



**SAPIENZA**  
UNIVERSITÀ DI ROMA

# Progettazione, sviluppo e validazione di un dispositivo neutronico per la rivelazione in tempo reale di materiale nucleare

**Facoltà di Ingegneria civile e industriale**  
**Dipartimento di Ingegneria aeronautica, elettrica ed energetica**  
**Dottorato in Energia e Ambiente – XXXI ciclo**

**Giada Gandolfo**  
**Matricola 1321777**

Tutor  
Prof. Gianfranco Caruso  
Prof. Romolo Remetti  
Dr. Ing. Nadia Cherubini

A.A. 2017-2018

# Sommario

Introduzione.....	1
1. La sicurezza nucleare nel XXI secolo.....	3
1.1 Gestione in sicurezza dei materiali nucleari .....	5
1.2 Prevenzione della proliferazione nucleare.....	9
1.3 Prevenzione del terrorismo nucleare .....	11
2. Tecnologie di rivelazione dei materiali nucleari.....	14
2.1 Analisi distruttive .....	15
2.2 Analisi non distruttive .....	16
2.2.1 Spettrometria gamma .....	17
2.2.2 Analisi neutronica .....	26
2.2.3 Strumenti portatili.....	36
2.3 Considerazioni sulla strumentazione e sulle tecniche disponibili.....	39
3. Focus sulla tecnica DDAA ai fini della progettazione del sistema di misura.....	42
3.1 Principio del metodo.....	42
3.2 Analisi del grafico segnale-tempo.....	45
3.3 Dalla misura alla determinazione delle masse di fertile e fissile .....	47
3.4 Applicabilità del metodo al progetto .....	49
4. Studio di fattibilità tramite simulazioni Monte Carlo.....	53
4.1 Simulazione del generatore di neutroni .....	53
4.2 Simulazione dei contatori proporzionali.....	54
4.3 Simulazione della struttura moderante che circonda il campione in analisi .....	58
4.4 Simulazione del campione .....	58
4.5 Confronto qualitativo tra risultati di un esperimento noto e risultati della relativa simulazione MCNPX.....	61
4.6 Definizione di una figura di merito (FOM) per il confronto tra diverse configurazioni.....	64
4.7 Simulazione di diversi layout di misura e confronto mediante la FOM .....	70
5. Caratterizzazione del generatore di neutroni .....	76

5.1	La reazione ${}^3\text{H}(d, n){}^4\text{He}$ .....	79
5.2	Il generatore MP320 della Thermo Electron Corporation.....	84
5.3	Caratterizzazione sperimentale del generatore di neutroni .....	91
5.3.1	Fase 1: Caratterizzazione sperimentale del flusso neutronico in corrispondenza dei diversi angoli di emissione mediante il Berthold LB6411 .....	91
5.3.2	Fase 2: Caratterizzazione sperimentale del flusso neutronico e dell'energia dei neutroni in corrispondenza dei diversi angoli di emissione mediante un rivelatore al diamante.....	94
6.	Caratterizzazione dei rivelatori ${}^3\text{He}$ .....	108
6.1	Fissare la tensione di alimentazione e il guadagno di amplificazione e variare la soglia di discriminazione .....	114
6.2	Fissare la soglia di discriminazione e variare la tensione di alimentazione o il guadagno di amplificazione.....	116
6.3	Caratterizzazione sperimentale dei rivelatori .....	118
6.3.1	Fase 1: costruzione delle counting curve .....	119
6.3.2	Fase 2: verifica mediante l'acquisizione degli spettri di energia depositata nei rivelatori .....	121
7.	Messa a punto dello script .....	125
8.	Campagne sperimentali .....	133
8.1	Prima campagna sperimentale .....	133
8.2	Individuazione di modifiche migliorative per il dispositivo NAI mediante simulazioni Monte Carlo .....	136
8.3	Seconda campagna sperimentale in una geometria del tipo "campo aperto" .....	141
8.4	Terza campagna sperimentale in una geometria del tipo "bunker" .....	146
9.	Prospettive future.....	152
9.1	Studio dell'influenza del materiale costituente la matrice del campione.....	152
9.2	Eliminazione dell'ingombro della carta per aumentare le dimensioni del campione ispezionabile e allo stesso tempo ridurre i limiti di rivelazione .....	156
	Conclusione.....	160
	Bibliografia .....	162
	Appendice A: Input MCNPX di una possibile configurazione del dispositivo NAI .....	166
	Appendice B: Script realizzato in ambiente Matlab per l'elaborazione dei dati sperimentali .....	174
	Appendice C: Pubblicazioni relative alla ricerca presentata.....	179

*Alla mia famiglia*

## Introduzione

Il presente lavoro di tesi, appartenente al XXXI ciclo di Dottorato di Ricerca in Energia e Ambiente di Sapienza – Università di Roma, è stato sviluppato nell'arco temporale 2015-2018 in collaborazione con il centro ricerche ENEA di Casaccia, in particolare, con il Laboratorio di Caratterizzazione Radiologica e Gestione dei Rifiuti radioattivi. La collaborazione, nata nell'ambito del progetto EDEN (1) (End-user driven DEMo for cbrNe) nel quadriennio 2013-2016 e consolidatasi negli ultimi anni, ha come focus principale l'utilizzo di tecniche neutroniche attive per la rivelazione di *Radioactive Dispersal Devices* contenenti transuranici, in particolare materiali fissili. Il progetto EDEN, infatti, finanziato dalla Commissione Europea nell'ambito del Settimo Programma Quadro, si poneva l'obiettivo di far fronte al crescente verificarsi di eventi legati al rischio CBRNE (Chimico Biologico Radiologico Nucleare e da Esplosivi) mediante lo sviluppo di tecniche e sistemi innovativi. Dalla collaborazione con ENEA è nato il dispositivo NAI (*Neutron Active Interrogation*) (2) (3) (4) che utilizzando un generatore compatto di neutroni basato sulla reazione d-t e dieci contatori proporzionali a  $^3\text{He}$  è in grado di rivelare allo stato attuale 2 g di  $^{235}\text{U}$  contenuti in un pacco sospetto in tempi molto brevi (dell'ordine di qualche minuto). Il dispositivo è progettato per essere trasportabile e utilizzabile in campo, il suo funzionamento è basato sulla tecnica neutronica attiva nota come Differential Die-Away time Analysis (5). Tale tecnica rappresenta un'efficace risposta alla difficoltà di rivelazione dei materiali nucleari per due motivazioni sostanziali: la capacità di "penetrazione" dei neutroni nella materia e quindi la possibilità di indagare il campione sospetto in profondità; la potenzialità temporale della tecnica, che dal punto di vista fisico è in grado di fornire risposte accurate in tempi molto limitati e potenzialmente in tempo reale, in relazione alle prestazioni della strumentazione di cui si riesce a disporre.

Le applicazioni del dispositivo qui presentato possono essere le più diverse, dall'analisi di valigie e pacchi sospetti in campo da parte di artificieri, al controllo bagagli da stiva in aeroporti o centri di trasporto nevralgici in genere, ai controlli doganali o di frontiera.

Nel caso particolare dello strumento qui realizzato, lo scenario ipotizzato è quello dell'analisi di un campione di dimensioni limitate (una ventiquattrore, un trolley, un fustino) con l'obiettivo di identificare l'eventuale presenza di materiale fissile, nel minor tempo possibile.

Il lavoro presentato si articola come segue.

Il primo e il secondo capitolo consisteranno in un'introduzione generale alle problematiche che la sicurezza nucleare internazionale si propone di affrontare e alle tecnologie a disposizione per la rivelazione dei materiali nucleari. Seguirà poi un approfondimento sulla tecnica scelta per il progetto del dispositivo NAI, la Differential Die-Away time Analysis, e uno studio di fattibilità mediante simulazioni Monte Carlo MCNPX (6) del dispositivo stesso. La seconda parte della tesi riguarderà l'aspetto pratico e sperimentale della ricerca, a partire dalla caratterizzazione del generatore di neutroni e dei rivelatori, passando per la messa a punto dello script di analisi, per finire con la descrizione delle campagne sperimentali e dei risultati ottenuti. L'ultimo capitolo sarà invece dedicato alla descrizione degli obiettivi futuri, evidenziando le criticità attuali ed individuando i potenziali miglioramenti di cui il dispositivo NAI potrà beneficiare.

# 1. La sicurezza nucleare nel XXI secolo

Rispetto al periodo della Guerra Fredda, la sicurezza nucleare è oggi considerevolmente più complessa: la tensione per il confronto tra le superpotenze nucleari è stata infatti sostituita da preoccupazioni maggiori riguardo la proliferazione illecita di materiale o armi nucleari, unita alla minaccia del terrorismo che è diventata, in questi ultimi tempi, di particolare interesse a seguito dei terribili eventi a partire dal triste 11 Settembre 2001.

L'esigenza di una comprensione scientifica della minaccia nucleare in evoluzione è fondamentale per ispirare e orientare le decisioni politiche e la diplomazia internazionale. Il sostegno scientifico per una comprensione di questo tipo è considerevolmente ampio e abbraccia diversi campi variando dalla fisica nucleare e l'ingegneria alla chimica, metallurgia e scienza dei materiali, valutazione del rischio, tecniche computazionali su larga scala, modellazione e simulazione, sviluppo di tecniche di misura e rivelatori. Queste aree contribuiscono a quella che è chiamata, oggi, scienza della sicurezza nucleare.

Nell'era successiva alla Guerra Fredda e all'11 Settembre molte sono le sfide che la nuova sicurezza nucleare si è proposta e si propone di affrontare e le linee guida cardine possono essere riassunte di seguito:

- gli Stati che possiedono armi, materiale e conoscenze legate alla proliferazione nucleare devono imperativamente fare in modo che tali componenti siano controllati e protetti da furti e abusi poiché la loro perdita di controllo può causare instabilità e conflitti internazionali. Il problema più grande è che, mentre un'enorme quantità di armi e materiali nucleari è stata prodotta in tutto il mondo per molti anni, le difficoltà tecniche nel gestirli in condizioni di sicurezza non sono state sufficientemente riconosciute e le risorse e l'esperienza per metterli in sicurezza spesso sono state inadeguate.

- La proliferazione delle armi nucleari sia all'interno degli Stati che le possiedono che in tutto il resto del mondo dovrebbe essere prevenuta. C'è un forte consenso internazionale riguardo il fatto che la diffusione delle armi nucleari ad altri Stati possa creare instabilità nel sistema internazionale e accrescere la minaccia della guerra e del terrorismo nucleare. Al contrario, la maggioranza degli Stati che non hanno a disposizione materiale nucleare ritiene che il continuo possesso delle armi da parte di quelli che già le possiedono rappresenti una minaccia ben più grande alla sicurezza internazionale e, per questo motivo, le scorte di armi dovrebbero essere ridotte al minimo. L'obiettivo della non proliferazione include anche l'obbligo per gli Stati che aderiscono al Trattato di Non Proliferazione (NPT) a cooperare nella verifica che tutte le loro attività nucleari siano finalizzate a scopi pacifici.
- Tutti gli Stati devono impegnarsi nella prevenzione del terrorismo nucleare. L'obiettivo dei terroristi sembra essere quello di condurre attacchi sempre più distruttivi; tuttavia il più grande ostacolo alla loro capacità di condurre un attacco nucleare è l'acquisizione di sufficienti quantità di uranio altamente arricchito (HEU)<sup>1</sup> e/o plutonio. Questi materiali esistono in grandi quantità e sono usati in tutto il mondo, e per tale motivo è necessario e fondamentale per la sicurezza nucleare globale, effettuare una corretta gestione in sicurezza per prevenire eventuali fenomeni di furti o contrabbando.

---

<sup>1</sup> HEU è l'acronimo per Highly Enriched Uranium. Per uranio altamente arricchito si intende uranio con contenuto dell'isotopo <sup>235</sup>U pari o superiore al 20%

## ***1.1 Gestione in sicurezza dei materiali nucleari***

Garantire la sicurezza (intesa sia come *safety* che come *security*<sup>2</sup>) dei materiali nucleari è una sfida che continuerà ad essere condivisa da tutti gli Stati che ne possiedono per scopi civili e militari. Questo obiettivo è fondamentale perché i materiali nucleari costituiscono il prodotto grezzo essenziale sia per i combustibili utilizzati nei reattori che per i dispositivi esplosivi nucleari o per le armi radiologiche, ed anche perché presentano una minaccia per la salute pubblica e l'ambiente.

In un mondo con un elevato grado di sicurezza nucleare ogni Stato che ha in dotazione materiale nucleare dovrebbe conoscere con accuratezza e precisione quanto materiale possiede, in che forma, dove è collocato e se è adeguatamente protetto da eventuali furti o perdite. Tutti gli Stati dovrebbero avere a disposizione leggi efficaci e applicabili che puniscano severamente l'uso non autorizzato o il traffico di materiali nucleari, e controllare l'esportazione e i confini al fine di prevenirne il trasferimento illegale o disperdere le tecnologie e conoscenze necessarie alla loro produzione.

Questo, purtroppo, non è il mondo in cui si vive oggi. L'eredità della Guerra Fredda ha lasciato a disposizione vaste scorte di materiale nucleare utilizzabile direttamente per le armi, molte delle quali superano i bisogni militari correnti. Nonostante parte di questo materiale sia convertito in forme meno utilizzabili per gli armamenti e più adatto ai combustibili per reattori nucleari, solamente negli Stati Uniti e nella ex Unione Sovietica esistono ancora centinaia di tonnellate di plutonio e uranio altamente arricchito.

L'uranio altamente arricchito e il <sup>239</sup>Pu separato sono materiali essenziali per gli esplosivi nucleari. Il plutonio e l'HEU sono usati nel mondo per attività di ricerca, reattori di potenza, applicazioni industriali in forme che possono essere convertite in materiali

---

<sup>2</sup> Il termine *safety* indica protezione da rischi e incidenti fortuiti che possono pregiudicare l'incolumità o la salute il termine *security*, invece, indica protezione da minacce e attacchi deliberati a cose o persone derivanti da atti criminosi.

utilizzabili per armi attraverso processi chimici. Alcuni materiali sono processati, modellati, trasportati, stoccati e usati, parte dei quali inevitabilmente terminano nei flussi di rifiuti. Per questa ragione è difficile sviluppare una elevata confidenza sull'inventario di riferimento per questi materiali nucleari. Inoltre, grandi quantità di materiale non utilizzabile per armi sono tuttora in uso e in circolazione nel mondo, inclusi uranio a basso arricchimento e un vasto range di *source material*<sup>3</sup>.

Nelle Figg.1-1 – 1-4 sono riportati gli inventari mondiali di HEU e plutonio al 2015.

In Fig.1-1 è riportato l'inventario mondiale dell'uranio altamente arricchito *weapon-grade*<sup>4</sup> dal 1945 al 2015, in cui si registra una netta diminuzione dei quantitativi di HEU in seguito alla fine della Guerra Fredda e una situazione pressoché costante negli ultimi anni.

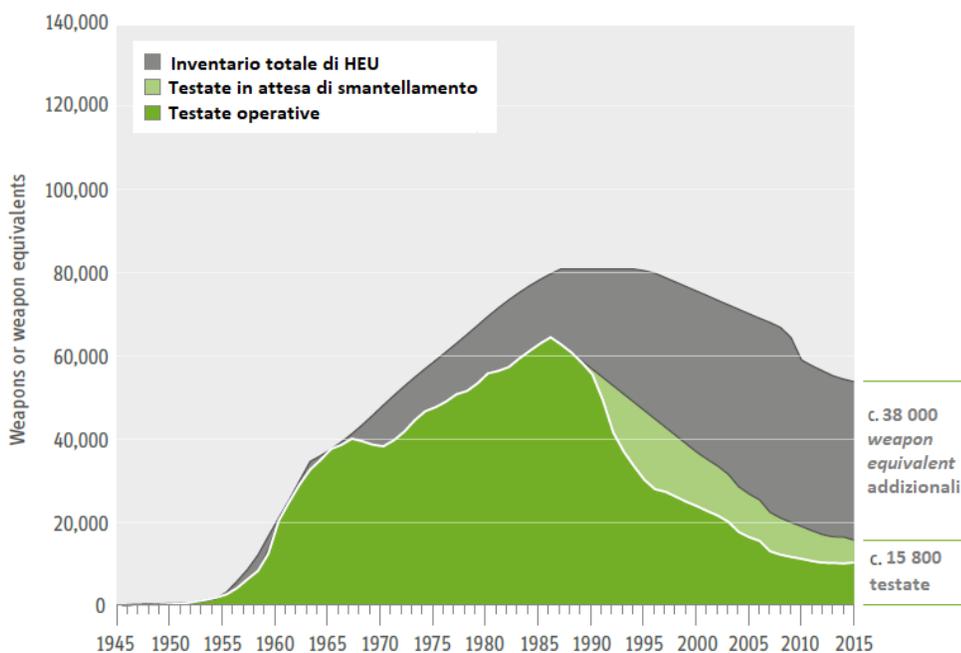


Figura 1-1 – Inventario mondiale dell'uranio altamente arricchito *weapon-grade* dal 1945 al 2015. Una frazione significativa di HEU è stata eliminata a partire dalla fine della guerra fredda. La figura assume una media di 25 kg di uranio *weapon-grade* per *weapon equivalent* (7).

<sup>3</sup> Per *source material* si intende materiale contenente uranio non arricchito. Uranio naturale e uranio depleto sono dunque considerati *source material*.

<sup>4</sup> Per uranio *weapon-grade* si intende uranio con contenuto dell'isotopo <sup>235</sup>U superiore al 90%.

In Fig.1-2 è invece riportata la ripartizione delle scorte di HEU alla fine del 2014 tra i diversi Paesi. Risulta evidente come i maggiori possessori di HEU siano Russia e Stati Uniti.

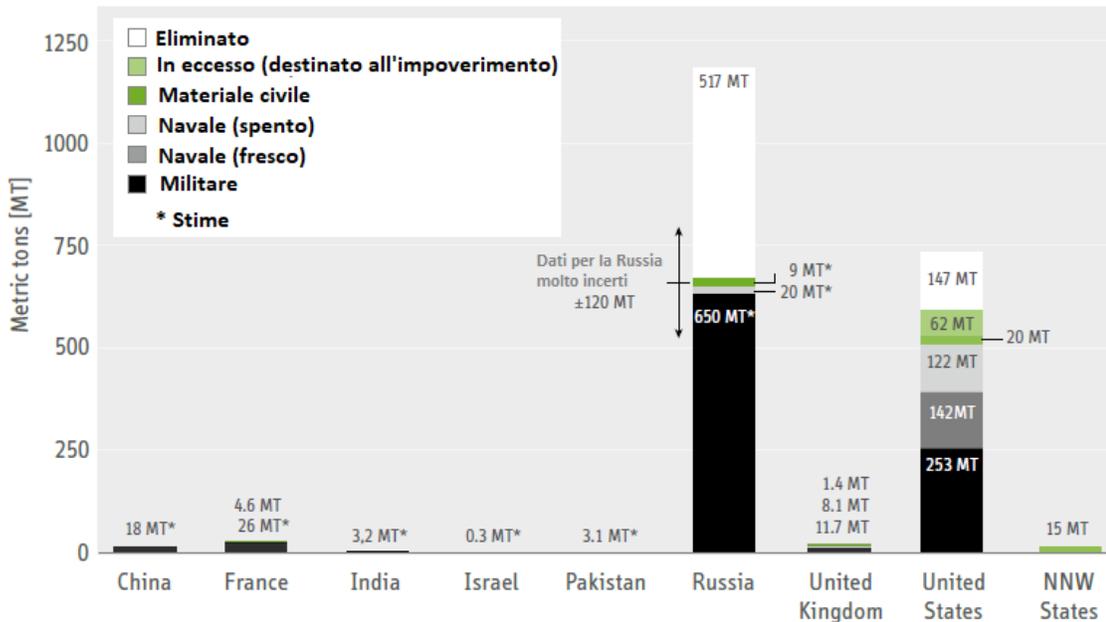


Figura 1-2 – Scorte nazionali di HEU alla fine del 2014. I numeri per il Regno Unito e per gli Stati Uniti sono basati su pubblicazioni ufficiali. Le scorte di HEU per usi civili di Francia e Regno Unito sono basate sulle loro pubbliche dichiarazioni all'IAEA. I numeri con gli asterischi sono stime spesso con grandi incertezze (7).

In Fig.1-3 è riportato l'andamento dell'inventario mondiale di plutonio dal 1945 al 2015. Mentre le riserve mondiali di HEU sono diminuite a partire dalla fine della guerra fredda, l'inizio di diversi piani di riprocessamento per usi civili a partire dagli anni '80 ha portato ad un continuo aumento delle riserve mondiali di plutonio. Allo stesso tempo il plutonio per usi militari è diminuito e negli ultimi decenni risulta in stallo. In Fig.1-4 è mostrata la ripartizione delle scorte di plutonio tra i diversi Paesi al 2015.

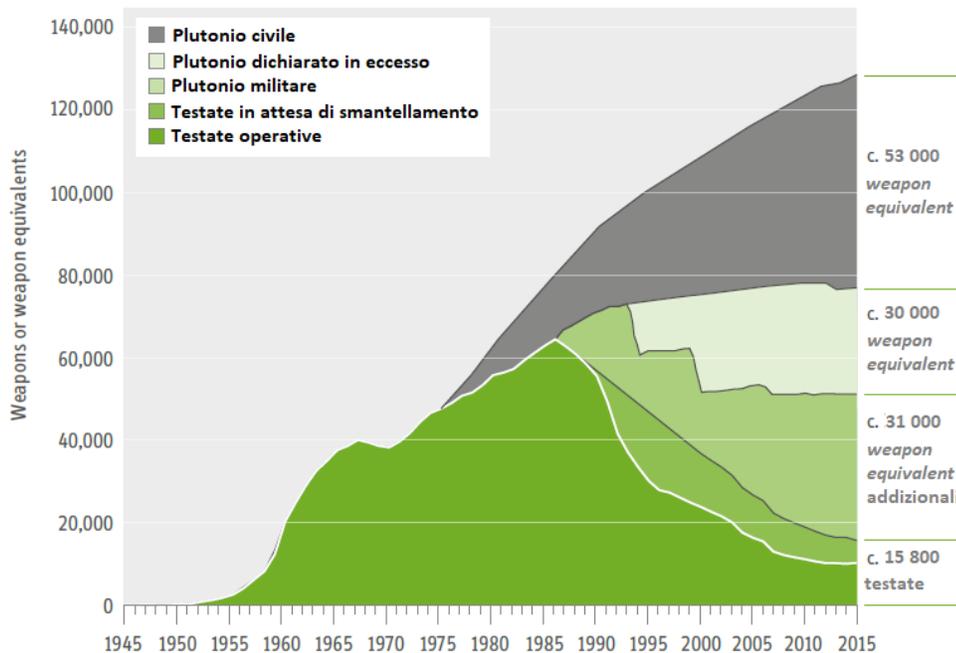


Figura 1-3 – Crescita delle riserve mondiali di plutonio dal 1945 al 2015. Per *weapon equivalent* si intende 3 kg di plutonio militare (*weapon-grade*)<sup>5</sup> e 5 kg di plutonio civile (*reactor-grade*)<sup>6</sup> (7).

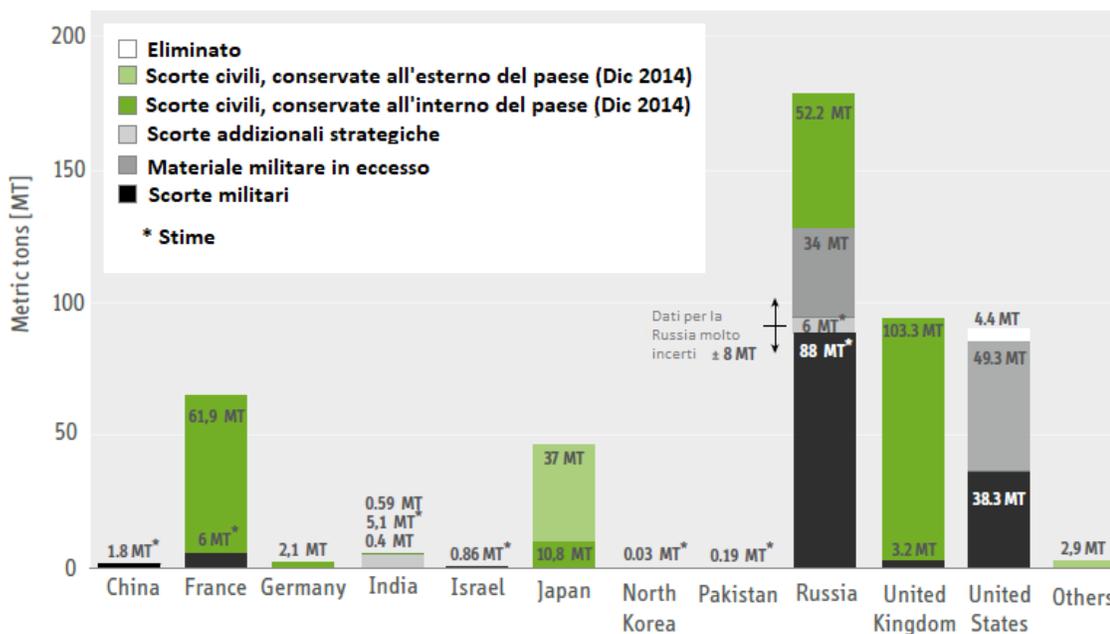


Figura 1-4 – Riserve nazionali di plutonio separate alla fine del 2014. Le riserve militari sono basate su stime eccetto per gli Stati Uniti e il Regno Unito che hanno presentato delle dichiarazioni al riguardo (7).

