR}$  (*Irradiation Time*), come riportato in Equazione 4:

$$Act_{EOIB} = Act_m \cdot e^{\lambda t_D} \cdot \left( \frac{\lambda t_R}{1 - e^{-\lambda t_R}} \right) \cdot \left( \frac{\lambda t_{IRR}}{1 - e^{-\lambda t_{IRR}}} \right)$$

Equazione 4

dove il parametro  $\lambda$  è la costante di decadimento del radionuclide di interesse. L'attività  $Act_{EOIB}$  è l'ingrediente fondamentale nella misura della sezione d'urto  $\sigma$ , che dipende anche dal flusso  $\varphi$  incidente, dal numero di atomi bersaglio  $N_b$  e dalla costante di decadimento del radionuclide di interesse  $\lambda$  (Equazione 5):

$$\sigma = \frac{Act_{EOIB}}{\varphi N_b \lambda} = \frac{Act_{EOIB}}{\lambda} \cdot \frac{Ze}{i t_{IRR}} \cdot \frac{A}{\rho x P N_A}$$

Equazione 5

dove il flusso  $\varphi$  si calcola considerando l'intensità di corrente  $i$ , la durata dell'irraggiamento  $t_{IRR}$ , la carica elettrica del fascio incidente  $Z$  ed il valore della carica elementare dell'elettrone  $e$ ; mentre il numero di



atomi bersaglio  $N_b$  si calcola a partire dalla densità  $\rho$  e dal numero di massa  $A$  materiale bersaglio, dallo spessore  $x$  e dalla purezza  $P$  del *foil*, dal numero di Avogadro  $N_A$ .

Dato che l'apparato sperimentale installato presso ARRONAX non consente una misura precisa dell'intensità di corrente  $i$ , abbiamo utilizzato sezioni d'urto di riferimento  $\sigma'$  (*reference cross section*, raccomandate dall'International Atomic Energy Agency, IAEA) per normalizzare le sezioni d'urto misurate. In particolare, per dedurre il numero di particelle incidenti nel *stacked-foils target* (Figura 1), si utilizzano alcuni *monitor foils*, nei quali avviene la reazione nucleare di riferimento  $\sigma'$ ; per questo motivo è particolarmente importante assemblare correttamente i vari *foils*, in modo da garantire che il fascio incida la medesima superficie geometrica sia nel *target* che nel *monitor foil*. Considerando quindi la normalizzazione della sezione d'urto d'interesse  $\sigma$  rispetto alla sezione d'urto di riferimento  $\sigma'$  (tutti i parametri riferiti al *monitor foil* sono contraddistinti da apice), si ottiene Equazione 6:

$$\sigma = \sigma' \cdot \frac{Act_{EOIB}}{N_b \lambda} \cdot \frac{N'_b \lambda'}{Act'_{EOIB}} = \sigma' \cdot \frac{Act_{EOIB} A \rho' x' P' \lambda'}{Act'_{EOIB} A' \rho x P \lambda}$$

Equazione 6

In Figura 8 sono riportate le sezioni d'urto  $\sigma'$  per le reazioni nucleari di riferimento da utilizzare nell'analisi dati secondo le raccomandazioni della stessa IAEA.

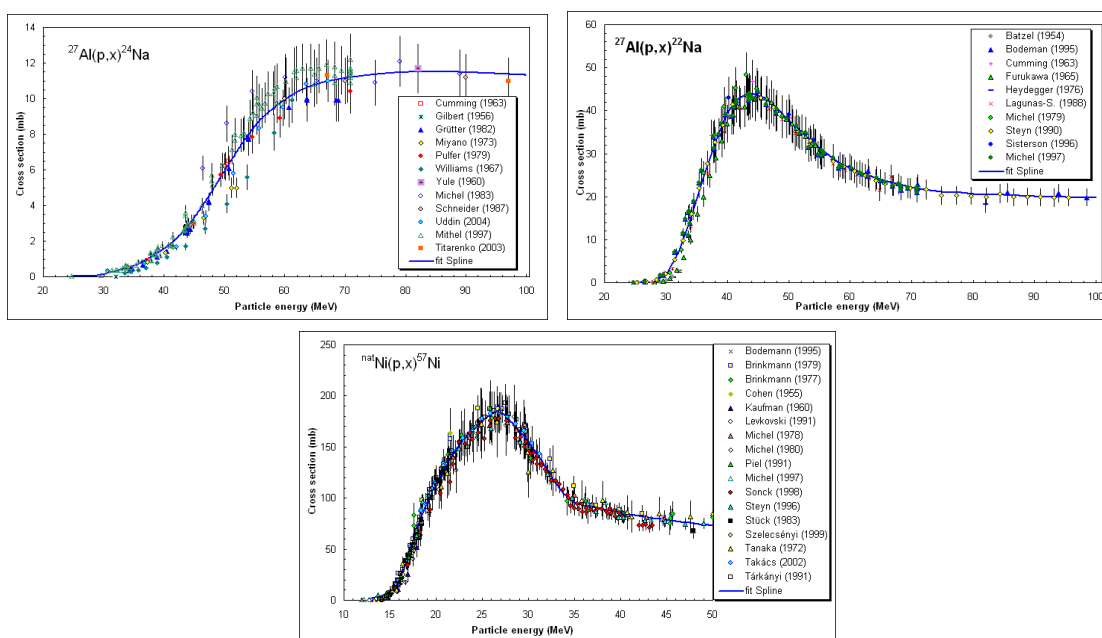


Figura 8. Grafici delle sezioni d'urto riferimento ([https://www-nds.iaea.org/medical/monitor\\_reactions.html](https://www-nds.iaea.org/medical/monitor_reactions.html)).