<sup>5</sup> Per plutonio *weapon grade* si intende <sup>239</sup>Pu con contaminazione da <sup>240</sup>Pu inferiore al 7%.

<sup>6</sup> Per plutonio *reactor grade* si intende <sup>239</sup>Pu con contaminazione da <sup>240</sup>Pu superiore al 19%.

## *1.2 Prevenzione della proliferazione nucleare*

L'esigenza di controllo e monitoraggio della sicurezza nucleare ha spinto –negli anni– diversi attori a costruire e perfezionare protocolli trans-nazionali, condivisi e trasversali, orientati ad accrescere la fiducia di una nazione verso l'altra rispetto alla cura applicata nella detenzione, monitoraggio e gestione dei materiali nucleari.

L'Agenzia Atomica IAEA (International Atomic Energy Agency) ha il compito istituzionale e la responsabilità di rivelare la eventuale diversione del materiale nucleare da scopi civili a scopi militari negli Stati che hanno aderito al Trattato di Non Proliferazione nucleare (NPT) e si sono impegnati nel non acquisire armi nucleari. Per adempiere a questa missione l'IAEA ha creato un'organizzazione di ispettori internazionali di salvaguardia che utilizzano numerose procedure e tecnologie specializzate. L'IAEA ha l'ulteriore compito di verificare la completezza delle dichiarazioni riguardanti le attività nucleari degli Stati e di assicurare che nessuna attività nucleare non dichiarata esista all'interno degli Stati membri. Per una buona porzione della propria storia, l'IAEA ha portato avanti il suo tradizionale ruolo di ispezione nucleare senza molta ostentazione. Un grande cambiamento c'è stato in seguito alla scoperta del programma di sviluppo di armi nucleari iracheno dopo la sconfitta dell'Iraq nella Guerra del Golfo del 1991. Invece di rimanere uno stato non nuclearmente armato in piena regola, come prevedeva il suo obbligo in conformità al NPT, l'Iraq ha condotto per anni un segreto lavoro volto al raggiungimento di una capacità offensiva nucleare. Il programma iracheno è stato riconosciuto come il primo illecito e la prima violazione delle salvaguardie nucleari di IAEA. Esso era largamente basato su strutture clandestine, non dichiarate, che non erano soggette all'ispezione di IAEA e non potevano essere rivelate dal sistema di sicurezza internazionale esistente. La scoperta dell'illecito iracheno ha comportato una tagliente critica nei confronti del sistema internazionale di salvaguardia e uno sforzo a lungo termine per fortificare tale sistema. L'IAEA ha iniziato ad adottare,

quindi, un nuovo approccio: verificare la completezza e la correttezza della dichiarazione di ogni Stato è ora riconosciuto come l'obiettivo fondamentale del sistema di salvaguardia dell'Agenzia.

Per raggiungere tale obiettivo l'IAEA ha incoraggiato gli Stati membri a firmare il Protocollo Aggiuntivo che prevede anche controlli su tecnologie e componenti di natura convenzionale che potrebbero essere utilizzate in ambito militare (*dual-use*), e sulle loro esportazioni verso altri Paesi.

Lo scopo degli accordi di salvaguardia internazionale è dunque rivelare la diversione di quantità significative di materiale nucleare da scopi pacifici all'interno di determinati periodi di tempo. Una quantità di materiale nucleare significativa è definita dall'IAEA come l'ammontare approssimativo di materiale nucleare a partire dal quale può essere fabbricato un dispositivo esplosivo nucleare. Per uranio *weapon-grade* questa quantità è 25 kg, per il plutonio 8 kg.

I documenti di contabilità di tutti i materiali nucleari in inventario e i cambiamenti di inventario sono mantenuti per ogni facility sotto salvaguardia dagli operatori e trasmessi all'IAEA attraverso le autorità statali. Queste dichiarazioni sui materiali nucleari presenti nelle facility costituiscono la linea guida per le attività di verifica dell'IAEA.

Il concetto dell'adesione volontaria al Protocollo Aggiuntivo include l'idea degli incentivi: alcuni Stati, dopo aver firmato il Protocollo Aggiuntivo per tutte le proprie facility nucleari per diversi anni, possono eventualmente avere una diminuzione della presenza degli ispettori IAEA all'interno delle loro facility senza compromettere il fatto che l'adesione alle salvaguardie sia soddisfatta.

Il sistema di salvaguardia internazionale così come implementato dall'IAEA, anche se imponente e significativo, non può garantire che nessun materiale nucleare venga rubato o trasferito nelle mani di soggetti intenzionati ad utilizzarlo per scopi terroristici. Come

stabilito, l'obiettivo primario dei sistemi di salvaguardia internazionale è la tempestiva rivelazione di eventuali movimenti di quantità significative di materiale nucleare e, negli Stati che hanno aderito al Protocollo Aggiuntivo, la rivelazione di attività nucleari non dichiarate. Il sistema offre una capacità limitata di rivelazione nei confronti della minaccia legata a quantità molto piccole di materiale nucleare deviato dagli insider nel tempo o nei confronti degli sforzi dedicati da una nazione per rendere segrete alcune attività nucleari. Inoltre, solo una porzione molto piccola dell'inventario mondiale del materiale nucleare *weapon-grade* è soggetta alle ispezioni IAEA. Per esempio, i materiali nucleari nei programmi militari non sono soggetti a salvaguardia internazionale. A causa di tali limitazioni è vitale che gli Stati sviluppino proprie capacità per rivelare perdite di materiale nucleare o prevenire o rivelare attività nucleari clandestine e cooperare per ridurre tali minacce.

### ***1.3 Prevenzione del terrorismo nucleare***

La possibilità che terroristi possano acquisire e usare armi nucleari è una sfida particolarmente importante in questo periodo storico per la sicurezza globale.

La detonazione di un dispositivo nucleare da 10 chilotoni in un'area urbana provocherebbe centinaia di vittime istantaneamente e supererebbe le capacità di risposta medica e di emergenza anche della nazione più sviluppata. Un potenziale attacco a Washington, D.C., potrebbe eliminare parte della leadership nazionale americana e limitare le capacità di reazione delle agenzie federali. Il bilancio delle perdite umane e l'impatto psicologico sarebbero incalcolabili. Le conseguenze economiche sovrasterebbero quelle degli attacchi dell'11 Settembre. Le libertà civili fondamentali e il commercio aperto globale sarebbero limitati nel periodo successivo all'attacco. In breve, un attacco terroristico nucleare di successo potrebbe paralizzare anche la nazione più potente e degradare la qualità della vita di centinaia di milioni di persone.

Il passo più difficile per completare un piano terroristico finalizzato a un attacco nucleare è però l'acquisizione di una sufficiente quantità di materiale fissile.

Un attacco meno devastante ma ancora estremamente perturbatore potrebbe essere condotto dai terroristi utilizzando materiali radiologici mediante i cosiddetti *Radiological Dispersal Device* (RDD). Un RDD non causa un'esplosione nucleare ma usa esplosivo chimico per diffondere radioattività. Esso potrebbe causare un severo disagio e panico in un'area urbana, senza causare un gran numero di vittime. A causa del comune uso di radionuclidi nell'industria, agricoltura e medicina, questi materiali radioattivi potrebbero essere più facili da reperire per i terroristi. L'IAEA riporta che più di 100 Paesi presentano controlli inadeguati per prevenire o rivelare il furto di materiale radioattivo necessario per fabbricare un RDD (8).

Anche se il materiale nucleare o le armi nucleari sfuggono alla custodia di coloro che sono autorizzati a possederli, ci sono ancora alcuni mezzi legali, amministrativi e tecnici che potrebbero prevenire l'acquisizione dei materiali, la costruzione dell'arma e il lancio sul bersaglio da parte dei terroristi. Una capacità tecnica che può giocare un ruolo significativo nella difesa contro il terrorismo nucleare è l'abilità di rivelare il materiale nucleare durante il transito da un posto ad un altro. La scienza e la tecnologia usate per costruire equipaggiamenti di rivelazione e misura di radiazione con finalità di salvaguardia nucleare hanno fornito il fondamento per lo sviluppo di rivelatori di materiali nucleari che possono sventare un piano di contrabbando attraverso le frontiere o di un loro posizionamento vicino al bersaglio.

Diverse sono le sfide che i sistemi di rivelazione devono affrontare, in particolare:

- l'HEU è facilmente schermabile per gli attuali equipaggiamenti di rivelazione passiva di radiazione;

- è necessaria una rapida distinzione tra materiali nucleari che rappresentano una minaccia e quelli che sono trasportati o usati giornalmente attraverso il mondo per scopi benefici commerciali;
- è necessario individuare le modalità con cui rispondere in seguito alla rivelazione di materiale potenzialmente pericoloso. Per esempio, se un sistema automatico di screening di veicoli su una strada principale rivela la presenza di materiale radioattivo, la capacità delle autorità di isolare, tracciare e intercettare il veicolo che contiene materiale nucleare può costituire una sfida importante.

Questi sono solo alcuni esempi degli ostacoli da superare nella creazione di sistemi di rivelazione efficienti per la difesa contro il terrorismo nucleare.

## 2. Tecnologie di rivelazione dei materiali nucleari

La rivelazione e caratterizzazione dei materiali nucleari contribuisce alla *safety* e *security*, alle salvaguardie nucleari, alla non proliferazione e alla rivelazione di traffico illecito di materiali nucleari e sorgenti radioattive. Le principali tecnologie coinvolte nella misura dei materiali nucleari includono analisi distruttive (DA, *Destructive Analysis*) e analisi non distruttive (NDA, *Non Destructive Analysis*).

- Le analisi distruttive presuppongono il campionamento e l'elaborazione chimica e fisica del campione e fanno riferimento alla chimica analitica e alla spettrometria di massa che sono tipicamente le tecniche di misura disponibili più accurate. In ogni caso, esse richiedono un laboratorio fisso per ricevere e analizzare campioni di materiale e il trasporto del campione e l'analisi spesso implicano una significativa quantità di tempo prima che i risultati siano disponibili.
- Le analisi non distruttive di solito misurano l'intero oggetto piuttosto che una piccola parte di esso e forniscono risultati immediati. Tipicamente sono meno accurate delle analisi distruttive, anche se in alcuni casi le loro prestazioni si avvicinano a quelle delle DA. Esse sono, comunque, di solito più rapide e meno costose. Sono spesso usate quando è impossibile estrarre un campione dall'oggetto da analizzare, per esempio rifiuti, rottami e materiali di produzione, oppure barre di combustibile nucleare e *assembly*. Sono applicate per controlli di processo, sicurezza per la criticità, analisi di rifiuti, ispezioni di salvaguardia e di routine.

Di seguito si descriveranno brevemente pregi e difetti delle analisi distruttive e non distruttive entrando, poi, nel merito di ciascuna tecnica al fine di metterne in luce l'effettiva applicabilità al campo della sicurezza nucleare intesa come descritto finora, ovvero nell'ottica dell'identificazione mediante misure in campo dei materiali nucleari illeciti potenzialmente destinati ad atti di terrorismo. Come sarà evidente, alcune tecniche

risultano molto adatte ad attività di laboratorio, quando occorre qualificare il materiale o scoprirne la provenienza (9) (10). Più difficili risultano le applicazioni da campo ove è necessario determinare la potenziale presenza di materiale senza che il campione possa essere manipolato, o comunque limitando tali azioni preliminari al minimo. In altre parole, si cerca di affrontare il seguente scenario: l'indagine rapida ed accurata di una 'black box' in cui va determinata o meno la presenza del materiale nucleare, con ragionevole certezza.

## ***2.1 Analisi distruttive***

La chimica analitica fornisce di solito le tecniche più accurate per analizzare metalli puri e composti. La maggior parte delle tecniche richiede la distruzione e l'analisi di un piccolo campione rappresentativo di materiale omogeneo. Materiali disomogenei non possono produrre campioni rappresentativi e perciò richiedono l'utilizzo di procedure più complesse (ad esempio tecniche di omogeneizzazione) oppure l'analisi mediante tecniche non distruttive. Alcune delle tecniche più utilizzate per i materiali nucleari sono la gravimetria, la titolazione e la spettrometria di massa. (11)

La gravimetria fa riferimento alla determinazione molto accurata della massa di uranio e plutonio puri che sono stati convertiti in  $U_3O_8$  o  $PuO_2$ . Le impurezze non volatili sono determinate spettrometricamente e i risultati corretti.

Nelle titolazioni, la concentrazione di U e Pu in soluzione è determinata mediante la lenta aggiunta di un reagente tarato che reagisce con lo ione ignoto finché tutto non ha reagito. La concentrazione dello ione U o Pu può essere poi calcolata a partire dalla quantità di reagente che è stato aggiunto. L'*end point* della reazione è rivelata osservando il cambio di colore (viraggio) o da vari metodi elettrici.

La spettrometria di massa è una procedura di misura altamente sviluppata per determinare la composizione isotopica di campioni di uranio e plutonio. Gli spettrometri

di massa commerciali sono i più comunemente usati per determinazioni di alta precisione delle composizioni isotopiche di uranio e plutonio. I campioni di uranio e plutonio sono depositati su uno speciale filamento inserito all'interno dello spettrometro. Il filamento viene scaldato lentamente da una corrente elettrica facendo evaporare gli ioni di uranio e plutonio. Gli ioni sono accelerati in un campo elettrico e passano attraverso un forte campo magnetico ortogonale alla traiettoria degli ioni, che a causa della forza di Lorentz, curvano con un raggio che è funzione della massa: gli ioni di massa diversa lasciano il settore magnetico su traiettorie leggermente differenti. Ad una certa distanza oltre il settore magnetico sono posizionate piccole coppe di raccolta in posizioni che corrispondono alle traiettorie degli ioni di interesse. I numeri degli ioni che incidono sulle coppe di raccolta sono utilizzati per determinare la composizione isotopica di uranio e plutonio. Utilizzando la tecnica *Isotope Dilution Mass Spectrometry* è inoltre possibile determinare accuratamente la concentrazione totale di uranio e plutonio oltre alla composizione isotopica. Un quantitativo ben noto di  $^{233}\text{U}$  o  $^{242}\text{Pu}$  è aggiunto al campione di uranio e plutonio ed è depositato sul filamento. Il rapporto tra i vari isotopi di U e Pu e il quantitativo di riferimento permette all'analista di calcolare la concentrazione totale di U e Pu.

## ***2.2 Analisi non distruttive***

Le tecniche di analisi non distruttive caratterizzano i materiali nucleari senza alterazione o contatto diretto con l'oggetto ispezionato. La maggior parte delle tecniche di analisi non distruttive rivela radiazione, spontanea o indotta, proveniente dall'oggetto.

- Le tecniche passive rivelano la radiazione che è spontaneamente emessa durante il decadimento nucleare.
- Le tecniche attive rivelano la radiazione indotta da irraggiamento neutronico o gamma.

Le principali radiazioni provenienti da materiale nucleare sono particelle  $\alpha$ ,  $\beta$ , radiazione  $\gamma$ , raggi X e neutroni. L' $^{235}\text{U}$ , per esempio, decade  $\alpha$  in  $^{231}\text{Th}$  emettendo particelle  $\alpha$  di energie intorno ai 4 MeV e radiazione gamma con le caratteristiche di energia e intensità riportate in Tab.2-1.

Tabella 2-1 – Principali emissioni gamma dell' $^{235}\text{U}$ .

Energia (keV)	Branching ratio <sup>7</sup>
185.7	0.57
143.8	0.11
163.4	0.05
205.3	0.05

Le particelle  $\alpha$  e  $\beta$  non riescono a penetrare sufficientemente il materiale quindi non risultano utili all'analisi. La radiazione  $\gamma$ , i raggi X e i neutroni, elettricamente neutri, sono radiazioni fortemente penetranti il materiale e sono usati, pertanto, nelle tecniche di analisi non distruttive.

### 2.2.1 Spettrometria gamma

Nei materiali nucleari i raggi X hanno tipicamente energie comprese nel range 80-120 keV e i raggi  $\gamma$  nel range 60-1000 keV. I materiali contenenti torio emettono radiazione  $\gamma$  con energie fino a 2600 keV. I raggi  $\gamma$  hanno energie e intensità uniche per ogni radionuclide, la loro energia costituisce una firma per i nuclidi presenti e le loro intensità, se correttamente interpretate, forniscono informazioni sulla massa o la concentrazione di tale radionuclide in un dato materiale.

- Misura dell'arricchimento dell'uranio. L'arricchimento dell'uranio può essere misurato utilizzando diversi tipi di rivelatori  $\gamma$ . Il metodo più semplice si basa sulla

---

<sup>7</sup> Per **branching ratio** si intende il rapporto tra la probabilità di decadimento in un dato canale e la probabilità di decadimento totale.

misura del  $\gamma$  da 185.7 keV dell' $^{235}\text{U}$ . A causa dell'alta attenuazione del  $\gamma$  di relativa bassa energia da parte dell'uranio stesso, la sua intensità è, nella maggior parte dei campioni, direttamente proporzionale non alla massa ma all'arricchimento di  $^{235}\text{U}$ . Per la taratura di un sistema di questo tipo sono richiesti *reference standard* ben caratterizzati. Usando gli esistenti rivelatori al germanio ad alta risoluzione è possibile determinare le complete composizioni isotopiche (per esempio  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$  e  $^{238}\text{U}$ ). I programmi utilizzati per tale analisi sono FRAM<sup>8</sup> (12) e MGAU<sup>9</sup> (13) e nessuno dei due richiede l'utilizzo di *reference standard*.

- Misura della composizione isotopica di plutonio. Le misure di composizione isotopica di plutonio possono essere condotte solo con rivelatori ad alta risoluzione. La ragione risulta evidente osservando la Tab.2-2 in cui sono riportate le energie e le intensità della maggior parte dei  $\gamma$  emessi dagli isotopi del plutonio. Essendo le firme  $\gamma$  molto ravvicinate tra loro risulta di fondamentale importanza l'utilizzo di rivelatori ad alta risoluzione.

Tabella 2-2 – Maggiori firme gamma dei diversi isotopi di plutonio. (\*) I gamma indicati provengono dall' $^{237}\text{U}$ , un debole prodotto di decadimento del  $^{241}\text{Pu}$ .

Region (keV)	$^{238}\text{Pu}$		$^{239}\text{Pu}$		$^{240}\text{Pu}$		$^{241}\text{Pu}$ - $^{237}\text{U}$ (*)		$^{241}\text{Am}$			
	(keV)	$\gamma$ /s/g	(keV)	$\gamma$ /s/g	(keV)	$\gamma$ /s/g	(keV)	$\gamma$ /s/g	(keV)	$\gamma$ /s/g		
40–60	43.5	2.5 e8	51.6	6.2 e5	45.2	3.8 e6			59.5	4.5e10		
90–105	99.9	4.6 e7	98.8	2.8 e4	104.2	5.9 e5	103.7	3.9 e6	98.9	2.6 e7		
									103.0	2.5 e7		
120–450	152.7	6.1 e6	129.3	1.4 e5	160.3	3.4 e4	148.6	7.2 e6	125.3	5.2 e6		
			375.0	3.6 e4					*208.0	2.0 e7	335.4	6.3 e5
			413.7	3.4 e4					*332.4	1.1 e6		
450–800	766.4	1.4 e5	646.0	3.4 e2	642.5	1.0 e3			662.4	4.6 e5		
									722.0	2.5 e5		

<sup>8</sup> Si tratta di un software sviluppato da ORTEC per l'analisi dello spettro gamma acquisito con un rivelatore HPGe o con un CdTe al fine di ricostruire la composizione isotopica di un ampio range di campioni eterogenei contenenti plutonio, americio e uranio.

<sup>9</sup> Si tratta di un software sviluppato da CANBERRA per la determinazione della composizione isotopica di campioni di uranio a partire da spettri acquisiti con un rivelatore a germanio. L'acronimo sta per *Multi-Group Analysis for Uranium*.

Il rivelatore per eccellenza utilizzato in tali circostanze è quello al germanio a elevata purezza, che presenta la migliore risoluzione (Fig.2-2).

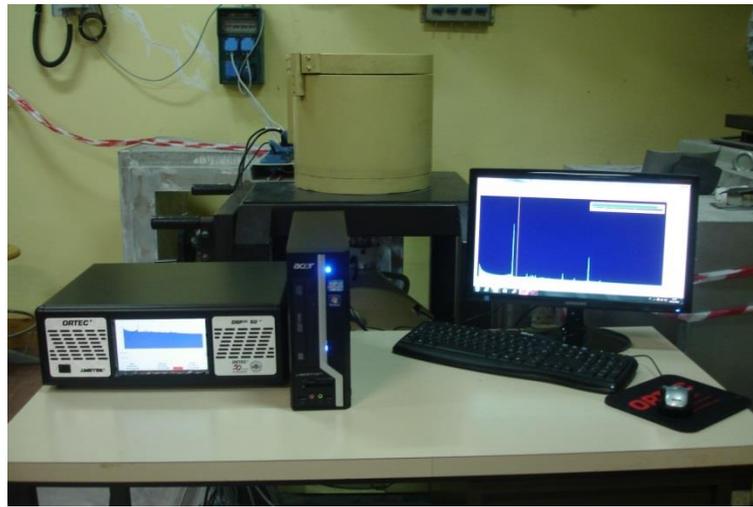


Figura 2-1 – Rivelatore al germanio per analisi mediante i software MGA e MGAU.

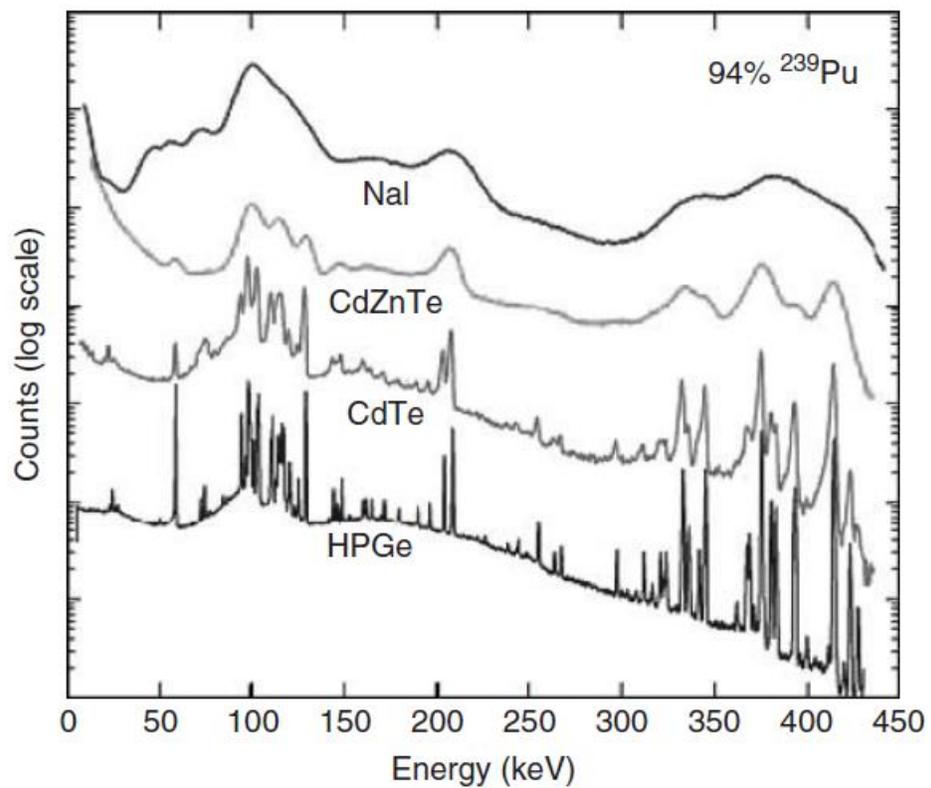


Figura 2-2 – Confronto tra gli spettri gamma prodotti da un campione contenente il 94% di  $^{239}\text{Pu}$  acquisiti con quattro rivelatori diversi.

Essendo troppo pesante da trasportare, nelle applicazioni portatili il rivelatore a Germanio può essere sostituito dal rivelatore a CdTe che presenta una risoluzione sufficiente per determinare la composizione isotopica del plutonio. I programmi utilizzati per la determinazione della composizione isotopica del plutonio sono FRAM e MGA<sup>10</sup> che sono in grado di effettuare l'analisi di composizione isotopica di campioni che contengono sia plutonio puro che ossidi misti. Il software MGA originariamente effettuava l'analisi esclusivamente nella regione energetica compresa fra 94 e 104 keV che è la più intensa nello spettro del plutonio. Versioni recenti permettono l'analisi fino a 850 keV per gestire materiali in contenitori altamente attenuanti. Il software FRAM permette l'analisi nella regione compresa fra 94 e 104 keV e in altre regioni, fino a 850 keV circa. Entrambi i programmi utilizzano una procedura chiamata *response-function fitting* per analizzare lo spettro gamma del plutonio. Una funzione di risposta è la descrizione matematica dello spettro atteso da un singolo isotopo puro.

MGA e MGAU analizzano la radiazione  $\gamma$  degli isotopi del Pu e dell'U, rispettivamente, con energia compresa tra 90 e 105 keV, tuttavia tali radiazioni devono essere in grado di attraversare il campione misurato senza essere assorbiti. Se il plutonio o l'uranio sono in un contenitore a parete spessa o sono schermati da piombo i raggi  $\gamma$  non sono in grado di attraversare il rivelatore e lo spettro nella regione compresa tra 90 e 105 keV scompare (Fig.2-3). Lo spessore limite è di circa 10 mm di ferro o 1 mm di piombo.

---

<sup>10</sup> Si tratta di un software sviluppato da CANBERRA per la determinazione della composizione isotopica di campioni di plutonio a partire da spettri acquisiti con un rivelatore a germanio. L'acronimo sta per *Multi-Group Analysis*.

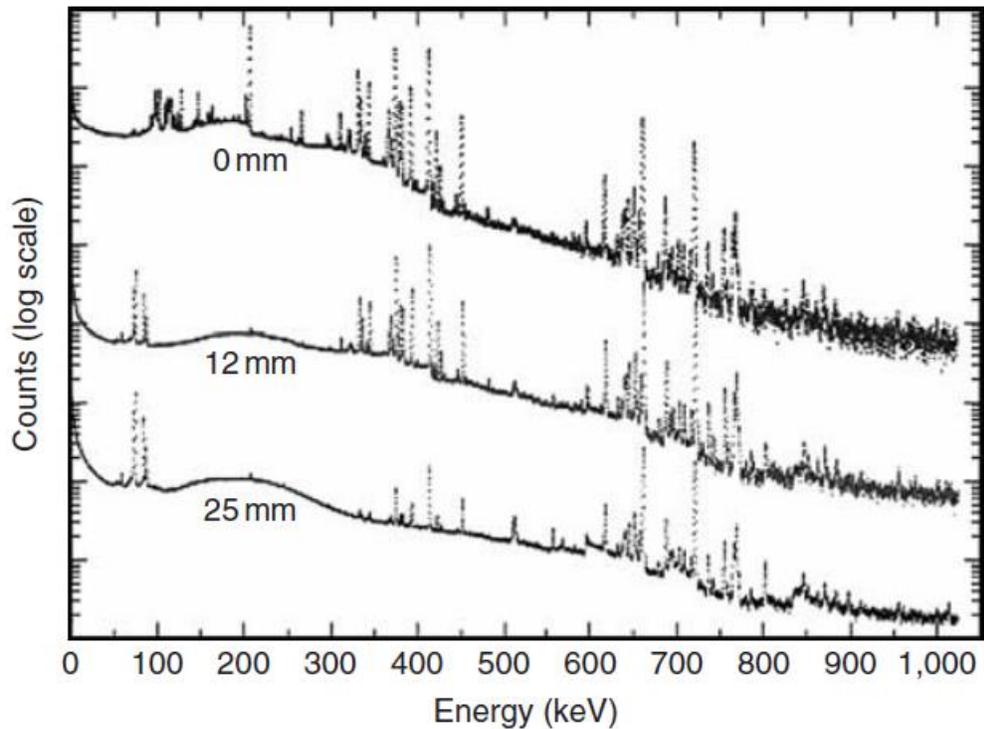


Figura 2-3 – Spettri gamma acquisiti con un rivelatore al germanio per un campione di plutonio schermato con 0, 12, 25 mm di piombo. I picchi intorno a 75 keV sono raggi X di fluorescenza del piombo.

Poiché FRAM e le più recenti versioni di MGA sono in grado di analizzare energie più elevate, essi hanno lo svantaggio di determinare con minore accuratezza la composizione isotopica per contenitori di spessore maggiore.

- Misura della massa dei nuclidi. Sotto certe condizioni è possibile misurare le masse di nuclidi individuali di uranio e plutonio mediante raggi  $\gamma$ . Il principale limite è che i materiali nucleari presentano un alto numero atomico e di solito sono molto densi; pertanto danno luogo a scattering e assorbono prontamente i propri raggi  $\gamma$ , rendendo necessaria una correzione per tale attenuazione. Il metodo più utile per la correzione coinvolge la misura della trasmissione di una sorgente  $\gamma$  esterna attraverso una o più regioni del campione misurato che è assunto essere uniforme. Il campione misurato dovrebbe essere un ossido che contiene U o Pu. Il rivelatore vede l'intero campione e misura la radiazione  $\gamma$  da 413.7 keV del  $^{239}\text{Pu}$  o la radiazione  $\gamma$  da 185.7 keV del  $^{235}\text{U}$ . Vengono inoltre rivelati i  $\gamma$  di una sorgente di

trasmissione ( $^{75}\text{Se}$  a 401 keV o  $^{169}\text{Yb}$  a 177.2 keV e 198.0 keV) per misurare il coefficiente di assorbimento lineare effettivo. Questo tipo di analisi è chiamato *far-field assay* perché la distanza rivelatore-campione è molto più grande di qualunque dimensione del campione o del rivelatore.

Poiché molti campioni di materiali nucleari non sono uniformi, sono state sviluppate diverse variazioni al metodo di analisi che dividono il campione misurato in un numero di elementi che sono misurati individualmente. La procedura iniziale, conosciuta come *segmented  $\gamma$ -ray scanning (SGS)*, collima il rivelatore lungo l'asse verticale, ruota il campione e effettua la scansione verticale. In pratica tratta un campione cilindrico come una serie di campioni a forma di disco ognuno dei quali è misurato separatamente per attività e attenuazione per plutonio e uranio (14).



Figura 2-4 – Segmented gamma scanner.

Quando si è resa disponibile la moderna potenza computazionale, l'idea del SGS è stata trasportata nel mondo della tomografia (15). Il *tomographic gamma-ray scanner (TGS)* è stato progettato in modo tale che campioni contenenti U o Pu fino a 208 litri possano essere ruotati, traslati verticalmente, traslati orizzontalmente e

analizzati come un grande numero di piccoli elementi di volume chiamati *voxel*. Scansioni separate sono condotte per misurare la trasmissione attraverso il campione usando una sorgente di  $^{75}\text{Se}$  (401 keV) e per rivelare l'emissione  $\gamma$  da 413.7 keV del  $^{239}\text{Pu}$ . La TGS può caratterizzare fusti di rottami, rifiuti e residui con densità superiori a quelle possibili con una SGS. La tecnica può essere usata anche per misurare  $^{235}\text{U}$ , a condizione che le densità del materiale permettano ai  $\gamma$  da 185.7 keV di penetrare il contenitore e il suo contenuto. La sorgente di trasmissione scelta è in questo caso  $^{169}\text{Yb}$  (177.2 keV e 198.0 keV).

- Analisi gamma di soluzioni. I metodi di analisi gamma discussi possono essere applicati a contenitori di soluzioni di uranio e/o plutonio per misurare le abbondanze isotopiche di  $^{235}\text{U}$  o  $^{239}\text{Pu}$ . Inoltre, esistono due tecniche di misura utilizzate per valutare la concentrazione totale in soluzione di uranio e/o plutonio: *x-ray fluorescence (XRF)* e *adsorption-edge densitometry* (oppure *K-edge densitometry, KED*). Per la XRF (16) una sorgente gamma irraggia il campione in soluzione ionizzando elettroni K negli atomi di U e Pu che poi emettono raggi X caratteristici del livello K che sono rivelati in un rivelatore al germanio. La sorgente di eccitazione, di solito  $^{57}\text{Co}$  (122.06 keV e 136.47 keV), è schermata rispetto al rivelatore in modo tale che esso misuri esclusivamente i raggi X emessi all'indietro (Fig.2-5).

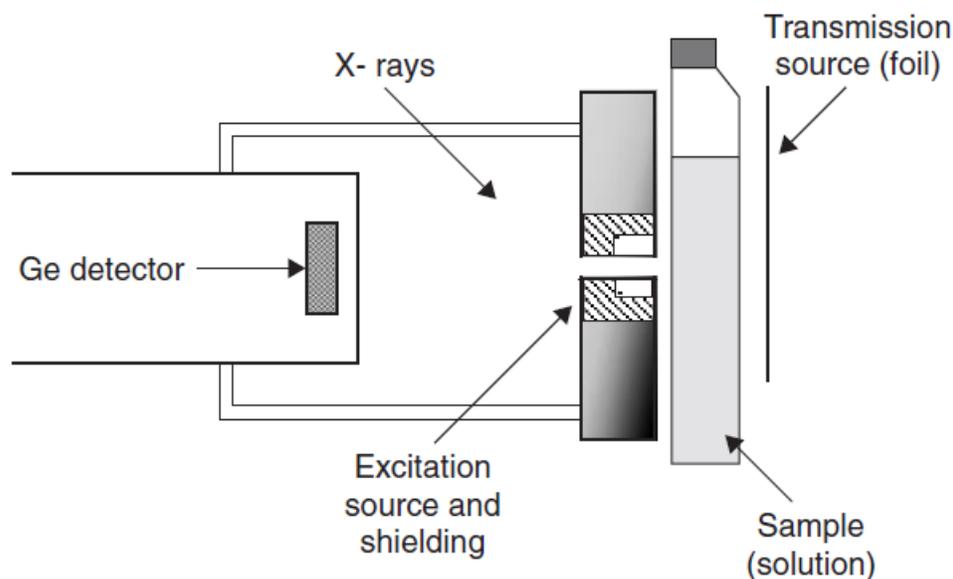


Figura 2-5 – Diagramma rappresentativo della misura XRF di una soluzione di U o Pu.

L'intensità dei raggi X è proporzionale alla concentrazione di uranio e plutonio nel campione. I raggi X dell'uranio e del plutonio sono di energia sufficientemente differente e possono essere risolti mediante un rivelatore al germanio, permettendo l'analisi di soluzioni di MOX<sup>11</sup>. Le soluzioni sono contenute in *vial* fabbricate accuratamente. Soluzioni standard devono essere fabbricate per tarare la misura XRF.

Per quanto riguarda il principio di funzionamento della KED (17), la frazione dei raggi gamma trasmessa attraverso il campione senza interagire è direttamente proporzionale all'esponenziale del prodotto del coefficiente massico di attenuazione, la densità e lo spessore del campione. Il coefficiente di attenuazione massico è una funzione dell'energia eccetto che in corrispondenza delle *edge* di assorbimento degli elementi in soluzione.

<sup>11</sup> MOX è l'abbreviazione di mixed oxide (ossidi misti) e indica una sostanza composta da ossido di uranio e ossido di plutonio.

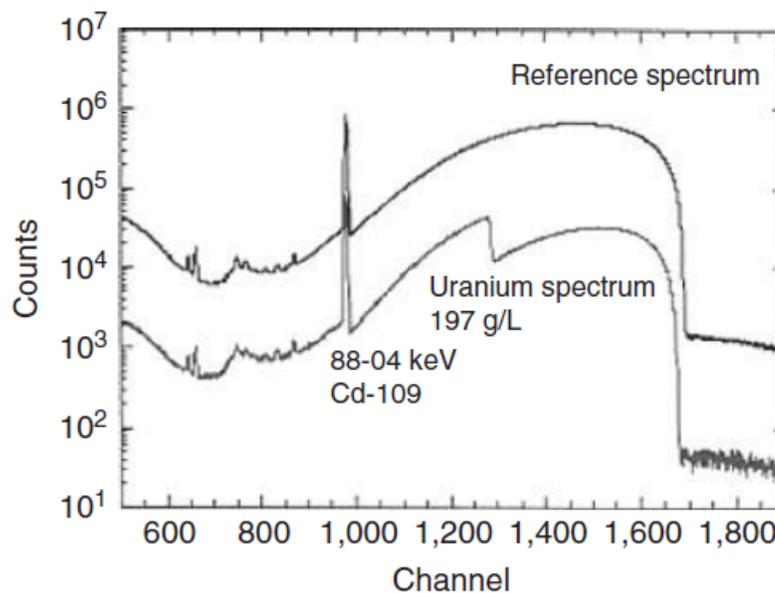


Figura 2-6 – Spettro ottenuto con una KED per la misura di una soluzione di uranio.

In Fig.2-6 è mostrato uno spettro X da un generatore di raggi X senza soluzione assorbente (spettro di riferimento) e con una soluzione contenente 197 g/l di uranio. La *K-edge*<sup>12</sup> dell'uranio a 115.61 keV e i suoi effetti mostrano un gradino nella parte dello spettro a più bassa energia. Se l'energia dei raggi X cade al di sotto dell'energia della *K-edge*, gli elettroni K non riescono più a interagire con i raggi X e la trasmissione cresce velocemente. L'altezza di questo gradino è proporzionale alla concentrazione di uranio nella soluzione. Inoltre, l'attenuazione del solvente, di solito acido nitrico, presenta nella maggior parte dei casi la stessa entità su entrambi i lati della *edge* di assorbimento, in tal modo il suo effetto è minimo. La KED può essere realizzata con sorgenti discrete di raggi gamma scegliendo due sorgenti, una precedente e una successiva alla *K-edge*. Per esempio, la *K-edge* del plutonio è a 121.82 keV e due possibili sorgenti di trasmissione sono <sup>57</sup>Co (122.1 keV) e <sup>75</sup>Se (121.1 keV). La KED è possibile anche facendo riferimento alla *L-edge* (17.17 keV per U e 18.05 keV per Pu) usando una macchina a raggi X appropriata.

<sup>12</sup> Per *K-edge* si intende il picco dovuto a fotoni con energia leggermente superiore all'energia di legame degli elettroni atomici della K-shell.

In soluzioni MOX, la concentrazione di uranio e plutonio possono essere misurate con la KED usando un generatore di raggi X.

### 2.2.2 *Analisi neutronica*

I neutroni, così come i raggi gamma, sono elettricamente neutri ma possono penetrare materiali ad alto numero atomico e alta densità più efficacemente dei raggi gamma. Per questo sono usati per effettuare la caratterizzazione radiologica di materiali più densi o conservati in contenitori più grandi rispetto a quelli che possono essere analizzati con la radiazione gamma. Un'altra proprietà utile dei neutroni è il minor numero di sorgenti naturali di background, il quale è costituito quasi esclusivamente dai neutroni solari e i neutroni provenienti dall'interazione dei raggi cosmici con l'atmosfera.

I materiali nucleari producono neutroni in tre modi:

- Reazioni ( $\alpha, n$ ) su elementi a basso numero atomico come ossigeno o fluoro;
- Fissione spontanea;
- Fissione indotta.

Tutti gli isotopi del plutonio subiscono fissione spontanea ed emettono due o quattro neutroni per fissione in media. Anche l' $^{238}\text{U}$  decade per emissione spontanea ma con un'intensità molto bassa. In Tab.2-3 sono riportati i ratei di neutroni emessi per unità di massa da alcuni isotopi dell'uranio e del plutonio.

Tabella 2-3 – Ratei di emissione di neutroni per fissione spontanea e reazione ( $\alpha,n$ ) per alcuni isotopi del plutonio e dell'uranio.

<b>Spontaneous fission</b>	
<b>Isotope</b>	<b>Neutrons/g-s</b>
$^{238}\text{U}$	0.011
$^{238}\text{Pu}$	2,500
$^{240}\text{Pu}$	1,020
$^{242}\text{Pu}$	1,700
$^{244}\text{Cm}$	11,000,000
<b>(<math>\alpha,n</math>) Neutrons</b>	
<b>Material</b>	<b>Neutrons/g-s</b>
$^{240}\text{Pu}$ oxide	170
$^{240}\text{Pu}$ fluoride	16,000
$^{235}\text{U}$ fluoride	580

Gli isotopi dispari del plutonio e dell'uranio sono nuclei fissili, ovvero possono subire fissione indotta se sono irraggiati con una sorgente neutronica esterna.

Gli isotopi pari sono invece fissionabili, ovvero possono subire fissione indotta ma solo da neutroni di una certa energia minima: per questo la reazione di fissione sui nuclei pari di uranio e plutonio è una reazione a soglia.

La fissione nucleare, quale che sia la sua origine, produce –oltre ai frammenti di fissione– un “pacchetto” discreto di neutroni generalmente emessi tutti insieme, un certo tempo dopo l'evento di fissione. Proprio perché legati alle dinamiche dell'evento di fissione, i neutroni in tale “pacchetto” sono definiti temporalmente correlati, e questa caratteristica è quella generalmente indagata dai sistemi di rivelazione di fissili basati su neutroni, poiché la rivelazione di un “pacchetto” di neutroni con elevata probabilità equivale ad aver misurato un evento di fissione. È difatti possibile anche che siano rivelati “pacchetti” fittizi dovuti alla composizione accidentale di neutroni dovuti a diversi eventi, e tali “pacchetti” accidentali vanno discriminati dai veri “pacchetti” di fissione.

Per quanto detto, mentre ci sono alcune applicazioni in cui tutti (i singoli) neutroni sono rivelati, la maggior parte delle misure che coinvolgono i materiali nucleari contano le coincidenze<sup>13</sup> dei neutroni da fissione. Di solito è difficile interpretare il rateo dei neutroni singoli perché le reazioni ( $\alpha, n$ ) dipendono dalla natura del nucleo bersaglio e dall'accoppiamento fisico con la sorgente di particelle alfa.

### *Tecniche neutroniche passive*

Le tecniche neutroniche passive sono tecniche di correlazione temporale, che si basano sulla distribuzione di molteplicità dei neutroni prodotti dagli eventi di fissione. A differenza delle reazioni ( $\alpha, n$ ), da un evento di fissione indotta o spontanea è emesso un numero di neutroni compreso fra 0 ed 8 secondo una distribuzione che può essere approssimata ad gaussiana di deviazione standard  $\sigma=1.08$  e di valor medio  $\bar{\nu}$ , caratteristico del radioisotopo. Le distribuzioni normalizzate di molteplicità per fissione spontanea degli isotopi di interesse per analisi passive sono riportate in Tab.2-4.

---

<sup>13</sup> Con coincidenza si intende la rivelazione di un pacchetto di neutroni temporalmente correlati secondo tempistiche compatibili con l'evento di fissione. Una coincidenza è definita reale se la sua origine è stata un evento di fissione. Si tratta di una coincidenza accidentale se invece essa è originata dalla combinazione casuale di neutroni provenienti da eventi differenti, come le reazioni ( $\alpha, n$ ).

Tabella 2-4 – Distribuzione di molteplicità per fissione spontanea e indotta (f.i.) per alcuni isotopi di interesse.

$P(\nu)$	$^{238}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}$	$^{242}\text{Cm}$	$^{244}\text{Cm}$	$^{252}\text{Cf}$	$^{239}\text{Pu}$ f.i.(0,025 eV)	$^{240}\text{Pu}$ f.i.(2 MeV)
0	0,054	0,066	0,068	0,021	0,015	0,002	0,011	0,006
1	0,205	0,232	0,230	0,147	0,116	0,026	0,099	0,061
2	0,380	0,329	0,334	0,327	0,300	0,127	0,275	0,227
3	0,225	0,251	0,247	0,327	0,333	0,273	0,327	0,326
4	0,108	0,102	0,099	0,138	0,184	0,304	0,205	0,259
5	0,208	0,018	0,018	0,037	0,043	0,185	0,073	0,096
6		0,002	0,003	0,003	0,009	0,066	0,010	0,022
7				0,001		0,015	0,001	0,003
8						0,002		0,001
$\nu_1$	2,21	2,156	2,145	2,540	2,720	3,757	2,876	3,163
$\nu_2$	3,957	3,825	3,794	5,132	5,939	11,962	6,748	8,240
$\nu_3$	5,596	5,336	5,317	8,036	10,101	31,812	12,589	17,321

La maggior parte dei rivelatori di neutroni per analisi di materiali nucleari utilizzano contatori proporzionali a  $^3\text{He}$  alloggiati nel polietilene. Un grande impegno è stato speso nello sviluppo di contatori di neutroni basati sulle tecniche in coincidenza di tutte le forme e le dimensioni per misurare materiali nucleari in diverse forme.



Figura 2-7 – SSNC Small Samples Neutron Counter.



Figura 2-8 – SMNP (Strumentazione per Misure Neutroniche Passive).

- Coincidence counting. (18) Per distinguere le coincidenze correlate, dovute a fissione, dalle coincidenze accidentali, si devono aprire due distinti gate dopo un certo predelay: nel primo gate si misurano sia le coincidenze correlate (reali R) sia le non correlate (accidentali A); nell'altro, aperto con un ritardo superiore al *die-away time*<sup>14</sup>, sono contate solo le coincidenze accidentali. Dalla differenza dei due conteggi si ottengono le coincidenze di neutroni derivanti da processi di fissione spontanea. Le coincidenze reali R sono proporzionali alla massa di plutonio,

---

<sup>14</sup> Il *die-away time* è legato al tempo di vita del neutrone in un rivelatore. Il numero di neutroni al tempo  $t$  è definito come  $N(t) = N_0 e^{-t/\tau}$ , in cui  $N_0$  è il numero iniziale dei neutroni e  $\tau$  è il *die-away time*.

espressa in termini di massa di  $^{240}\text{Pu}$  equivalente. Questa rappresenta la massa di  $^{240}\text{Pu}$  dalla quale si ottiene lo stesso valore di coincidenze della miscela di isotopi pari di plutonio contenuta nel campione. Il *die-away time* di un neutrone in un *coincidence counter* è tipicamente 25-50  $\mu\text{s}$ . Il neutrone è rapidamente termalizzato e subisce diversi scattering prima di essere catturato dal materiale moderatore, oppure dal tubo a  $^3\text{He}$  o fuggire dal contatore. A causa di questo processo, i neutroni che sono nati simultaneamente in una reazione di fissione sono rivelati in tempi diversi. Il circuito di coincidenza usa uno *shift register* (un circuito integrato) che registra i neutroni che sono stati rivelati tipicamente nei primi 64  $\mu\text{s}$  dall'attivazione del circuito di conteggio. Dalla registrazione di questi eventi neutronici lo *shift register* determina un rateo di conteggio netto che è proporzionale al rateo di fissione totale nel campione. Con una taratura appropriata, il rateo di fissione può essere correlato alla massa di  $^{240}\text{Pu}$  equivalente ( $^{240}\text{Pu}_{\text{eff}} = 2.52 \text{ }^{238}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu} + 1.68 \text{ }^{242}\text{Pu}$ ). Tutti i *neutron coincidence counter* che misurano solo le doppie coincidenze richiedono la taratura mediante l'utilizzo di standard di riferimento certificati che simulano il materiale analizzato.

- Multiplicity counting. La tecnica del *neutron coincidence counting* convenzionale fornisce la misura di solo due quantità, le coincidenze reali e quelle accidentali. Comunque, la maggior parte dei campioni non puri di plutonio hanno generalmente tre variabili fondamentali che influenzano l'analisi neutronica: la massa ( $^{240}\text{Pu}_{\text{eff}}$ ), il coefficiente di moltiplicazione (M) e il rapporto tra i neutroni da reazione ( $\alpha, n$ ) e quelli da fissioni spontanea (chiamato  $\alpha$ ). Questo problema ha portato allo sviluppo della tecnica *passive neutron multiplicity counting*. Il principio base del *multiplicity counting* è l'utilizzo di un terzo parametro misurato, chiamato triple coincidenze, che permette la determinazione delle tre proprietà ignote del campione. La disponibilità di un terzo parametro misurato permette una corretta analisi di molti materiali contenenti plutonio senza conoscere a priori la matrice

del campione, includendo ossidi di plutonio non puri, metalli ossidati e alcune categorie di rifiuti o rottami.