## 1. Effetto Recoil

Nel calcolo dell'attività di ogni radionuclide si è resa necessaria la correzione per l'effetto *Recoil*, ovvero la stima della percentuale di radionuclidi che durante l'irraggiamento con il fascio di protoni sono stati "rinculati" dal *foil* in cui sono stati prodotti a quello successivo (Figura 9). Questo effetto è particolarmente evidente nel caso di *foils* sottili (fino a decine  $\mu\text{m}$  di spessore), e di bassa massa, come quelli utilizzati in queste misure.

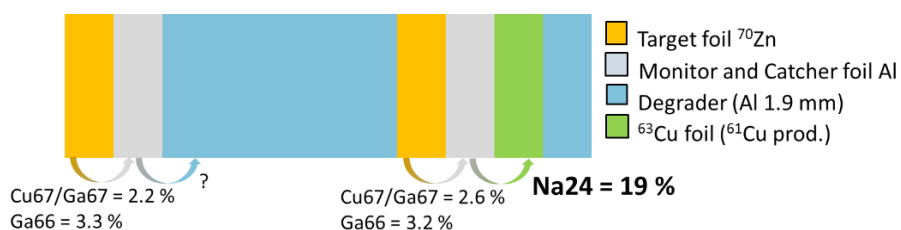


Figura 9. Rappresentazione grafica di un bersaglio stacked-foils e dell'effetto recoil misurato.

## Risultati preliminari della sezione d'urto $^{70}\text{Zn}(p,x)^{67}\text{Cu}$

L'analisi degli spettri ha portato al calcolo della sezione d'urto  $^{70}\text{Zn}(p,x)^{67}\text{Cu}$  ed al confronto tra i risultati sperimentali preliminari ed i valori teorici calcolati utilizzando i codici Pace4 e Talys (Figura 10). Il codice Pace sostanzialmente descrive la reazione basata su un modello evaporativo da nucleo composto, mentre il codice Talys descrive il processo tenendo conto anche dei contributi di pre-equilibrio.

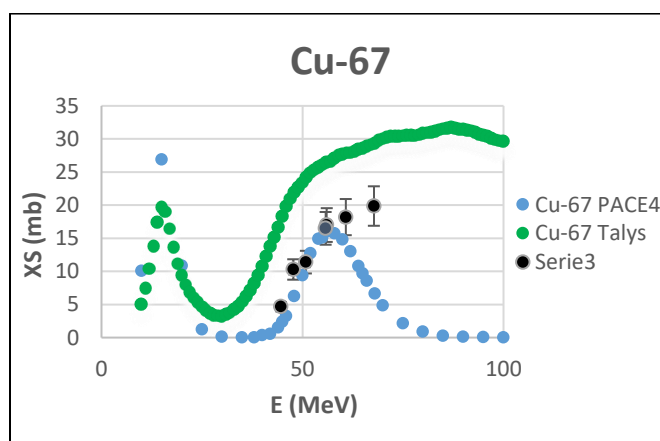


Figura 10. Grafico della sezione d'urto  $^{70}\text{Zn}(p,x)^{67}\text{Cu}$  ottenuta dall'analisi preliminare dei dati.

Il calcolo dell'errore associato ad ogni punto sperimentale è in fase di elaborazione. Nel grafico in Figura 10 si è indicato un errore del 15%, in modo da tenere largamente in considerazione ogni possibile contributo all'incertezza totale, il cui apporto principale è dato dall'errore associato alla sezione d'urto di riferimento.

Come si nota dal grafico, nonostante le misure effettuate siano ritenute sufficienti per un valido confronto con i due modelli disponibili, nessuno dei codici utilizzati è in grado di descrivere in maniera accurata l'andamento della sezione d'urto. Questa considerazione è alla base della collaborazione appena iniziata con il Dott. Luciano Canton (INFN-PD), esperto in modellistica nucleare, che ci auguriamo possa portare all'ottimizzazione di uno o più codici in grado di descrivere reazioni nucleari di interesse applicativo. Per validare i codici è previsto il confronto tra le predizioni e le misure sperimentali della sezione d'urto per la reazione  $^{70}\text{Zn}(p,x)^{67}\text{Cu}$ , ma anche degli isotopi co-prodotti nel bersaglio, quali ad esempio Ga-67, Ga-66 e Cu-64.

In conclusione al progetto COME è importante sottolineare la fondamentale partecipazione di tutto il gruppo afferente al progetto stesso (Tabella 5), ma anche alle diverse collaborazioni presso LNL: Laboratorio Bersagli (Dott. Enrico Fioretto, Massimo Loriggiola), Officina Meccanica, Servizio di Radioprotezione, Coordinatore di gruppo III (Dott. Lorenzo Corradi), responsabile del progetto Techn-Osp (Ing. Juan Esposito), responsabile del progetto LARAMED (Prof. Adriano Duatti), Direttore dei LNL (Prof. Giovanni Fiorentini). Inoltre, il progetto non si sarebbe potuto realizzare senza il supporto del centro ARRONAX (Direttore Prof. Ferid Haddad), la collaborazione con l'Università di Ferrara (Dott. Alessandra Boschi) e l'Ospedale Sant'Orsola di Bologna (Prof. Mario Marengo, Dott. Gianfranco Cicoria).

Si ringrazia in modo particolare per il continuo supporto ed incoraggiamento ricevuto i Dott. Carlos Rossi Alvarez, Dott. Gianpietro Bezzon, Dott. Paolo Buso e Dott. Alessandro Zanon.

	FTE
Gaia Pupillo	1
Liliana Mou	1
Petra Martini	1
Stefania Canella	0.5
Micòl Pasquali	0.2
Sara Carturan	0.2

Tabella 5. Nominativi staff progetto COME – COPper MEasurement.