La tecnica non richiede una taratura con un set completo di standard fisici rappresentativi. Una nota sorgente di  $^{252}\text{Cf}$  viene utilizzata per calcolare il *die-away time* e l'efficienza di rivelazione. La distribuzione del numero dei neutroni emessi per fissione spontanea è chiamata distribuzione di molteplicità e può variare da zero a otto (19). Un nuovo *shift register* permette la ricostruzione della distribuzione di molteplicità. L'analisi dei dati di solito non è basata direttamente sulla distribuzione di molteplicità osservata ma sui suoi momenti fattoriali. Il primo momento è costituito dai singoletti o *totals*, il secondo momento fattoriale è costituito dalle doppie coincidenze o *reals* e il terzo momento dalle triple coincidenze.

### ***Tecniche neutroniche attive***

- Active coincidence counting. La maggior parte dei materiali contenenti plutonio può essere analizzata con i *passive coincidence counter* (20). L'uranio, a causa delle lunghe vite medie dei suoi isotopi principali, emette molti pochi neutroni per fissione spontanea o reazioni ( $\alpha, n$ ). Comunque, quando un nucleo di  $^{235}\text{U}$  cattura un neutrone, specialmente nel caso di neutroni termici, c'è un'alta probabilità che esso dia luogo a fissione ed emetta neutroni multipli simultaneamente. Per tali ragioni, se si posiziona all'interno della cavità di un *coincidence counter* una sorgente randomica di neutroni, i neutroni provenienti dalla sorgente possono causare fissione sui nuclei di  $^{235}\text{U}$  presenti



Figura 2-9 – Esempio di active coincidence counter: Canberra JCC-51.

nella cavità e il *coincidence counter* può separare statisticamente il rateo di fissione dal rateo di neutroni di sorgente. La sorgente di interrogazione causa un elevato background di singoletti nella cavità ma il circuito di coincidenza dello *shift register* è in grado di misurare il rateo dei doppietti provenienti dalle fissioni sull' $^{235}\text{U}$ .

Comunemente utilizzata è una sorgente di AmLi che emette neutroni con sufficiente intensità (circa  $5 \times 10^4$  n/s) di energia media 0.5 MeV, che è al di sotto della soglia di 1 MeV per la fissione sull' $^{238}\text{U}$ .

- Delayed-neutron activation analysis. Quando un nucleo fissiona, spontaneamente o in altro modo, c'è una pronta emissione di neutroni che sono contati in doppia coincidenza e in molteplice coincidenza e una emissione ritardata di neutroni dal decadimento dei prodotti di fissione. Questi neutroni vengono emessi con un ritardo che va da pochi secondi a un minuto e costituiscono circa l'1.6% dei neutroni totali emessi nel caso di  $^{235}\text{U}$  e circa lo 0.6% nel caso di  $^{239}\text{Pu}$ . Sono di importanza cruciale per la sicurezza e il controllo dei reattori termici ma possono essere utili anche per la misura dei materiali nucleari, specialmente l'uranio. Una sorgente isotopica o un generatore di neutroni può indurre fissioni nell'uranio; se poi la sorgente viene portata lontano o il generatore viene spento un rivelatore può contare i neutroni ritardati da fissione. Questa tecnica chiamata *delayed-neutron activation analysis* (21) (DNAA) fu inizialmente studiata con gli acceleratori Cockcroft-Walton e Van de Graaff. Questi acceleratori soffrono di problemi di affidabilità che hanno spinto allo sviluppo di sistemi di analisi che utilizzano intense sorgenti di fissione spontanea di  $^{252}\text{Cf}$  e sistemi di rapido trasferimento della sorgente tra un grande schermo e la cavità di misura. La sorgente di  $^{252}\text{Cf}$  (fino a  $10^{10}$  n/s) è spostata dal suo schermo nella cavità di misura per irraggiare il campione. Il tempo di trasferimento è tipicamente di circa 0.1 s e il tempo di irraggiamento di 1-10 s. La sorgente è poi ritrasferita all'interno dello schermo e i neutroni ritardati sono rivelati dai contatori proporzionali a  $^3\text{He}$  inseriti nel

polietilene che circondano il campione. Questo processo è ripetuto 30 o più volte finché la statistica di conteggio desiderata non viene raggiunta. Il movimento rapido della sorgente avanti e indietro e il suono che lo accompagna ha dato il nome *shuffler* (mescolatore di carte) al sistema. Di solito si tratta di sistemi grandi, per fusti da 200 l, relativamente costosi per via della sorgente di  $^{252}\text{Cf}$ , il suo meccanismo di guida e lo schermo richiesto. Ce ne sono circa 15 nel mondo in uso perché forniscono la migliore accuratezza per fusti contenenti uranio o rifiuti in cui le masse di uranio sono maggiori di 1 mg. Hanno una buona sensibilità in quanto il segnale da neutroni ritardati è direttamente proporzionale alla intensità della sorgente di  $^{252}\text{Cf}$  e il fondo è tipicamente molto basso. La taratura degli *shuffler* era originariamente basata sulle misure di standard. Oggi calcoli Monte Carlo possono essere usati come valida alternativa per una eccellente taratura previo utilizzo di misure con pochi standard per la validazione della taratura.

- *Differential Die-Away time Analysis*. Si tratta di una tecnica usata nei siti di produzione di rifiuti radioattivi e nella caratterizzazione di rifiuti contenenti radionuclidi transuranici. Il metodo utilizza un generatore pulsato di neutroni da 14 MeV per interrogare in modo attivo il fusto. Dopo ogni impulso i neutroni subiscono scattering, termalizzano e inducono fissioni. I neutroni pronti di fissione forniscono una misura diretta del contenuto di fissile e sono rivelati mediante rivelatori a  $^3\text{He}$  rivestiti di cadmio che circondano la cavità di analisi. Il nome *Differential Die-Away time Analysis* deriva dalla grande differenza tra i tempi di vita caratteristici dei neutroni di interrogazione e i neutroni di fissione rivelati. Questi sistemi sono in grado di rivelare anche i neutroni ritardati di fissione e comportarsi come gli *shuffler*. La maggior parte dei sistemi DDAA e *shuffler* possono essere impiegati per misure neutroniche passive in coincidenza nel momento in cui la sorgente viene allontanata o il generatore viene spento. Strumenti di questo tipo sono chiamati *Passive Active Neutron system* (PAN). Le alte sezioni d'urto per le

fissioni indotte da neutroni termici rendono i sistemi basati sulla DDAA molto sensibili. I limiti di rivelazione vanno da pochi mg a poche decine di mg per  $^{239}\text{Pu}$  o  $^{235}\text{U}$  in un fusto da 208 l in funzione della tipologia di matrice. La moderazione dei neutroni e l'assorbimento nella matrice o l'auto-schermaggio in blocchi di SNM richiede l'uso di fattori di correzione delle matrici per ottenere una buona accuratezza nella misura.

I sistemi combinati di interrogazione neutronica termica-epitermica (CTEN, *Combined Thermal-Epithermal Neutron* interrogation system) sono stati sviluppati per fornire una migliore penetrabilità della matrice e una più accurata correzione della risposta in funzione della matrice. Tali sistemi vedono l'aggiunta di rivelatori a  $^4\text{He}$  e usano grafite anziché polietilene per le pareti della cavità per rivelare neutroni sia termici che epitermici. I neutroni epitermici riescono a penetrare più in profondità mitigando gli effetti dell'auto-schermaggio e in alcuni casi possono essere usati per rivelare l'auto-assorbimento e fornire una correzione. Le tecnologie DDAA e CTEN sono direttamente applicabili alla rivelazione di SNM trafugati e/o di contrabbando. Una nuova soluzione ad alta sensibilità è l'*Active Interrogation Package Monitor*, sistema capace di interrogare campioni di dimensioni dell'ordine di  $1\text{ m}^3$  per SNM schermati usando neutroni sia termici che epitermici. Tale sistema ha una bassa soglia di rivelazione per SNM schermati o, se c'è uno schermo di spessore significativo, di rivelazione della presenza dello schermo.

### 2.2.3 Strumenti portatili

Con il crescente interesse per il traffico illegale di materiali radioattivi e nucleari, RDD e terrorismo nucleare, c'è stata una crescente domanda per sistemi di spettrometria gamma portatili per l'utilizzo in dogana, negli aeroporti e nei porti per identificare e interdire tali materiali pericolosi. Di seguito sono descritti alcuni dei rivelatori gamma portatili più utilizzati.

- FieldSPEC. Il FieldSPEC utilizza un rivelatore a NaI e un piccolo contatore Geiger-Mueller che fornisce una risposta dosimetrica ad alti ratei di dose. Il rivelatore a



Figura 2-10 – FieldSPEC o identiFINDER.

NaI ha una sorgente molto piccola di  $^{137}\text{Cs}$  che emette radiazione gamma a 661.6 keV per la taratura a una singola fissata energia. Il FieldSPEC è relativamente semplice da usare e include diverse modalità di funzionamento: *Dosimeter*, *Source Search*, *Nuclide Identification*, *U/Pu Attribute Test*, *Fuel Assembly/Rod Length Measurement*,  $^{235}\text{U}$  *Enrichment Assay*, *Multichannel Analyzer* (1024 canali). Si tratta di uno strumento molto robusto dal peso di soli 900 g. La libreria presente include gli spettri di circa 80 diversi nuclidi. Tale strumento è usato ampiamente dall'IAEA (il nome dello strumento in questo caso è HM-5) e dal

personale di frontiera. Lo strumento è disponibile anche con un rivelatore al CdZnTe che fornisce una migliore risoluzione energetica sebbene con più bassa efficienza e sensibilità. Lo strumento è anche venduto con il nome identiFINDER (22).

- Canberra InSpector 1000. L'InSpector 1000 (23) è simile al FieldSPEC. Utilizza un



Figura 2-11 – InSpector 1000.

rivelatore a NaI con un Geiger Mueller e necessita di una sorgente di  $^{137}\text{Cs}$  per la taratura in energia, è un *Multichannel Analyzer* (4096 canali) e presenta alcune delle stesse modalità di funzionamento del FieldSPEC: *Source Finder*, *Nuclide Identifier*, *Spectrometer*. Lo strumento funziona a batterie e pesa 1,8 kg. Quando sono completamente cariche le batterie durano fino a circa 12 ore. Lo strumento può essere utilizzato da persone relativamente inesperte, ma fornisce funzioni complete di spettroscopia ad un operatore con più

esperienza. Lo strumento ha applicazioni nella difesa nazionale, nel controllo di dogane e frontiere, nella fisica medica, nell'ottemperanza ai trattati di salvaguardia e della non proliferazione, nel monitoraggio del trasporto di materiale nucleare e nel controllo ambientale.

- Detective ORTEC. Il Detective (24) ha un rivelatore al germanio con un raffreddamento a ciclo di Stirling. Lo strumento si avvale della migliore risoluzione



Figura 2-12 – Detective ORTEC sulla docking station.

del germanio ma sfortunatamente pesa circa 12 kg. In ogni caso la migliore risoluzione permette al Detective di essere in grado di identificare i nuclidi presenti in maniera nettamente migliore rispetto ai due dispositivi portatili mostrati in precedenza. Fornisce inoltre la capacità di identificare i singoli radionuclidi in una miscela, i radionuclidi in presenza di elevati background o di assorbitori spessi. Una piccola sorgente di  $^{137}\text{Cs}$  è montata sulla *docking station*

per effettuare periodicamente la taratura in energia. Lo strumento presenta, come gli strumenti descritti in precedenza, la funzione da dosimetro e di ricerca sorgente. Sono richieste meno di 12 ore per raffreddare il rivelatore e il Detective può operare per circa tre ore consecutive dopo un singolo ciclo di raffreddamento. Può distinguere tra uranio naturale, HEU e LEU.

- LANL GN5. Il LANL GN5 è uno spettrometro che utilizza un cristallo cilindrico di germanio circondato da uno schermo attivo anulare costituito da uno scintillatore a germanato di bismuto (BGO). Può includere anche un piccolo rivelatore a  $^3\text{He}$  per neutroni. Lo strumento è raffreddato elettricamente e le batterie hanno una durata superiore alle 10 ore. Gli impulsi provenienti dal rivelatore a Germanio sono processati in anticoincidenza con gli impulsi provenienti dal BGO per produrre uno spettro con un Compton continuum soppresso, aumentando così la sensibilità alle basse energie. Il peso di questo prototipo è di circa 8.6 kg.

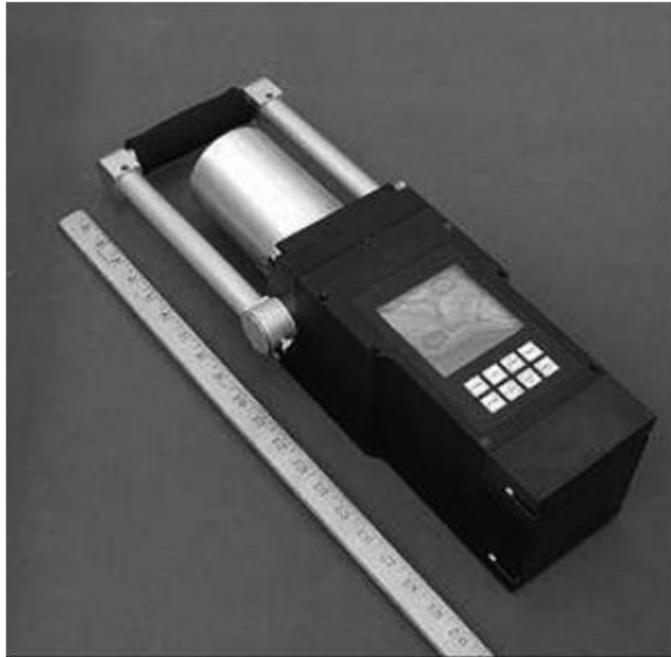


Figura 2-13 – LANL GN5.

In merito alla strumentazione portatile, attualmente sul mercato i sistemi di rivelazione disponibili consentono di ottenere una risposta solo nel caso in cui il campione sospetto venga posto in prossimità del rivelatore stesso e lo stesso campione non sia eccessivamente “schermato” potendo risultare –di fatto– non visibile per il sistema di misura.

### ***2.3 Considerazioni sulla strumentazione e sulle tecniche disponibili***

Recenti esperienze hanno mostrato che circa il 90% di falsi allarmi negli aeroporti è causato da isotopi medicali, quali  $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{67}\text{Ga}$ ,  $^{131}\text{I}$ , presenti nei corpi dei passeggeri. Per container e autocarri il problema maggiore è costituito dagli isotopi naturali, quali il  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$ , contenuti in fertilizzanti al nitrato di potassio, graniti, marmi e lenti delle fotocamere. Uno studio condotto su sette sistemi di identificazione di radionuclidi che utilizzano rivelatori quali NaI, CsI e CdZnTe ha mostrato che il numero delle corrette identificazioni, il numero dei falsi positivi e il numero dei falsi negativi risultano approssimativamente uguali (25). Ci si aspetta che la maggior parte degli utilizzatori di

un rivelatore di materiale radioattivo sia personale come agenti di frontiera o dogana o di polizia aeroportuale che risulta impreparato circa la spettroscopia gamma. Per questo gli strumenti devono essere facili da utilizzare e devono possedere un software di identificazione dei nuclidi robusto che riesca a distinguere con una buona affidabilità tra isotopi medicali e materiale nucleare, ad esempio. Gli strumenti basati su un rivelatore a germanio hanno un significativo vantaggio rispetto allo NaI o al CdZnTe per via della loro migliore risoluzione energetica, ma risultano troppo pesanti per essere trasportati per via del convenzionale sistema di raffreddamento ad azoto liquido o nei rivelatori raffreddati elettricamente per via della massa del necessario schermo di piombo. Il Detective di ORTEC pur essendo trasportabile (ma non portatile come gli altri dispositivi descritti) presenta le problematiche connesse al ciclo di raffreddamento che non lo rendono sempre pronto all'utilizzo. Un approccio alternativo è quello di utilizzare gli identificatori a bassa risoluzione per screening preliminare e avere la disponibilità di un rivelatore al germanio per confermare o smentire i risultati della prima misura.

Nella problematica che ci si è proposti di affrontare in questo lavoro si vogliono superare i limiti appena descritti, ipotizzando e suggerendo un dispositivo che sia in grado di incrementare le capacità d'indagine sul campo. Per quanto detto in precedenza, è evidente che le tecniche di rivelazione più adeguate allo scopo sono quelle basate su neutroni, ed in particolare sulla stimolazione attiva del campione: i vantaggi ne saranno chiari nello sviluppo che segue, in termini di sensibilità, tempi di risposta, discriminazione effettiva del materiale.

L'obiettivo che ci si pone nello sviluppo di questa tesi è dunque la progettazione e la realizzazione di un dispositivo trasportabile e affidabile per la rivelazione di materiale nucleare mediante la tecnica neutronica attiva nota come Differential Die-Away Analysis, di cui si è già descritto sommariamente in questo capitolo l'utilizzo nel campo della caratterizzazione dei rifiuti radioattivi. Nel prossimo capitolo seguirà una descrizione più

dettagliata del principio di funzionamento della tecnica e della sua conversione ad un'applicazione trasportabile per la rivelazione di materiale nucleare di contrabbando.

### **3. Focus sulla tecnica DDAA ai fini della progettazione del sistema di misura**

La Differential Die-Away time Analysis (DDAA) è una tecnica attiva di ispezione nucleare sviluppata originariamente per stabilire la presenza di materiale fissile nei fusti di rifiuti radioattivi. Tale tecnica fu scoperta e brevettata da J.T. Caldwell, W. Kunz e J.D. Atencio al Los Alamos National Laboratory nel 1984 (26).

#### ***3.1 Principio del metodo***

Se si genera un impulso di neutroni veloci e lo si dirige in un grande mezzo idrogenato, non moltiplicante, la popolazione di neutroni veloci ed epitermici nel mezzo raggiungerà un massimo durante la generazione dell'impulso e poi decadrà esponenzialmente dopo la fine dell'impulso ad opera del down-scattering e delle fughe per poi scomparire in pratica dopo pochi microsecondi. (5)

La popolazione di neutroni termici nel mezzo aumenterà rapidamente, su una scala temporale inferiore al microsecondo, a causa della termalizzazione dei neutroni veloci. Poi, quando i neutroni termici saranno o assorbiti o fuggiti dal sistema, la popolazione decrescerà ancora esponenzialmente. La costante di tempo relativa è determinata dalla dimensione fisica e dalla sezione d'urto di assorbimento del mezzo ed è tipicamente alcuni ordini di grandezza più bassa di quella dei neutroni veloci, con un tempo di decadimento dell'ordine delle centinaia di microsecondi.

Se il mezzo non moltiplicante contiene una quantità di materiale fissile al suo interno, la popolazione di neutroni termici decadrà ancora come precedentemente spiegato. Alcuni neutroni termici collideranno con il materiale fissile e causeranno fissioni dando luogo a nuovi neutroni veloci. Il numero di neutroni veloci creati dal processo di fissione in un istante qualsiasi è direttamente proporzionale al numero di neutroni termici presenti in

quello stesso istante. La nuova sorgente di neutroni veloci decade esponenzialmente con la costante di tempo dei neutroni termici. Poiché l'energia media dei neutroni pronti di fissione è circa 2 MeV, i neutroni termici di interrogazione sono semplicemente abbattuti da una schermatura di cadmio che circonda i rivelatori.

La fissione è l'unico meccanismo che può produrre questa sorgente di neutroni veloci in seguito all'impulso del generatore: questa firma unica rende la DDAA una tecnica potenzialmente d'elezione per la rivelazione di materiale fissile.

Oltre ai neutroni pronti derivanti da fissione, è prodotto un ulteriore segnale dovuto ai neutroni ritardati. La rivelazione dei neutroni ritardati è basata esclusivamente su una discriminazione temporale. Anche se essi sono continuamente prodotti durante l'intero tempo di misura, risulta più semplice identificarli quando sia i neutroni di interrogazione che quelli pronti di fissione sono scomparsi. Dal momento che la quantità di neutroni ritardati è però circa 100 volte minore del numero dei neutroni pronti emessi in seguito alla fissione, è necessario adottare una strategia per aumentare la statistica di conteggio: essa consiste nel realizzare un certo numero di cicli di irraggiamento e contare i neutroni ritardati tra ciascun impulso del generatore di neutroni in ciascun ciclo.

Nel caso asintotico per un mezzo omogeneo non moltiplicante, il numero dei neutroni termici prodotti da un breve impulso di neutroni veloci che incide sul mezzo è previsto decadere nel tempo con andamento esponenziale e un tempo di decadimento  $\alpha$ , secondo la teoria della diffusione neutronica ad un gruppo. Il numero dei neutroni termici nel mezzo nell'istante di tempo  $t$  dopo la fine dell'impulso è dato da

$$N(t) = e^{-t/\alpha}$$

La costante di tempo asintotica di questo decadimento è dettata sia dall'assorbimento nel mezzo che dalle fughe dal sistema ed è data da:

$$\frac{1}{\alpha} = \sum_a \nu(1 + L^2 B^2)$$

Dove  $\Sigma_a$  è la sezione d'urto macroscopica di assorbimento,  $v=0.22\text{cm}/\mu\text{s}$  è la velocità di un neutrone termico,  $L^2$  è la lunghezza di diffusione termica e  $B^2$  è il buckling di un parallelepipedo. Queste equazioni descrivono il decadimento asintotico e dipendono solo dal modo fondamentale delle equazioni di diffusione.

Per un impulso di durata  $T_p$ , il flusso di neutroni termici può essere descritto da:

$$N(t) = I_0 \left(1 - e^{-\frac{t}{\alpha}}\right) \quad \text{per } 0 \leq t \leq T_p$$

$$N(t) = I_0 \left(1 - e^{-\frac{t}{\alpha}}\right) e^{(T_p-t)/\alpha} \quad \text{per } t \geq T_p$$

dove  $T_p$  è la larghezza dell'impulso.

Una piccola correzione può essere fatta se il generatore non ha un istantaneo *fall time*<sup>15</sup>. Se il *fall time* dell'impulso del generatore è definito come  $\beta$ , l'equazione diventa:

$$N(t) = I_0 \left(1 - e^{-\frac{t}{\alpha}}\right) \left(e^{\frac{T_p-t}{\alpha}} + e^{\frac{T_p-t}{\beta}}\right) \quad \text{per } t \geq T_p.$$

Quando si incorporano i rivelatori nel sistema si deve tener conto del loro effetto cinetico. Inoltre, se l'obiettivo finale dell'analisi è stabilire l'assenza o la presenza di *Special Nuclear Material* (SNM), è necessario un metodo che quantifichi la rivelazione. Una Figura di Merito (FOM) della rivelazione può essere definita in termini di background attivo (B) e segnale totale (T). Il segnale totale è il numero di neutroni rivelati integrato in una finestra temporale per una interrogazione di un mezzo con presenza di SNM. Il "background" attivo è definito analogamente per gli stessi parametri e lo stesso mezzo in assenza di SNM. È da notare che il background attivo è il conteggio di tutti i neutroni provenienti dall'impulso di interrogazione che non sono un risultato di una fissione, il che è diverso dal background naturale (passivo).

---

<sup>15</sup> Per *fall-time* del generatore si intende il tempo necessario alla corrente ionica per diminuire dal 100% al 20% del valore iniziale

Una FOM per determinare la sensibilità alla presenza di SNM può essere definita nel modo seguente:

$$FOM = \frac{(T - B)}{\sqrt{T + B}}$$

come rapporto tra il segnale netto e la radice quadrata della somma dei quadrati degli errori standard.

I fattori T e B sono valori integrati. Gli estremi di integrazione vanno da un istante di tempo dopo l'impulso di neutroni, in cui il contributo dei neutroni di interrogazione è praticamente dello stesso ordine di grandezza del contributo dei neutroni di fissione, ad un istante di tempo successivo, che potrebbe coincidere con l'inizio dell'impulso successivo. Il valore specifico del gate di integrazione che massimizza la FOM è un parametro variabile soggetto a ottimizzazione. Questa FOM è indipendente dalla forma funzionale di T e B.

### ***3.2 Analisi del grafico segnale-tempo***

Il grafico riportato in Fig.3-1 mostra la distribuzione nel tempo dei conteggi registrati da un sistema in cui siano presenti un generatore di neutroni, materiale moderatore e rivelatori di neutroni rivestiti con liner di cadmio, in presenza e in assenza di materiale fissile (27).

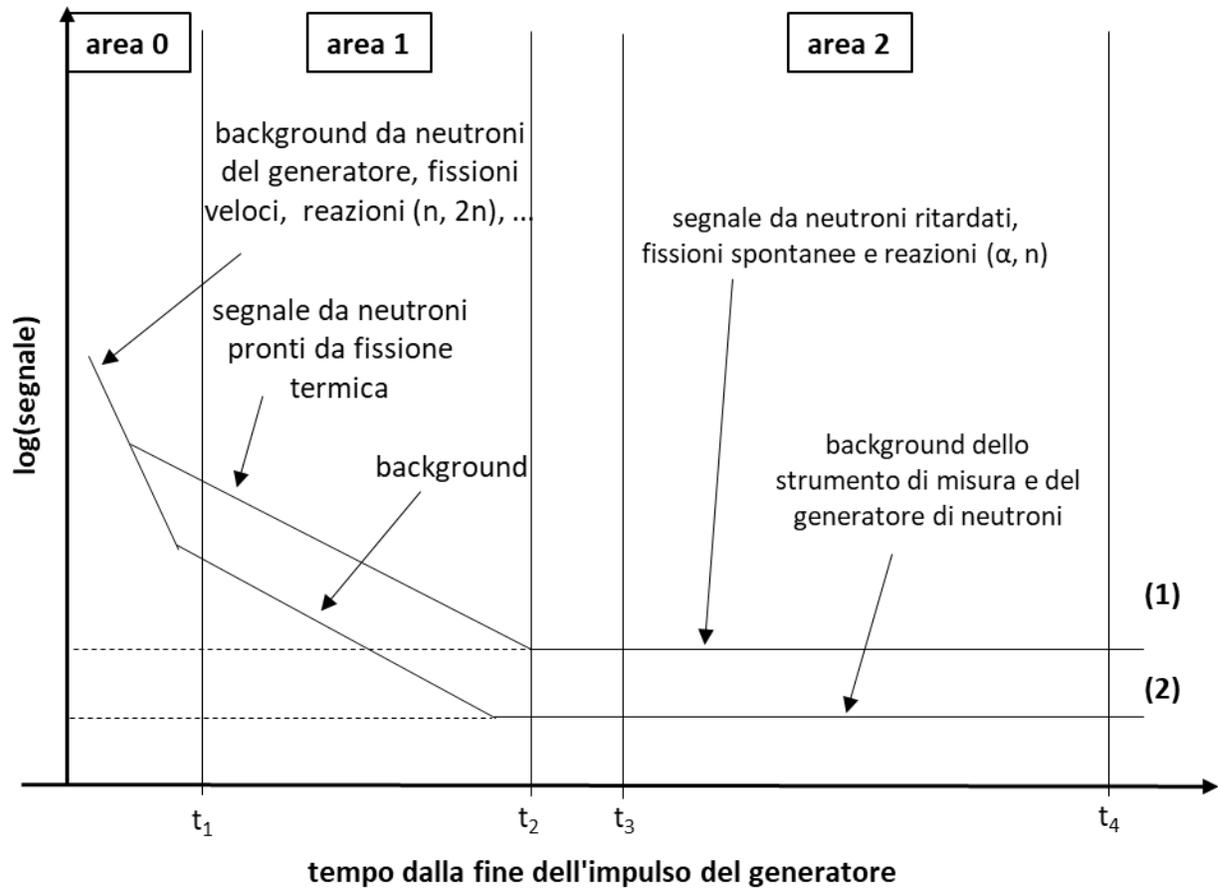


Figura 3-1 - Distribuzione nel tempo dei conteggi in presenza (1) e in assenza (2) di materiale fissile e fissionabile.

È possibile suddividere tale grafico in tre aree:

- Area 0: comprende il segnale proveniente dai neutroni di interrogazione e dalle fissioni veloci. Durante l'irraggiamento sono presenti infatti neutroni veloci, che possono indurre fissione sia sugli isotopi fissili sia su quelli fertili (principalmente  $^{238}\text{U}$ ) producendo sia neutroni pronti che ritardati. I neutroni pronti sono emessi simultaneamente con l'interazione mentre i neutroni veloci di interrogazione sono ancora presenti nel mezzo. Di conseguenza, in questa area, non è possibile discriminare i neutroni pronti prodotti da fissione veloce dai neutroni veloci di interrogazione.

- Area 1: comprende il segnale proveniente dai neutroni pronti da fissione termica. Anche i neutroni termici ed epitermici inducono fissione, ma principalmente sugli isotopi fissili. In questo caso però i neutroni pronti vengono emessi quando ormai i neutroni veloci di interrogazione sono in pratica scomparsi: per fenomeni di down-scattering o fughe sono stati rimpiazzati infatti da un numero minore di neutroni termici ed epitermici (ciò spiega la differenza visibile tra fondo e segnale in tale area del grafico).
- Area 2: comprende il segnale proveniente, oltre che da fissione spontanea e reazione ( $\alpha, n$ ), dai neutroni ritardati, prodotti sia dagli isotopi fissili che da quelli fertili presenti.

### ***3.3 Dalla misura alla determinazione delle masse di fertile e fissile***

I neutroni ritardati sono emessi dai frammenti di fissione e sono divisi in sei gruppi. Il numero dei neutroni ritardati emessi per un gruppo  $i$  durante il tempo  $t_c$  dopo un impulso è:

$$N_d = \tau_{fis} \frac{\beta_i}{\lambda_i} \nu (1 - e^{-\lambda_i t_r}) e^{-\lambda_i t_d} (1 - e^{-\lambda_i t_c})$$

In cui:

$\tau_{fis}$  è il rateo di fissione dipendente dalla sezione d'urto, dalla massa di fissile e fertile e dal flusso neutronico ( $s^{-1}$ ),

$\lambda_i$  è la costante di decadimento radioattivo del gruppo  $i$  ( $s^{-1}$ ),

$\beta_i$  è il numero di neutroni ritardati del gruppo  $i$  prodotti per neutrone di fissione,

$\nu$  è il numero medio di neutroni per fissione indotta,

$t_r$  è l'ampiezza dell'impulso (s),

$t_d$  è il ritardo tra la fine dell'irraggiamento e l'inizio del conteggio (s),

$t_c$  è la durata del conteggio (s) (nella Fig.3-1 corrisponde all'intervallo  $t_4-t_3$ ).

Dato che la rivelazione segue ogni impulso, il numero totale di neutroni ritardati,  $N_{tot}$ , per tutti i gruppi ( $i=1,\dots,6$ ) emessi durante gli  $n$  periodi di conteggio risulta:

$$N_{tot} = \sum_{i=1}^6 \frac{N_d(i)}{(1 - \omega_i^2)} [(n + 1)(1 - \omega_i) - (1 - \omega_i^{n+1})]$$

in cui  $\omega_i = e^{(-\frac{\lambda_i}{f_r})}$ , con  $f_r$  pari alla frequenza di ripetizione del generatore.

Il segnale ritardato è dato da:

$$S_d = \frac{\varepsilon_d}{nt_c} N_{tot} \quad (cnt \cdot s^{-1})$$

in cui  $\varepsilon_d$  è l'efficienza di rivelazione dei neutroni ritardati (conteggi/neutrone) e  $nt_c$  è la durata totale di conteggio (s).

Il numero totale di neutroni pronti emessi durante gli  $n$  periodi di conteggio è:

$$N_p = nv_p f_{iss_{t_1,t_2}}$$

in cui  $t_1$  e  $t_2$  sono i limiti dell'intervallo di tempo di acquisizione per ogni periodo di conteggio (vedi Fig.3-1),  $f_{iss_{t_1,t_2}}$  è il numero di fissioni create tra  $t_1$  e  $t_2$  e  $v_p$  è il numero medio di neutroni pronti per fissione.

Il segnale pronto è quindi dato da:

$$S_p = \frac{\varepsilon_p}{n(t_2 - t_1)} N_p \quad (cnt \cdot s^{-1})$$

In cui  $\varepsilon_p$  è l'efficienza di rivelazione dei neutroni pronti (conteggi/neutrone) e  $n(t_2 - t_1)$  è la durata totale del conteggio (s).

Valutati i segnali pronto e ritardato, è possibile scrivere le due seguenti equazioni lineari in cui compaiono le masse degli isotopi fissili e fertili presenti nel sistema durante la misura:

$$S_p = \sum_j C_{pj} m(X_j)$$

$$S_d = \sum_j C_{dj} m(X_j) + \sum_k C_{dk} m(X_K)$$

In cui  $C_{pj}$  e  $C_{dj}$  sono costanti di taratura<sup>16</sup> che rappresentano rispettivamente il numero di neutroni pronti e ritardati rivelati per unità di massa dell'isotopo fissile  $X_j$ ,  $C_{dk}$  è la costante di taratura ritardata dell'isotopo  $X_K$  sensibile principalmente alle fissioni veloci,  $m(X_j)$  e  $m(X_K)$  sono rispettivamente le masse degli isotopi  $X_j$  e  $X_K$ .

In dipendenza dal numero degli isotopi presenti nel campione analizzato, da queste equazioni è possibile quantificare tali isotopi separatamente.

### ***3.4 Applicabilità del metodo al progetto***

La Differential Die-Away time Analysis è una tecnica attiva di ispezione nucleare sviluppata originariamente per stabilire la presenza di materiale fissile nei fusti di rifiuti radioattivi. Il metodo DDAA è stato poi esteso alla rivelazione di SNM (Special Nuclear Material) in carichi trasportabili.

Nel passaggio dal primo al secondo tipo di utilizzo della tecnica occorre tenere presenti diversi fattori che dipendono dalla diversa natura del campione sottoposto ad analisi:

- quando si analizzano contenitori di rifiuti la composizione della massa è conosciuta ed è di densità relativamente bassa, mentre nella rivelazione di SNM in un carico trasportabile la composizione della massa è ignota;
- nell'analisi dei fusti di rifiuti il contenitore è accessibile da tutti i lati, mentre nell'ispezione di un carico sospetto può non essere possibile l'accesso a più di un lato del carico;

---

<sup>16</sup> L'unità di misura di tali costanti è  $\text{cnt s}^{-1}\text{g}^{-1}$

- nei fusti di rifiuti radioattivi il materiale fissile non è deliberatamente nascosto ed è probabilmente distribuito in tutto il contenitore anziché essere concentrato nella posizione di più difficile rivelazione, in un carico sospetto invece possono essere adottate contromisure attive per rendere più difficile la rivelazione;
- infine, i tempi di esecuzione della tecnica nell'analisi dei fusti non sono così stringenti come nel caso dell'ispezione di un carico sospetto, in cui si deve agire nel minor tempo possibile.

I sistemi che si occupano dell'analisi dei rifiuti radioattivi sono inoltre sistemi fissi, non trasportabili, caratterizzati da masse e ingombri particolarmente elevati rispetto alle esigenze del progetto del dispositivo che si intende realizzare.

Una tipica configurazione di un sistema di interrogazione neutronica attiva per l'analisi di fusti di rifiuti è infatti la seguente:

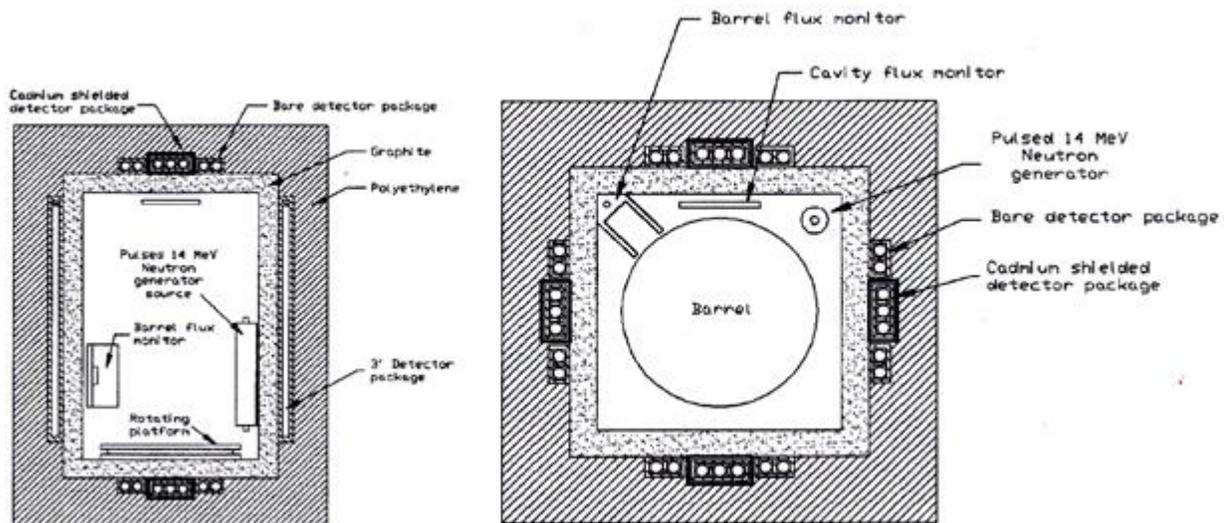


Figura 3-2 – Vista laterale e orizzontale di una configurazione per l'analisi di fusti di rifiuti tramite DDAA (28).

I componenti principali sono: una cavità di analisi (costituita da polietilene, grafite e supporti strutturali), una piattaforma rotante, una sorgente pulsata di neutroni, insieme di rivelatori di neutroni schermati e non schermati da cadmio, un sistema di monitoraggio del flusso nella cavità e nel fusto e un collimatore.

Un altro esempio è il sistema PROMETHEE 6 realizzato in Francia (27).

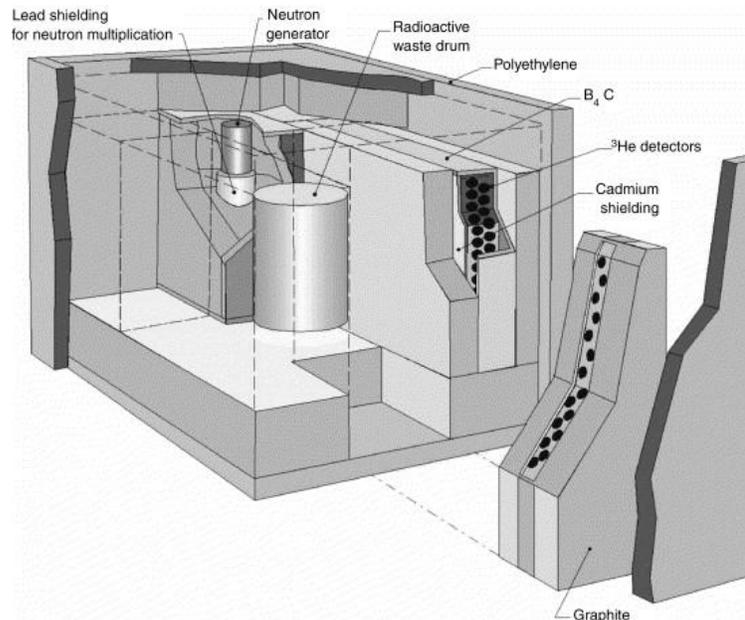


Figura 3-3 – Descrizione della cella PROMETHEE 6.

Le pareti esterne della cella sono costituite da polietilene ad alta densità per schermare il dispositivo dai neutroni esterni. Il flusso di neutroni di interrogazione neutronica è prodotto da un generatore pulsato di neutroni da 14 MeV, l'emissione del quale è pari a  $2 \times 10^9 \text{ n s}^{-1}$ . È utilizzata anche grafite come moderatore per ottimizzare il *die-away time* dei neutroni termici di interrogazione all'interno della cella. I rivelatori sono contatori proporzionali a  $^3\text{He}$  incorporati all'interno di blocchi di polietilene circondati da cadmio e carburo di boro. Tali rivelatori sono 88 e distribuiti su tre pareti della cella.

Si tratta dunque di configurazioni non realizzabili nell'ambito del progetto del dispositivo che si vuole identificare, in cui il numero dei rivelatori è limitato, la massa complessiva del sistema deve essere ridotta e trasportabile, il generatore di neutroni deve lavorare per motivi di radioprotezione a ratei di emissione molto più bassi e il campione da analizzare è completamente diverso da un fusto di rifiuti per le ragioni già specificate.

A causa di queste differenze applicative, l'utilizzo di una DDAA progettata per l'analisi di rifiuti non può essere ottimale nell'ispezione di un carico trasportabile. Per tale ragione è necessario uno studio di fattibilità al fine di individuare le caratteristiche chiave che consentano il funzionamento del dispositivo anche in una sua versione revisionata 'da campo'.

## 4. Studio di fattibilità tramite simulazioni Monte Carlo

La progettazione del dispositivo si è basata su uno studio preliminare di fattibilità mediante simulazioni Monte Carlo. Il codice utilizzato è MCNPX versione 2.5.0 (Monte Carlo N-Particle eXtended) un codice di trasporto realizzato per tracciare diversi tipi di particelle in ampi range di energia.

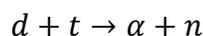
Tale studio, realizzato nell'ambito della tesi magistrale (29) e raffinato in una pubblicazione su rivista (2), consiste nell'individuare una possibile configurazione del dispositivo che sia in grado di rivelare la presenza di materiale fissile in un oggetto di piccole dimensioni (dell'ordine di 10-20 cm) all'interno di un sistema che sia trasportabile, quindi non costituito da oggetti di ingombro e peso eccessivi, e che impieghi un tempo di misura relativamente limitato (qualche minuto) nell'individuazione del materiale pericoloso. La tecnica utilizzata a tale scopo è quella della *Differential Die-Away time Analysis* (DDAA).

Gli elementi simulati di cui è costituito il dispositivo sono:

- un generatore compatto di neutroni basato sulla reazione di fusione d-t;
- dieci contatori proporzionali  $^3\text{He}$ ;
- una struttura moderante che circonda il campione in analisi;
- un campione contenente qualche grammo di materiale fissile.

### 4.1 Simulazione del generatore di neutroni

Il generatore di neutroni disponibile per il progetto è un MP320 della Thermo Electron Corporation (30) basato sulla reazione d-t. Il generatore contiene un compatto acceleratore lineare che accelera deuteroni su un target contenente trizio causando la reazione di fusione



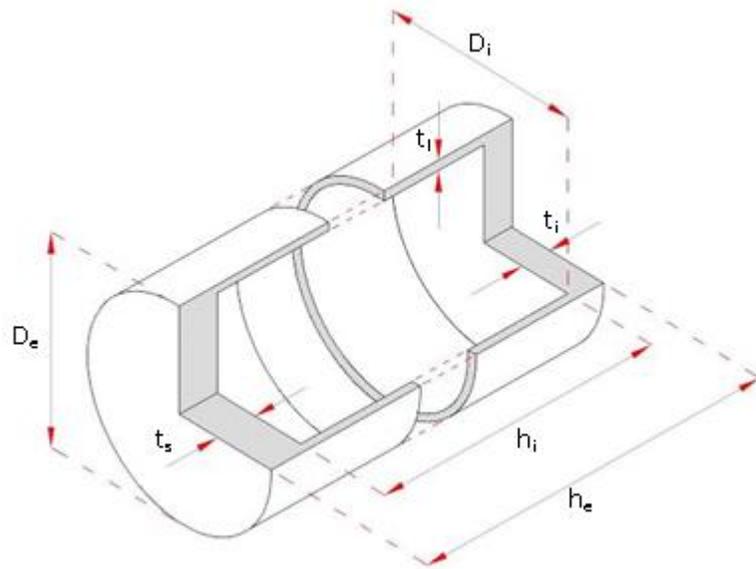
l'energia cinetica del neutrone prodotto è di circa 14.1 MeV.

Il generatore è in grado di lavorare in modalità continua o pulsata e ha una resa neutronica massima pari a  $1 \times 10^8$  neutroni al secondo con una frequenza compresa tra 250 Hz e 20 kHz.

In sede di studio di fattibilità il generatore è stato simulato come una sorgente puntiforme isotropa di neutroni da 14 MeV; in seguito, contestualmente alla caratterizzazione sperimentale del generatore stesso, è stato messo a punto e ottimizzato un modello Monte Carlo dettagliato e maggiormente rispondente alla realtà fisica.

#### ***4.2 Simulazione dei contatori proporzionali***

I rivelatori utilizzati sono 10 contatori proporzionali a  $^3\text{He}$  caratterizzati da una pressione nominale di riempimento di 4 bar e aventi le dimensioni riportate in Fig.4-1 e in Tab.4-1.



*Figura 4-1 – Assonometria di un rivelatore  $^3\text{He}$ .*

Tabella 4-1 – Dimensioni rivelatore  $^3\text{He}$ .

<b>Altezza esterna (<math>h_e</math>)</b>	104 cm
<b>Altezza interna (<math>h_i</math>)</b>	91.7 cm
<b>Diametro esterno (<math>D_e</math>)</b>	2.54 cm
<b>Diametro interno (<math>D_i</math>)</b>	2.50 cm
<b>Spessore superiore (<math>t_s</math>)</b>	6.15 cm
<b>Spessore inferiore (<math>t_i</math>)</b>	6.15 cm
<b>Spessore laterale (<math>t_l</math>)</b>	0.02 cm

In MCNPX ciascun rivelatore è stato simulato tramite la definizione di due macrobody<sup>17</sup> cilindrici con le dimensioni riportate in Tab.4-1 e due celle: una costituita dalla cavità interna al rivelatore e occupata da  $^3\text{He}$  con densità di  $0.0005 \text{ g/cm}^3$ , l'altra costituita dal rivestimento e occupato da acciaio con densità  $7.85 \text{ g/cm}^3$  e composizione 68.92% Fe, 0.08% C, 2% Mn, 1% Si, 19% Cr, 9% Ni.

Poiché la reazione su cui è basato il funzionamento dei rivelatori ( $^3\text{He} + n \rightarrow ^3\text{H} + p + 0.764 \text{ MeV}$ ) presenta una sezione d'urto massima alle minime energie (Fig. 4-2), per migliorare le prestazioni del sistema di rivelazione i contatori proporzionali sono stati inseriti all'interno di blocchi di polietilene.

<sup>17</sup> L'input del codice MCNPX è costituito da tre sezioni: la sezione delle celle, la sezione delle superfici e la sezione dei dati. Le celle sono definite come lo spazio risultante dall'unione o dall'intersezione di porzioni di spazio definite a partire dalle superfici specificate nella seconda sezione. A ciascuna cella è inoltre assegnato un materiale e una densità. Le composizioni dei materiali, le caratteristiche della sorgente e le grandezze che si vogliono conoscere in output (tally) sono definite nella terza sezione dell'input. Le superfici possono essere definite in modo generico, come singoli piani, superfici cilindriche infinite, ecc, o attraverso i cosiddetti **macrobody** che rappresentano già superfici chiuse, come parallelepipedi, coni, cilindri definiti,...

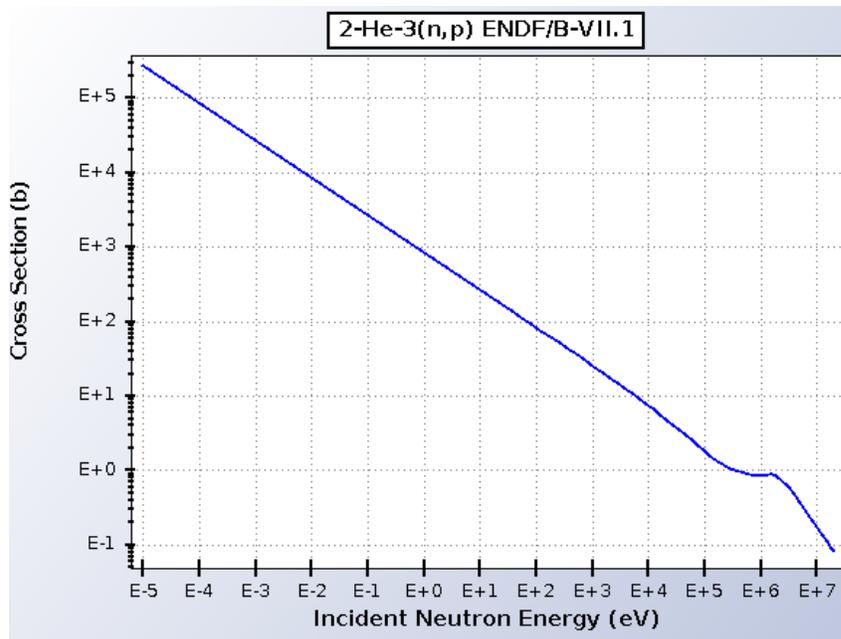


Figura 4-2 – Sezione d’urto della reazione  ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$  (31).

I blocchi moderatori in cui sono alloggiati i rivelatori sono 2 e sono realizzati in polietilene ad alta densità e rivestiti ciascuno da due piastre montanti e due lamine pressopiegate in lega leggera di alluminio. Le dimensioni delle lastre di polietilene sono riportate in Fig.4-3 e in Tab.4-2; in Tab.4-3 sono invece inserite le dimensioni delle piastre e lamine di rivestimento.

Tabella 4-2 – Dimensioni delle lastre di polietilene.

<b>Lunghezza</b>	36 cm
<b>Larghezza</b>	10 cm
<b>Altezza</b>	100 cm
<b>Numero di forature in ciascuna lastra</b>	5
<b>Diametro foratura</b>	2.6 cm
<b>Profondità foratura</b>	95 cm
<b>Passo tra le forature</b>	6 cm

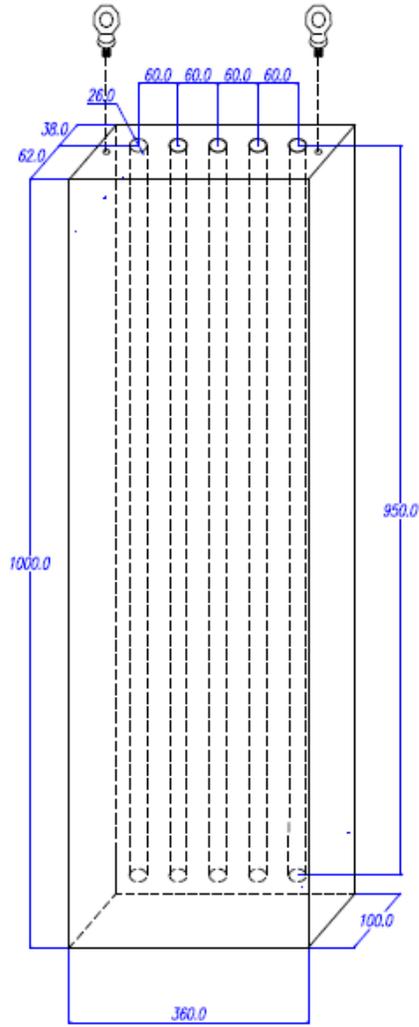


Figura 4-3 – Lastra di polietilene.

Tabella 4-3 – Dimensioni delle piastre e lamine di rivestimento delle lastre di polietilene.

<b>Lunghezza piastra montante</b>	10.8 cm
<b>Altezza piastra montante</b>	100 cm
<b>Spessore piastra montante</b>	1 cm
<b>Lunghezza lamina pressopiegata</b>	38 cm
<b>Altezza lamina pressopiegata</b>	100 cm
<b>Spessore lamina pressopiegata</b>	0.4 cm

Sono inoltre disponibili, laddove fosse necessario, altre due lastre di polietilene senza forature con le stesse dimensioni e stesso rivestimento di quelle appena descritte e due carrelli per uso professionale con piano di sollevamento mobile a pantografo dalla portata di 200 kg ciascuno.

I blocchi moderatori descritti sono stati simulati in MCNPX tramite la definizione di 2 macrobody a forma di parallelepipedo per ciascun blocco (uno per la lastra e uno per il rivestimento) e 5 macrobody cilindrici per ciascun blocco (per le forature in cui vengono alloggiati i rivelatori). Sono state definite così per ciascun blocco 7 celle: una cella per il rivestimento costituito da alluminio con densità di  $2.81 \text{ g/cm}^3$ , una cella per la lastra costituita da polietilene con densità di  $0.98 \text{ g/cm}^3$  e 5 celle per le forature riempite con aria.

#### ***4.3 Simulazione della struttura moderante che circonda il campione in analisi***

Per rendere applicabile la tecnica della Differential Die-Away time Analysis è necessario che i neutroni prodotti dal generatore siano moderati prima di investire il campione e poter dare luogo a fissioni termiche. A tal fine il campione è alloggiato in una cavità all'interno di una struttura moderante realizzata in carta. La scelta delle dimensioni e della forma di tale struttura rappresenta uno dei risultati dello studio di fattibilità. Numerose simulazioni sono state condotte ipotizzando diverse dimensioni e forme della struttura, al fine di individuare una condizione ottimale conformemente alle necessità che deve soddisfare il dispositivo.

#### ***4.4 Simulazione del campione***

In linea teorica il campione potrebbe avere composizione e forma qualsiasi. Nell'ambito dello studio preliminare di fattibilità si è fatto riferimento ad un campione presente in laboratorio dalle caratteristiche idonee a testare il funzionamento del dispositivo. Si tratta

di due sacchetti, le cui immagini sono riportate in Fig.4-4, dal peso complessivo di 1098.79 g contenenti 392.00 g di uranio con la seguente composizione:

- 99.5 %  $^{238}\text{U}$  (390.04 g)
- 0.5 %  $^{235}\text{U}$  (1.96 g)

Nel primo sacchetto è presente un contenitore con dimensioni di base di circa 7.5 cm x 10.0 cm riempito fino ad un'altezza media di circa 4.5 cm, nel secondo sacchetto sono invece presenti diversi contenitori: un cilindro con diametro di base di circa 5.5 cm ed altri piccoli cilindri di dimensioni non note a causa dell'opacità della busta e dell'impossibilità di ispezione legata a motivi radioprotezionistici. Si è scelto di approssimare il contenuto del secondo sacchetto con un unico contenitore cilindrico riempito fino ad un'altezza maggiorata di circa 2.5 cm che tiene conto anche della presenza degli altri cilindri più piccoli. Il volume di riempimento è dunque circa pari a:

$$V_{riempimento} = V_{riemp,sacchetto1} + V_{riemp,sacchetto2} = a \cdot b \cdot h_{riemp,1} + \pi r^2 \cdot h_{riemp,2} \cong 397 \text{ cm}^3$$

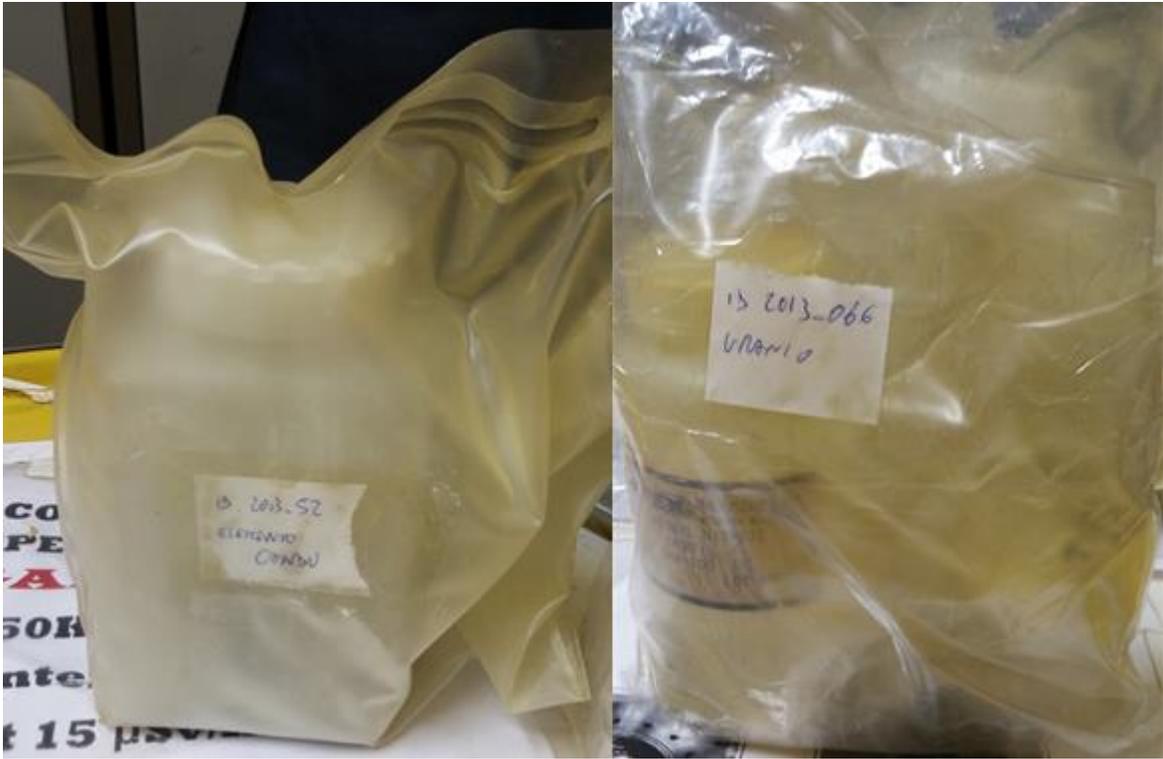


Figura 4-4 – Sacchetti contenenti il campione.

Data la complessità della geometria del campione, si è scelto di simularlo con un parallelepipedo di densità arbitraria. Si è immaginato di disporre i sacchetti uno dietro l'altro, al fine di ottenere una base di dimensioni 10 cm x 13 cm circa, dopodiché l'altezza del parallelepipedo è stata determinata nel modo seguente:

$$h = \frac{V_{riempimento}}{A_b} \cong 3\text{cm}$$

dove  $A_b$  è l'area di base del parallelepipedo, pari a 130 cm<sup>2</sup>.

Il parallelepipedo rappresentativo del campione ha dunque un volume:

$$V = 10\text{ cm} \cdot 13\text{ cm} \cdot 3\text{ cm} = 390\text{ cm}^3$$

e poiché contiene 392 g di uranio, è stata utilizzata una densità apparente, pari a:

$$d = \frac{m}{V} = \frac{392\text{ g}}{390\text{ cm}^3} = 1.005\text{ g/cm}^3$$

Nella simulazione MCNPX al campione sono stati dunque associati un macrobody a forma di parallelepipedo dalle dimensioni appena descritte e una cella costituita da uranio nella composizione specificata in precedenza e con la densità calcolata.

#### ***4.5 Confronto qualitativo tra risultati di un esperimento noto e risultati della relativa simulazione MCNPX***

Prima di procedere con lo studio di fattibilità è stato condotto un confronto qualitativo tra i risultati di un esperimento noto in letteratura, basato sulla tecnica di misura DDAA, e i risultati della corrispondente simulazione MCNPX, al fine di verificare che lo strumento di simulazione fosse in grado di riprodurre le curve caratteristiche della tecnica.

L'esperimento in questione è stato realizzato e descritto da K. A. Jordan, T. Gozani e J. Vujic (5). Il sistema simulato è costituito da:

- un generatore di neutroni d-t (14 MeV), che opera in modalità pulsata, emettendo neutroni per 250 $\mu$ s (tempo di eccitazione) in cicli da 3 ms con frequenza di ripetizione pari a 333 Hz;
- tre contatori proporzionali a  $^3\text{He}$  con pressione di riempimento pari a 3 atm, con diametro di 5 cm e lunghezza di 120 cm;
- un blocco moderatore per i rivelatori di dimensioni 15 cm x 32 cm x 125 cm, composto da una sovrastruttura di polipropilene di spessore 2.5 cm e cavo all'interno. Nella sovrastruttura sono praticati 3 canali per l'alloggiamento dei rivelatori. Il volume interno alla cavità non occupato dai rivelatori è riempito di una soluzione acquosa, contenente un miscuglio di borato e acido bórico per aumentare la sezione d'urto di assorbimento dei rivelatori. Nella simulazione è stata utilizzata acqua pura. La struttura è rivestita da fogli di cadmio dello spessore di 7.3 mm. Tutto l'assemblaggio è poi circondato su tutti i lati, escluso il lato che si affaccia al generatore, da diversi centimetri di polietilene borato (lo spessore simulato è 5 cm);

- il campione costituito da un guscio cilindrico racchiuso in acciaio inossidabile e contenente 350 g di  $^{235}\text{U}$  nella forma di ossido di uranio arricchito al 19.9%;
- una struttura moderante realizzata con risme di carta di dimensioni 90 cm x 106 cm al centro della quale è praticata una cavità rettangolare in cui alloggia il campione.

La geometria complessiva del sistema è riportata in Fig.4-5.

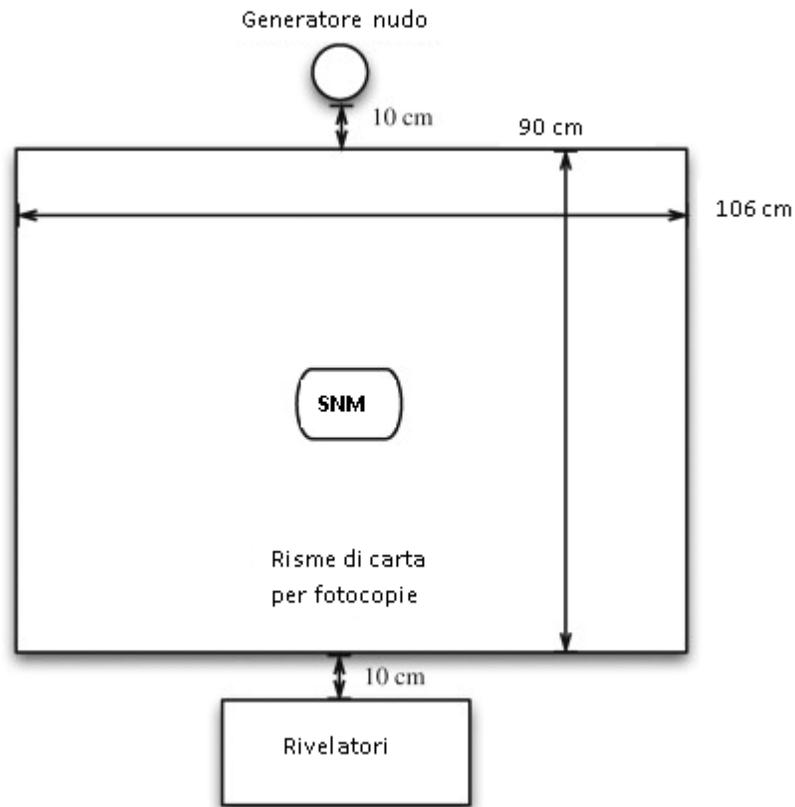


Figura 4-5 – Geometria di misura dell'esperimento condotto da K. A. Jordan, T. Gozani e J. Vujic.

La geometria descritta è stata simulata in MCNPX ed è stato richiesto in output il numero delle reazioni (n,p) avvenute nei rivelatori al variare del tempo, a partire dall'istante di tempo in cui l'emissione di neutroni si è arrestata e per i successivi 1500 $\mu\text{s}$ , suddividendo l'intervallo temporale in intervalli (time-bin) da 10  $\mu\text{s}$  ciascuno. È stato utilizzato il tally

F4 calcolato nelle tre celle contenenti  $^3\text{He}$ , corrispondenti ai tre rivelatori, accompagnato dalla card di moltiplicazione FM4 che specifica la reazione (n,p) e dalla card T4 che suddivide l'intervallo temporale da 0 a 1500  $\mu\text{s}$  in 150 bin da 10 $\mu\text{s}$  ciascuno. A valle di numerosi test è emerso che il miglior compromesso tra tempo di calcolo e incertezza è dato dalla simulazione di 50 miliardi di storie (NPS).

In Fig.4-6 è riportato il confronto tra i risultati ottenuti dall'elaborazione dei dati forniti in output dal codice e i risultati sperimentali relativi alla pubblicazione di riferimento.

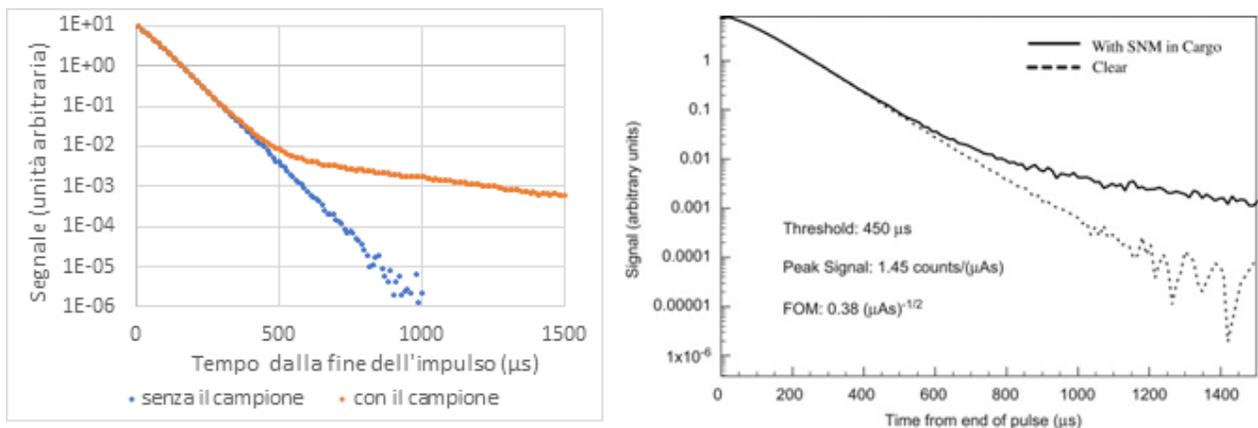


Figura 4-6 – Confronto tra i risultati simulati (a sinistra) e i risultati sperimentali (5) (a destra).

È possibile notare che gli andamenti sono qualitativamente in accordo, le differenze (visibili soprattutto nel caso in assenza di campione) sono da imputarsi alle seguenti ragioni:

- alcune misure della geometria del problema e le composizioni di alcuni materiali sono state scelte arbitrariamente, non avendo dati cui fare riferimento;
- nella simulazione non viene riprodotto il background naturale;
- la misura è stata fatta facendo lavorare il generatore in modalità pulsata, con le caratteristiche di emissione già descritte in precedenza, mentre nella simulazione la sorgente emette singoli neutroni all'istante  $t=0$  e dà come risultato nel tally il numero di reazioni (n,p) per neutrone sorgente;
- per il caso in presenza di campione l'errore nella simulazione rimane sempre al di sotto del 10%, nel caso in assenza di campione invece a partire dall'istante 560  $\mu\text{s}$

l'errore supera il 10% e continua ad aumentare raggiungendo il 50% a 730  $\mu$ s e valori ancora più elevati negli istanti successivi.

Sulla base di tali osservazioni, è possibile concludere che lo strumento di simulazione è idoneo alla simulazione della DDAA.

#### ***4.6 Definizione di una figura di merito (FOM) per il confronto tra diverse configurazioni***

Si è resa necessaria la definizione di un criterio matematico per il confronto tra le diverse configurazioni del dispositivo da realizzare in simulazione.

Osservando il tipico andamento della curva rateo di conteggio/tempo in presenza del campione in scala logaritmica, si può pensare di approssimare tale curva con due rette, una relativa al segnale proveniente dal generatore ed una relativa a quello proveniente dalle fissioni termiche sull'<sup>235</sup>U. Il criterio scelto per definire tali rette si basa sul metodo dei minimi quadrati (32), che consiste nell'individuazione di una funzione che si avvicini il più possibile all'insieme dei dati simulati. In particolare, la funzione trovata deve essere quella che minimizza la somma dei quadrati delle distanze tra i dati simulati e quelli della curva che rappresenta la funzione stessa. Considerando un insieme N di dati ( $x_i, y_i \pm \sigma_i$ ) la retta dei minimi quadrati è definita nel modo seguente:

$$y = A + Bx$$

con A e B:

$$A = \frac{S_{xx} \cdot S_y - S_x \cdot S_{xy}}{S \cdot S_{xx} - S_x \cdot S_x} \quad B = \frac{S \cdot S_{xy} - S_x \cdot S_y}{S \cdot S_{xx} - S_x \cdot S_x}$$

In cui:

$$S_x = \sum_{i=1}^N \frac{x_i}{\sigma_i^2} \quad S_y = \sum_{i=1}^N \frac{y_i}{\sigma_i^2} \quad S_{xx} = \sum_{i=1}^N \frac{x_i^2}{\sigma_i^2} \quad S_{xy} = \sum_{i=1}^N \frac{x_i \cdot y_i}{\sigma_i^2} \quad S = \sum_{i=1}^N \frac{1}{\sigma_i^2}$$

L'errore quadratico medio sulla grandezza  $y$  è una funzione di  $x$  ed ha la seguente forma:

$$\sigma_y = \sqrt{\frac{S_{xx} - 2x \cdot S_x + x^2 \cdot S}{S \cdot S_{xx} - S_x^2}}$$

La quantità  $\sigma_y$  stima la distanza dei punti dalla retta di regressione e definisce quella che si chiama banda di confidenza, costituita dalla regione compresa tra  $y - \sigma_y$  e  $y + \sigma_y$ . I parametri A e B risultano affetti da incertezza poiché lo sono i valori  $y_i$ . Utilizzando le formule di propagazione degli errori statistici è possibile stimare  $\sigma_A$  e  $\sigma_B$  in termini di  $\sigma_i$ :

$$\sigma_A^2 = \sum_{i=1}^N \left( \frac{\partial A}{\partial y_i} \right)^2 \cdot \sigma_i^2 \quad \sigma_B^2 = \sum_{i=1}^N \left( \frac{\partial B}{\partial y_i} \right)^2 \cdot \sigma_i^2$$

da cui risulta:

$$\Delta A = \sigma_A = \sqrt{\frac{S_{xx}}{S_{xx} \cdot S - S_x^2}} \quad \Delta B = \sigma_B = \sqrt{\frac{S}{S_{xx} \cdot S - S_x^2}}$$

Si procede ora con la descrizione del procedimento seguito per ottenere un parametro da usare per il confronto tra le varie configurazioni.

Si consideri una delle curve rateo di conteggio/tempo ottenute con le simulazioni e riportata in scala logaritmica in Fig.4-7.

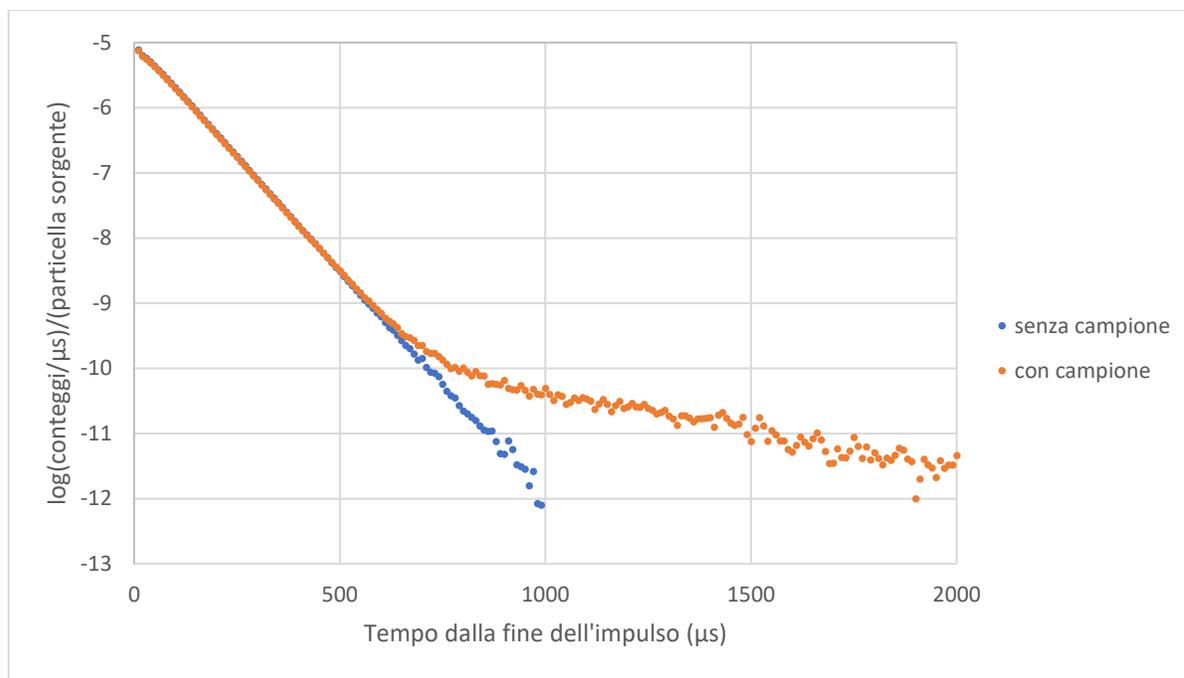


Figura 4-7 – Grafico generico  $\log(\text{rateo di conteggio})$  Vs. tempo.

Come già detto si può pensare di approssimare la curva relativa al caso in presenza del campione con due rette, una relativa al segnale proveniente dal generatore ed una relativa a quello proveniente dalle fissioni termiche pronte sull' $^{235}\text{U}$ .

Si procede con la determinazione dei parametri A e B e dei corrispondenti  $\sigma_A$  e  $\sigma_B$  delle due rette, considerando i dati simulati in due corrispondenti intervalli temporali. Nel caso preso in analisi si può considerare l'intervallo 0-500  $\mu\text{s}$  per la determinazione della prima retta e l'intervallo 750-1750  $\mu\text{s}$  per la determinazione della seconda. Si escludono dunque i dati compresi nella zona in cui la curva cambia pendenza e i dati a cui corrispondono errori elevati (maggiori del 40%).

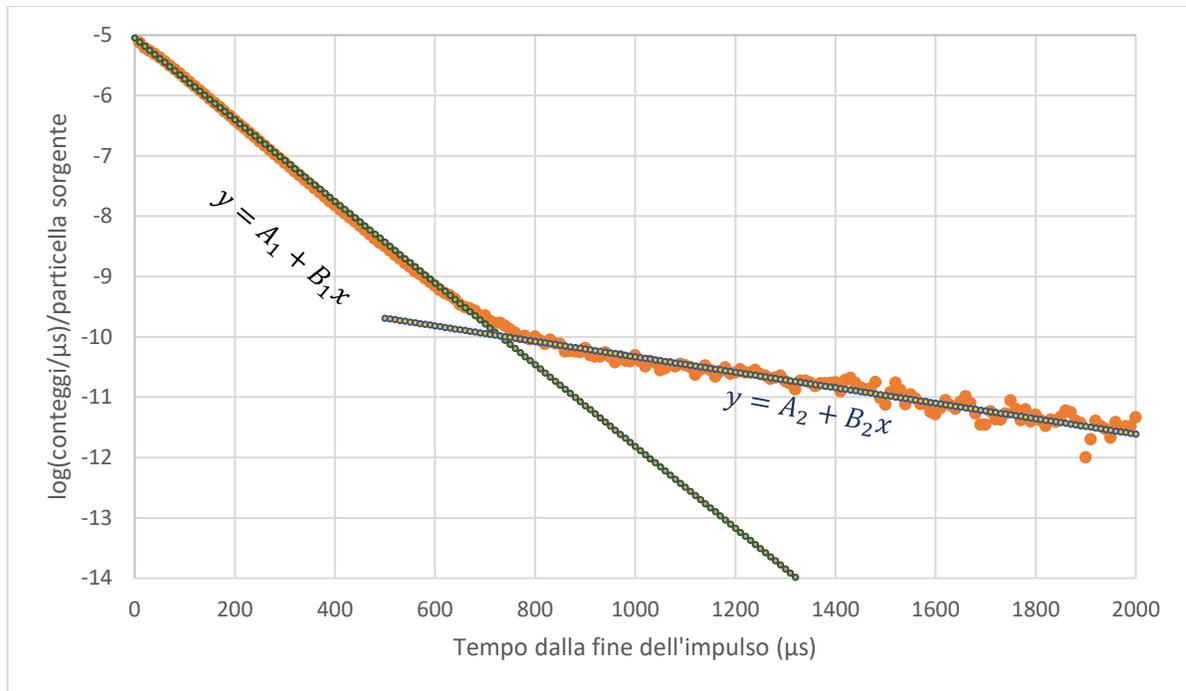


Figura 4-8 – Individuazione delle due rette di regressione.

Ottenute le due rette, si determina l'ascissa del punto d'intersezione, corrispondente all'istante di tempo in cui la curva cambia pendenza:

$$t' = \frac{A_1 - A_2}{B_2 - B_1}$$

e l'errore corrispondente tramite la propagazione degli errori:

$$\Delta t' = t' \cdot \left( \frac{\Delta(A_1) + \Delta(A_2)}{A_1 - A_2} + \frac{\Delta(B_1) + \Delta(B_2)}{B_2 - B_1} \right)$$

A questo punto, poiché a ciascuna retta corrisponde il logaritmo dei conteggi, si trasformano le due rette in forma esponenziale, ottenendo in tal modo una approssimazione delle due curve dei conteggi al variare del tempo (che nelle formule precedenti è indicato dalla lettera  $x$ ): la prima (definita dalle costanti  $A_1$  e  $B_1$ ) corrispondente alla misura in assenza di campione e la seconda (definita dalle costanti  $A_2$  e  $B_2$ ) corrispondente alla misura in presenza del campione:

$$y'_1 = 10^{A_1+B_1t}$$

$$y'_2 = 10^{A_2+B_2t}$$

Con i valori ottenuti in tal modo si valuta poi la differenza tra gli integrali delle due curve nell'intervallo di durata fissata a 500  $\mu\text{s}$  che ha come istante iniziale quello di cambiamento della pendenza della curva in scala logaritmica (indicato nella formula che segue con  $t'$ ).

$$C = \int_{t'}^{t'+500\mu\text{s}} (y'_2 - y'_1) dt$$

Integrando si ottiene la seguente espressione:

$$C = \frac{1}{\ln 10} \left[ \frac{10^{A_2+B_2(t'+500)} - 10^{A_2+B_2t'}}{B_2} - \frac{10^{A_1+B_1(t'+500)} - 10^{A_1+B_1t'}}{B_1} \right]$$

Tale valore in scala logaritmica corrisponde all'area del triangolo rappresentato in Fig.4-9.

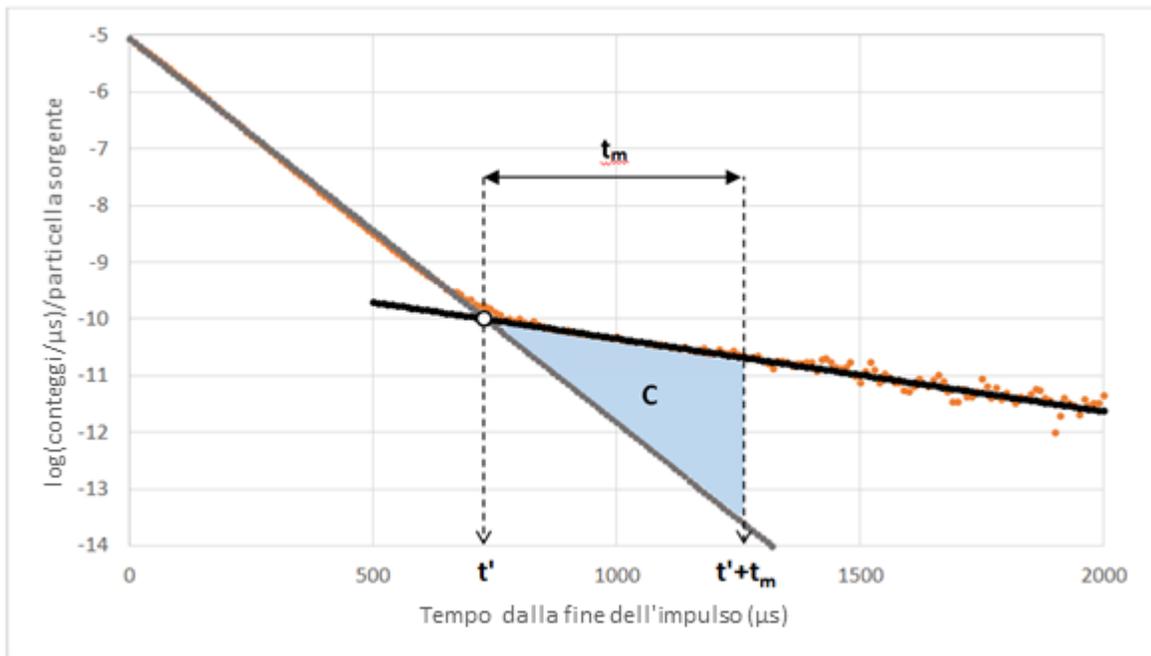


Figura 4-9 – Triangolo corrispondente all'integrale C.

Tramite le leggi di propagazione degli errori è possibile poi valutare l'incertezza sul valore di C:

$$\Delta C = \left| \frac{\partial C}{\partial A_1} \right| \cdot \Delta A_1 + \left| \frac{\partial C}{\partial A_2} \right| \cdot \Delta A_2 + \left| \frac{\partial C}{\partial B_1} \right| \cdot \Delta B_1 + \left| \frac{\partial C}{\partial B_2} \right| \cdot \Delta B_2 + \left| \frac{\partial C}{\partial t'} \right| \cdot \Delta t'$$

e definire per ciascuna configurazione un intervallo:

$$C \pm \Delta C$$

in cui è previsto essere compreso il numero netto di conteggi per particella sorgente ottenuto misurando nell'intervallo di tempo  $t' - t'+500 \mu s$ , intendendo per numero netto di conteggi la differenza tra i conteggi misurati in presenza del campione e i conteggi misurati in assenza dello stesso.

Maggiore è il valore di C migliore è la configurazione corrispondente. Per tener conto anche degli errori si definisce la seguente figura di merito (2):

$$FOM = \frac{1}{\sqrt{nps}} \frac{C_2 - C_1}{|\Delta C_1| + |\Delta C_2|}$$

in cui:

- $\frac{1}{\sqrt{nps}}$  è un fattore che rende il risultato della simulazione indipendente dal numero delle particelle sorgente simulate ( $nps$ ); in questo modo, il confronto tra simulazioni con diverso numero di  $nps$  risulta possibile;
- il numeratore  $C_2 - C_1$  è ovviamente connesso all'area del triangolo (essendo  $C_1$  il numero dei conteggi ottenuti in assenza di campione nell'intervallo temporale  $t' - t'+500 \mu s$ ,  $C_2$  il numero dei conteggi ottenuti in presenza del campione nello stesso intervallo di tempo): maggiore è tale valore migliore è il funzionamento della geometria;

- il denominatore rappresenta l'incertezza associata alla valutazione del valore di C: minore è l'incertezza, maggiore è l'abilità di discriminazione raggiunta con la configurazione analizzata.

Da tali considerazioni emerge che la FOM è un parametro quantitativo che caratterizza la qualità della configurazione: maggiore è la FOM, più appropriata all'implementazione sperimentale della DDAA è la geometria analizzata.

#### ***4.7 Simulazione di diversi layout di misura e confronto mediante la FOM***

Modificando la configurazione adottata da K. A. Jordan, T. Gozani e J. Vujic conformemente agli obiettivi del dispositivo NAI, si è individuata una prima configurazione funzionante. In particolare:

- il campione contenente 350 g di  $^{235}\text{U}$  è stato sostituito con il campione descritto nel par.4.4 contenente circa 2g di  $^{235}\text{U}$ ;
- la struttura moderante in carta di massa superiore a 500 kg è stata ridotta ad un parallelepipedo di circa 107 kg;
- il sistema di rivelazione è stato sostituito con i 10 contatori proporzionali a  $^3\text{He}$  alloggiati nei blocchi di polietilene descritti nel par.4.2 circondati da lastre di cadmio di spessore 2 mm, necessario per discriminare il contributo dei neutroni da fissione dal contributo dei neutroni di interrogazione. Questi ultimi, termalizzati ad opera delle interazioni con il materiale moderatore, vengono filtrati dal cadmio stesso, il quale conformemente all'andamento della sezione d'urto di cattura neutronica (Fig.4-10) si comporta come filtro passa-alto, lasciando passare i neutroni con energia superiore a circa 0.5 eV e limitando il passaggio di quelli di energia inferiore.

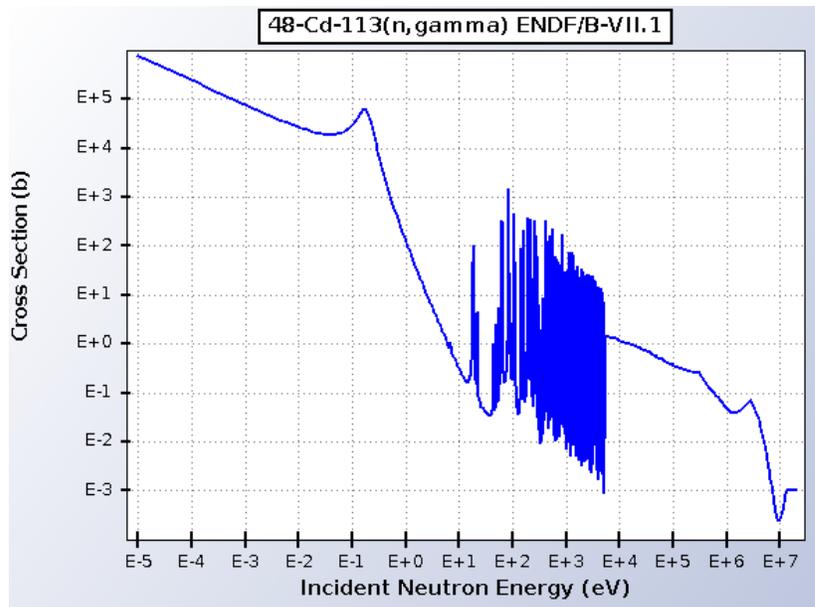


Figura 4-10 – Sezione d’urto della reazione  $^{113}\text{Cd}(n,\gamma)$  (33).

La rappresentazione del layout e i risultati della simulazione per tale configurazione sono riportati nel primo riquadro a sinistra della Fig.4-11. In verde è rappresentato il generatore di neutroni, in arancione i rivelatori inseriti nei blocchi di polietilene, in rosso il campione posto all’interno della struttura moderante (grigio chiaro).

Al fine di ottimizzare le prestazioni del dispositivo, diversi possibili layout sperimentali sono stati simulati e confrontati mediante il criterio descritto nel paragrafo precedente.

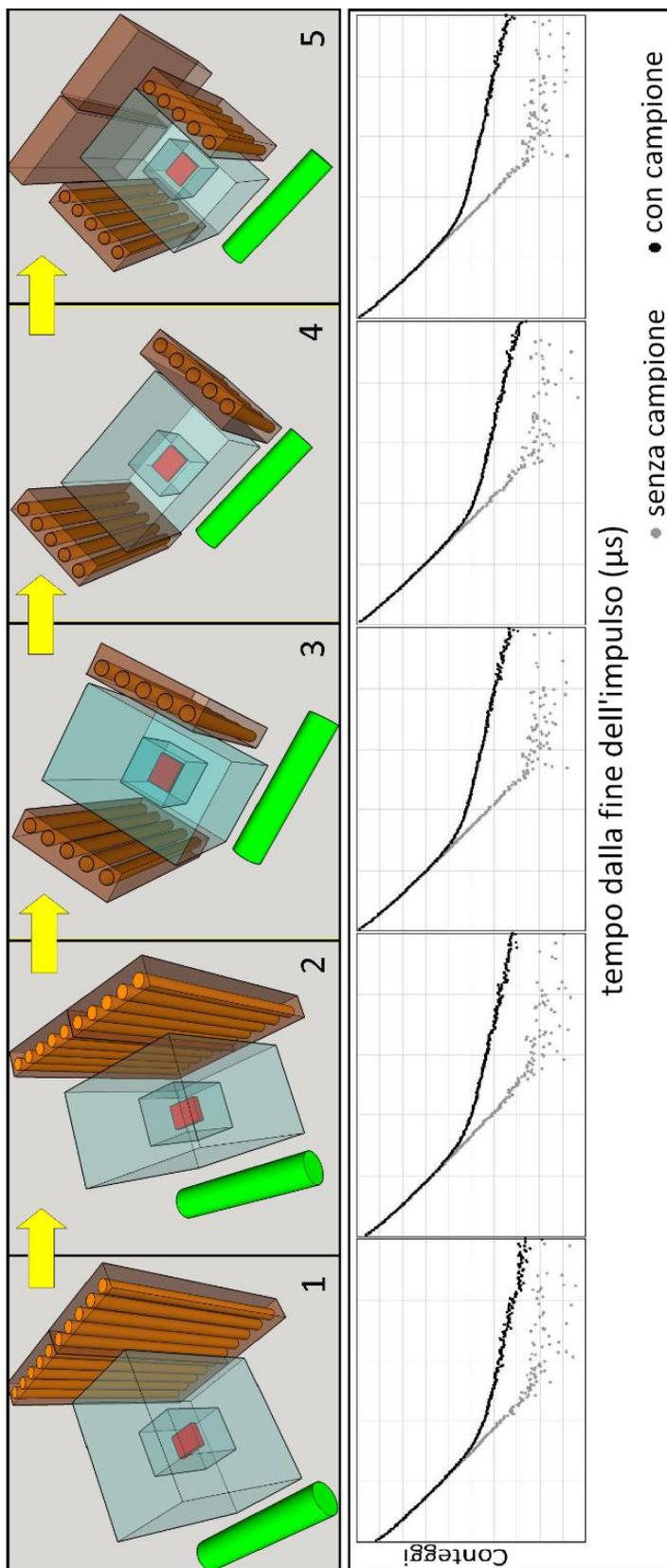


Figura 4-11 – Alcuni dei possibili layout sperimentali simulati in MCNPX per l'ottimizzazione del dispositivo.

Fissando la massa di moderatore, sono state variate le posizioni relative dei componenti del dispositivo per stabilirne l'influenza sulle prestazioni.

In Fig.4-11 sono riportati alcuni casi simulati. Dall'analisi dei dati prodotti dalla simulazione e dal calcolo della FOM per le diverse configurazioni (Fig.4-12) è emerso che le prestazioni ottimali si raggiungono nel caso in cui venga realizzata una geometria a cavità che massimizzi le interazioni dei neutroni, aumentando la popolazione termica e la probabilità di fissione termica pronta sui nuclei di  $^{235}\text{U}$ .

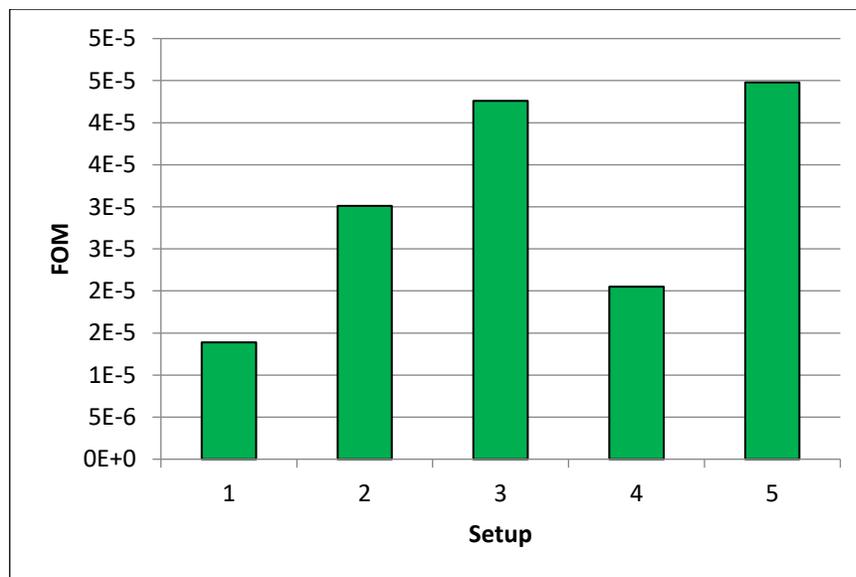
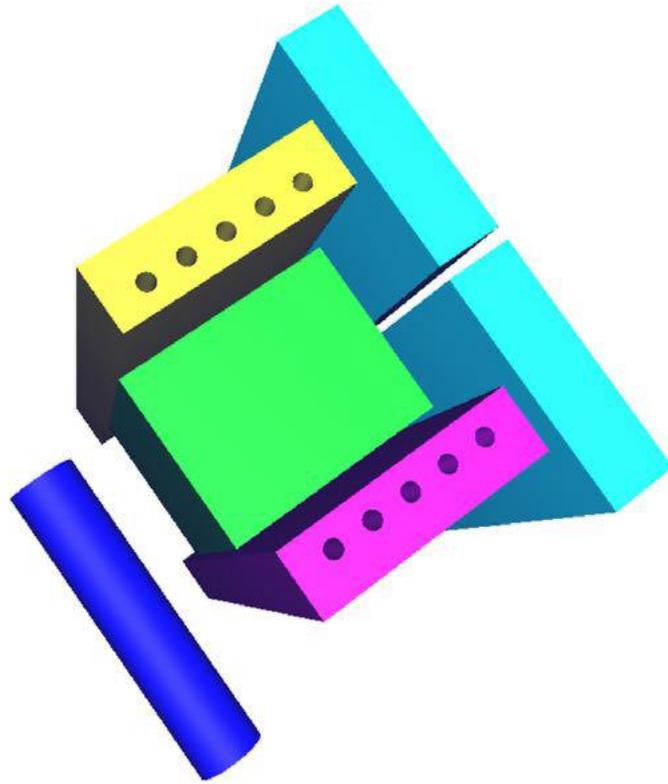


Figura 4-12 – Confronto tra le FOM calcolate per le diverse configurazioni di Fig.4-11.

Ulteriori simulazioni sono state condotte al fine di ridurre il peso e l'ingombro del dispositivo per renderlo trasportabile conformemente agli obiettivi posti. In particolare, si è raggiunta una riduzione della massa di materiale moderatore a circa 30 kg, nella configurazione mostrata in Fig.4-13.



*Figura 4-13 – Configurazione simulata corrispondente a una riduzione della massa di moderatore a 30 kg.*

In Fig.4-14 sono riportati i risultati della simulazione: l'analisi dei dati nell'intervallo temporale evidenziato in figura può permettere l'individuazione del materiale nucleare e l'innescio di un allarme.

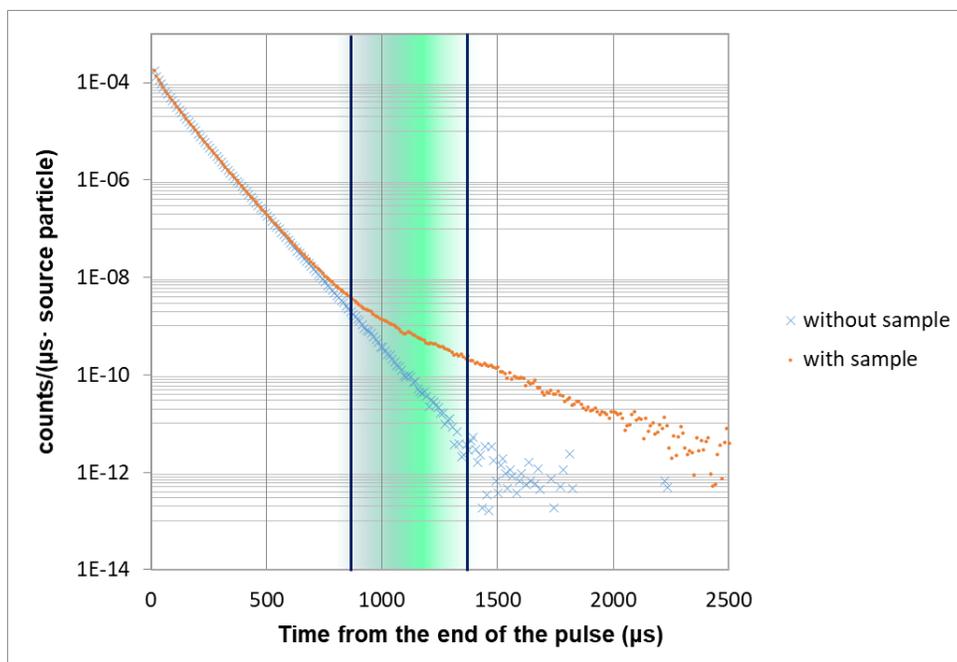


Figura 4-14 – Risultati della simulazione relativa alla configurazione mostrata in Fig.4-13.

Attraverso la simulazione Monte Carlo si è giunti, dunque, alla determinazione di un setup sperimentale adeguato all'esecuzione di un'analisi DDAA, trasponendo e riadattando gli elementi chiave della tecnica a partire dalle configurazioni di laboratorio per l'analisi dei rifiuti. L'identificazione del modello dello strumento in simulazione ha consentito una più agevole e chiara gestione della successiva parte di prova sperimentale, ottenendo –come si vedrà– risultati più che soddisfacenti e rispondenti a quanto previsto dal codice Monte Carlo.

## 5. Caratterizzazione del generatore di neutroni

In quasi tutti i campi della ricerca scientifica è possibile individuare l'applicazione di metodi di analisi che utilizzano neutroni da 14 MeV prodotti mediante generatori di neutroni. Ciò dipende dalle caratteristiche che rendono l'utilizzo dei generatori di neutroni unico rispetto ad altri metodi di indagine. Inoltre, la semplicità del design e la sicurezza intrinseca di funzionamento rendono il generatore di neutroni un'attraente alternativa alle *reactor-based instrumental neutron activation analysis* (INAA).

In particolare, le caratteristiche d'interesse delle metodiche di analisi che utilizzano neutroni da 14 MeV come elemento d'interrogazione sono: 1) la natura non distruttiva della prova, 2) la capacità di investigare elementi diversi, 3) lo svincolo dalla preventiva preparazione del campione (caratteristica dell'analisi chimica convenzionale) e da tutti i problemi ad essa connessi, 4) la trasparenza di diverse matrici ai neutroni e alla maggior parte delle radiazioni secondarie usate per generare il segnale da analizzare. Inoltre, le piccole dimensioni e la trasportabilità di un comune generatore compatto si prestano alle applicazioni di campo rendendo maggiormente appetibile l'utilizzo di tale tecnologia. Considerando la reazione di fusione  $d + t \rightarrow \alpha + n$ , la grande sezione d'urto (circa 5 barn) per basse energie (circa 100 keV) dei deuteroni incidenti su un target di trizio rende i neutroni da 14 MeV facilmente producibili mediante un comune acceleratore di particelle di piccole dimensioni. Di conseguenza, dispositivi di produzione (generatori di neutroni) possono essere realizzati in formati portatili o trasportabili. Ad esempio, l'industria del petrolio ha riconosciuto da tempo questo vantaggio e i neutroni da 14 MeV sono ampiamente usati nelle attività di carotaggio ed indagine del sottosuolo. I principali campi di applicazione dei generatori di neutroni sono mostrati in Tab.5-1.

Tabella 5-1 – Principali campi di applicazione dei generatori compatti di neutroni (34).

<b>Campo di applicazione</b>	<b>Categoria</b>	<b>Energia richiesta</b>	<b>Applicazioni esistenti</b>
Sicurezza ( <i>security</i> )	Rivelazione di esplosivi	14 MeV	Ispezione di merci e bagagli, ispezione di oggetti sospetti
	Rivelazione di armi chimiche	14 MeV	Ispezioni CW
	Rivelazione di contrabbando	14 MeV	Narcotici, C, N, O
Salvaguardie	Rivelazione di materiale nucleare	2.5 MeV 14 MeV	Nuclidi fissili
Industria	Analizzatori online	2.5 MeV 14 MeV	Monitoraggio del processo del cemento, industrie del carbone e attività estrattiva, Ca, Si, Fe, Al
	Pulizia dei metalli	14 MeV	Ossigeno in Mg, Al, acciai
	Minerali grezzi	2.5 MeV, termalizzati e non termalizzati	Purezza, contaminanti
	Catalizzatori basati su Al	14 MeV	F
	Produzione di energia	termalizzati	H nella tecnologia delle celle a combustibile
Ricerca	Misure di sezioni d'urto	2.5 MeV 14 MeV	

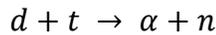
Didattica	Training sui parametri nucleari, scattering anelastico dei neutroni e leggi della fisica nucleare	2.5 MeV 14 MeV	
Medicina	Body screening imaging e radiografia	14 MeV pulsati	C, O, N, Ca, Na, Cl, P
Nutrizione	Contenuto proteico dei cibi	14 MeV	N
	Mangimi per animali	2.5 MeV termalizzati	Elementi in traccia
Ambiente	Materiali riciclati	2.5 MeV termalizzati	Cd, Hg, Br, Cl
	Rifiuti	2.5 MeV 14 MeV	
	Radiografie	2.5 MeV	Contenuto d'acqua nelle piante (in vivo)
	Pesticidi	2.5 MeV, 14 MeV	Alogeni (Br, Cl, F)
Geologia	Analizzatori online		Ceneri del carbone, Si, Al, C, H, Fe, Ca, S
	Esplorazione		Pozzi petroliferi, minerali, diamanti da kimberlite

Il campo di applicazione più importante è l'analisi dei materiali, in particolare l'analisi elementare. Appare dunque chiaro che nel campo della sicurezza nucleare, ed anche sicurezza in termini più generali, la possibilità concreta di ispezionare matrici potenzialmente contenenti materiali pericolosi, es. esplosivi, agenti chimici, materiali nucleari, a scopo preventivo (e senza doverle maneggiare) è particolarmente interessante.

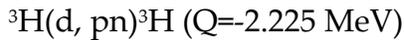
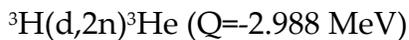
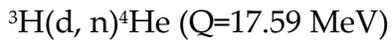
L'applicazione dei generatori di neutroni a tali operazioni di sicurezza per la rivelazione di tali materiali diventa per questo di fondamentale importanza.

### 5.1 La reazione ${}^3\text{H}(d, n){}^4\text{He}$

La reazione nucleare su cui è basato il funzionamento di un generatore di neutroni da 14 MeV è la seguente reazione di fusione:



Il Q-valore di tale reazione è 17.59 MeV ed è convertito in energia cinetica dei due prodotti di reazione, in modo tale che la particella  $\alpha$  abbia energia pari a circa 3.5 MeV e il neutrone circa 14.1 MeV. Lo stato iniziale della reazione porta alla formazione del nucleo composto  ${}^5\text{He}$  che, essendo una particella instabile, decade in  $\alpha + n$ . Gli stati finali possibili per la reazione d-t sono in realtà tre e riportati di seguito:



In Fig.5-1 è riportato anche il diagramma energetico con la possibile posizione degli stati iniziale e finali della reazione d-t.

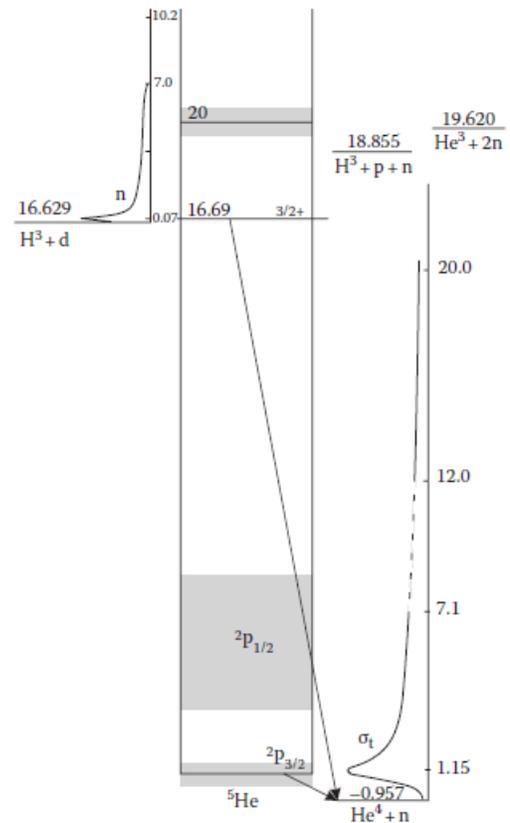


Figura 5-1 – Diagramma energetico per il nucleo di  ${}^5\text{He}$  e posizione degli stati iniziale e finali della reazione  $d + t$ . (34)

Presentando Q-valori negativi, le ultime due reazioni possono avvenire solo per elevate energie del deuteron. La reazione che viene considerata è dunque esclusivamente la prima di cui si riportano in Fig.5-2 le sezioni d'urto totale e differenziale a  $0^\circ$  in funzione dell'energia del deuteron incidente. Il massimo della sezione d'urto (5 barn) si ha per un'energia di 125 keV e per via del suo elevato Q-valore acceleratori di ioni a bassa energia, nel range compreso tra 100 e 150 keV, possono essere utilizzati per produrre neutroni da 14 MeV.

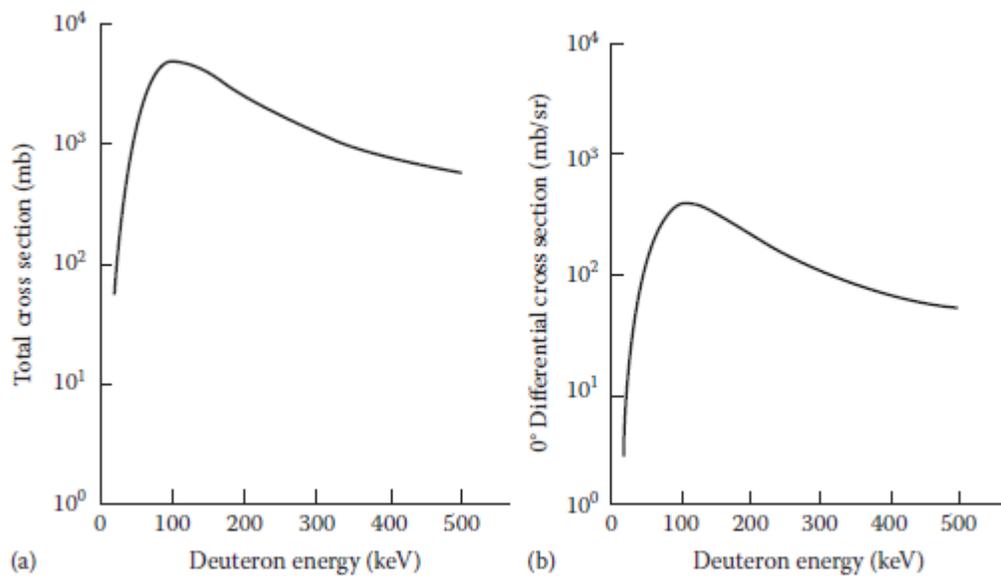


Figura 5-2 – Sezione d'urto totale (a) e differenziale a  $0^\circ$  (b) della reazione d-t Vs. energia del deuteron incidente. (34)

Nel sistema del laboratorio, l'energia del neutrone non dipende soltanto dall'energia del deuteron incidente ma anche dall'angolo in corrispondenza del quale il neutrone è emesso rispetto alla direzione d'incidenza del deuteron. Teoricamente è possibile calcolare l'energia del neutrone emesso in funzione dell'angolo di emissione. Nel sistema del laboratorio, una rappresentazione semplificata della reazione è mostrata in Fig.5-3.

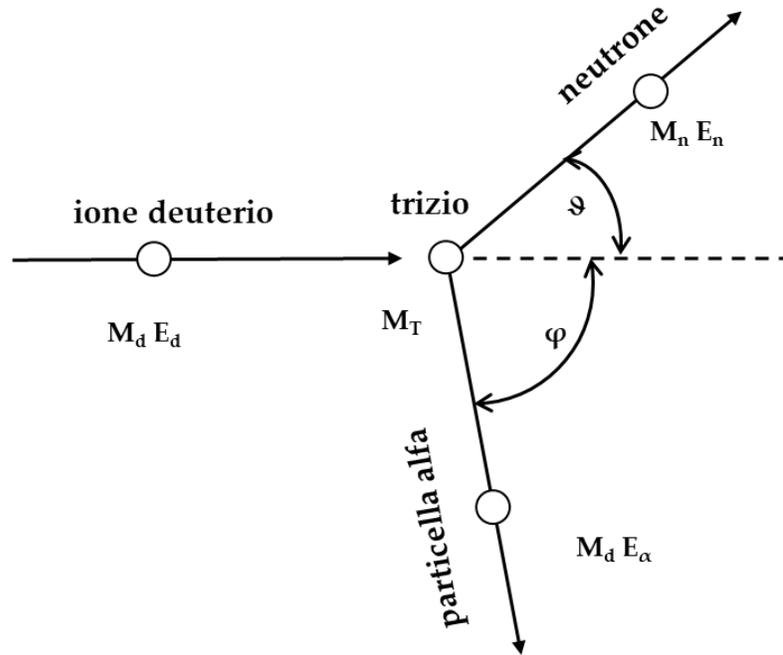


Figura 5-3 – Rappresentazione semplificata della reazione d-t nel sistema del laboratorio.

Un deuteron che urta un nucleo di trizio può indurre la reazione nucleare d'interesse con conseguente emissione di un neutrone a un angolo  $\vartheta$  e di una particella alfa a un angolo  $\varphi$  rispetto alla direzione del deuteron incidente. L'energia del neutrone emesso può essere calcolata mediante le leggi della cinematica, in particolare, la relazione matematica che la descrive è la seguente (35):

$$[E_n(\theta, E_d)]^{1/2} = A + \sqrt{A^2 + B}$$

dove

$$A = \frac{(M_d M_n E_d)^{1/2} \cos \theta}{(M_\alpha + M_n)}$$

$$B = \frac{M_\alpha Q + E_d (M_\alpha - M_d)}{(M_\alpha + M_n)}$$

In cui  $E_n$  è l'energia del neutrone emesso,  $E_d$  è l'energia dello ione deuterio,  $M_d$  è la massa dello ione deuterio,  $M_n$  è la massa del neutrone,  $M_\alpha$  è la massa della particella alfa emessa e  $Q$  è il Q-valore della reazione.

L'equazione mostra che l'energia del neutrone emesso dipende dall'energia del deuteron incidente e dall'angolo in corrispondenza del quale viene emesso. Se  $E_d$  è uguale a 200 keV, la variazione dell'energia del neutrone è intorno ai 2 MeV, da  $0^\circ$  a  $180^\circ$ . Questa variazione è accentuata maggiormente attorno a  $90^\circ$ . La distribuzione dell'energia dei neutroni emessi a un dato angolo può essere calcolata. Lo spettro risultante che raggiungerà il campione dipende dalla geometria sorgente-campione. Se le dimensioni del campione coprono un intervallo angolare  $\theta \pm \Delta\theta$  che corrisponde a un cambiamento dell'energia del neutrone nell'intervallo  $E_n^0 \pm \Delta E_n$ , l'energia media  $\langle E_n \rangle$  per la superficie del campione lontano dalla sorgente è:

$$\langle E_n \rangle = \frac{\int_{E_n^0 - \Delta E_n}^{E_n^0 + \Delta E_n} N(E_n) \phi(E_n) E_n dE_n}{\int_{E_n^0 - \Delta E_n}^{E_n^0 + \Delta E_n} N(E_n) \phi(E_n) dE_n}$$

dove  $N(E_n)$  è il numero di atomi bersaglio nell'intervallo angolare unitario di direzione  $\theta$  e  $\phi(E_n)$  è la densità di flusso. Per diverse energie del deuteron incidente sono state calcolate le energie del neutrone per vari angoli. In Tab.5-2 calcoli teorici sull'energia del neutrone e l'intensità relativa come funzione dell'angolo sono riassunti per una tipica geometria sorgente-campione e un'energia del deuteron pari a 175 keV.

Tabella 5-2 – Calcoli teorici dell'energia del neutrone e dell'intensità relativa in funzione dell'angolo di emissione.

Angolo di emissione	Studio 1 (rif. (36))		Studio 2 (rif. (37))	
	Energia media (MeV)	Intensità relativa	Energia media (MeV)	Intensità relativa
$0^\circ$	14.80±0.17	1.07	14.77±0.17	1.049
$30^\circ$	14.70±0.15	1.06	14.67±0.15	1.043
$60^\circ$	14.45±0.12	1.03	14.41±0.12	1.025
$90^\circ$	14.12±0.08	1.00	14.06±0.08	1.000
$120^\circ$	13.75±0.10	0.97	13.73±0.10	0.976
$150^\circ$	13.52±0.12	0.95	13.48±0.12	0.958
$180^\circ$	13.41±0.13	0.94	13.40±0.13	0.951

In Fig.5-4 sono mostrate le variazioni angolari dell'energia dei neutroni per diverse energie dei deuteroni incidenti.

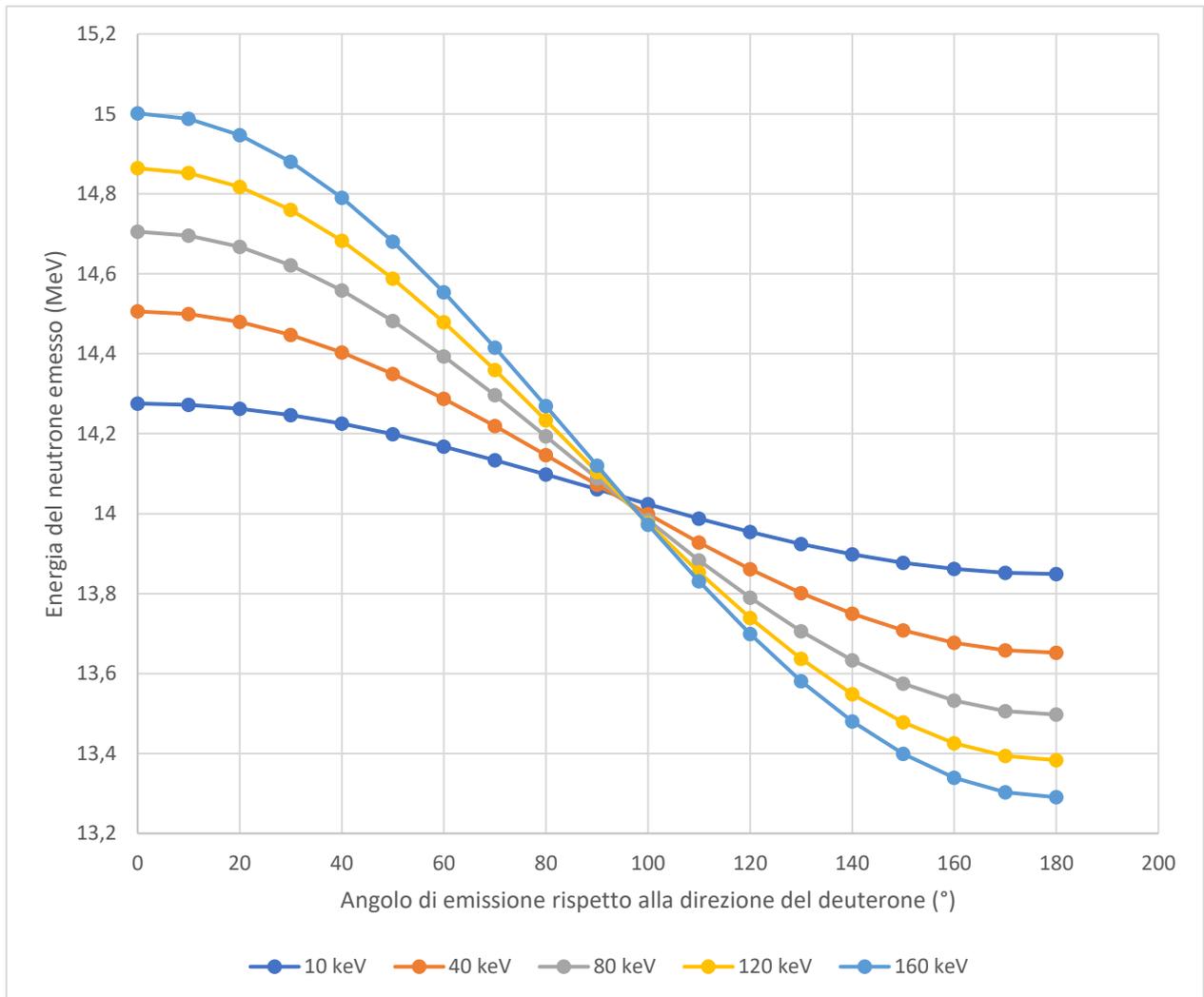


Figura 5-4 – Variazioni angolari dell'energia dei neutroni emessi per diverse energie dei deuteroni incidenti.

È possibile notare che per angoli di emissione intorno ai 95° l'energia dei neutroni emessi è praticamente indipendente dall'energia del deuteron incidente (e corrispondente circa a 14 MeV).

## 5.2 Il generatore MP320 della Thermo Electron Corporation

Il generatore di neutroni utilizzato nell'ambito di tale tesi è un MP320 della Thermo Electron Corporation basato sulla reazione d-t e mostrato in Fig.5-5. Esso contiene un compatto acceleratore lineare che accelera deuteroni su un target contenente trizio causando la reazione di fusione  $d + t \rightarrow \alpha + n$ .



Figura 5-5 – Generatore di neutroni MP320.

Il generatore è in grado di lavorare in modalità continua o pulsata e ha una resa neutronica massima pari a  $1 \times 10^8$  neutroni al secondo con una frequenza compresa tra 250 Hz e 20 kHz. Inoltre, l'interfaccia digitale e le sue caratteristiche avanzate di sicurezza lo rendono ideale per il funzionamento wireless. Il sistema può essere completamente controllato utilizzando una interfaccia standard RS-232 con un semplice programma o con il programma LabWindows Graphical User Interface (GUI) in dotazione.

Tabella 5-3 – Parametri operativi del generatore di neutroni.

<b>Parametro</b>	<b>Valore</b>
<b>Input Voltage</b>	24 VDC +/-10% @ 5 A o da 100 a 240 VAC da 50 a 60 Hz
<b>Potenza</b>	Tipicamente al di sotto di 75 W
<b>Rateo di emissione (massimo)</b>	~10 <sup>8</sup> neutroni/secondo
<b>Energia dei neutroni</b>	14,1 MeV
<b>Massima tensione di accelerazione</b>	90 kV
<b>Frequenza</b>	Da 250 Hz a 20 kHz, continuo
<b>Duty Cycle</b>	Da 5% a 100%, ampiezza minima dell'impulso 5 $\mu$ s
<b>Peso</b>	11,3 kg
<b>Dimensioni ingombro</b>	58 cm x 20 cm x 28 cm

Tramite la schermata del programma (GUI) visualizzata in Fig.5-6 è possibile impostare i valori di corrente di fascio ( $\mu$ A), tensione di alimentazione (kV) e ampiezza dell'impulso tramite duty factor e frequenza.

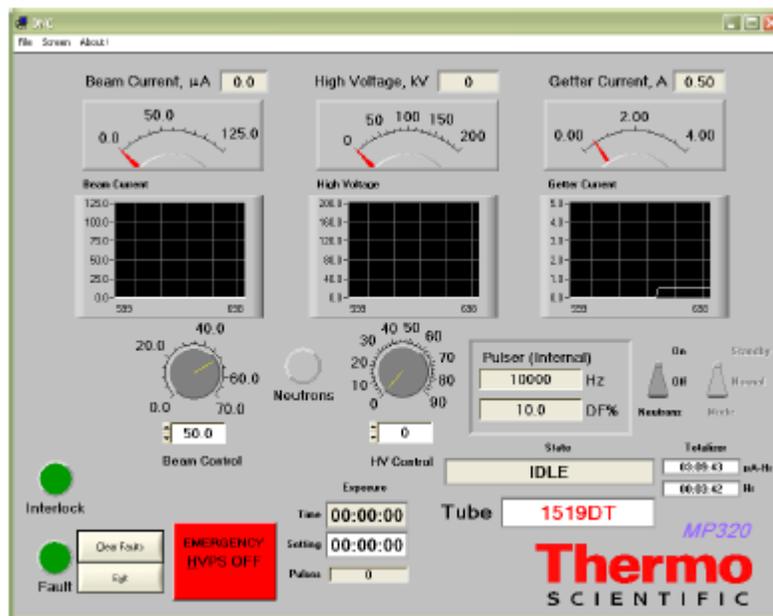


Figura 5-6 – Finestra di dialogo del programma di interfaccia.

La corrente del fascio (beam current) può essere impostata tra 20 e 70  $\mu\text{A}$ ; per prolungare la vita del generatore con migliori prestazioni è consigliabile un utilizzo a bassi valori di corrente. L'alta tensione (high voltage) può essere impostata tra 40 e 90 kV, ma è consigliabile impostare la tensione a valori più alti possibile, perché ad essi corrisponde una maggiore sezione d'urto della reazione d-t. Impostando i valori di tensione e corrente, si imposta il numero di neutroni emessi dal generatore per secondo. Per esempio, impostando 80 kV e 60  $\mu\text{A}$  si ottengono circa  $10^8$  neutroni al secondo. In particolare, la casa costruttrice ha fornito la correlazione approssimata tra resa del generatore Vs. tensione, riportata in Fig.5-7 e valida per una corrente di 60  $\mu\text{A}$ . La casa costruttrice dichiara comunque che la relazione non è universale in quanto ogni tubo è unico e le tecniche di misura utilizzate per determinare tale relazione hanno un'incertezza di misura dell'ordine del 20%. Non esiste una fissata correlazione univoca che descriva il comportamento di tutti i generatori prodotti in tutte le condizioni di funzionamento. La resa è affetta anche dalla scelta dell'utente riguardo il *duty cycle* e la frequenza, che verranno descritti in seguito.

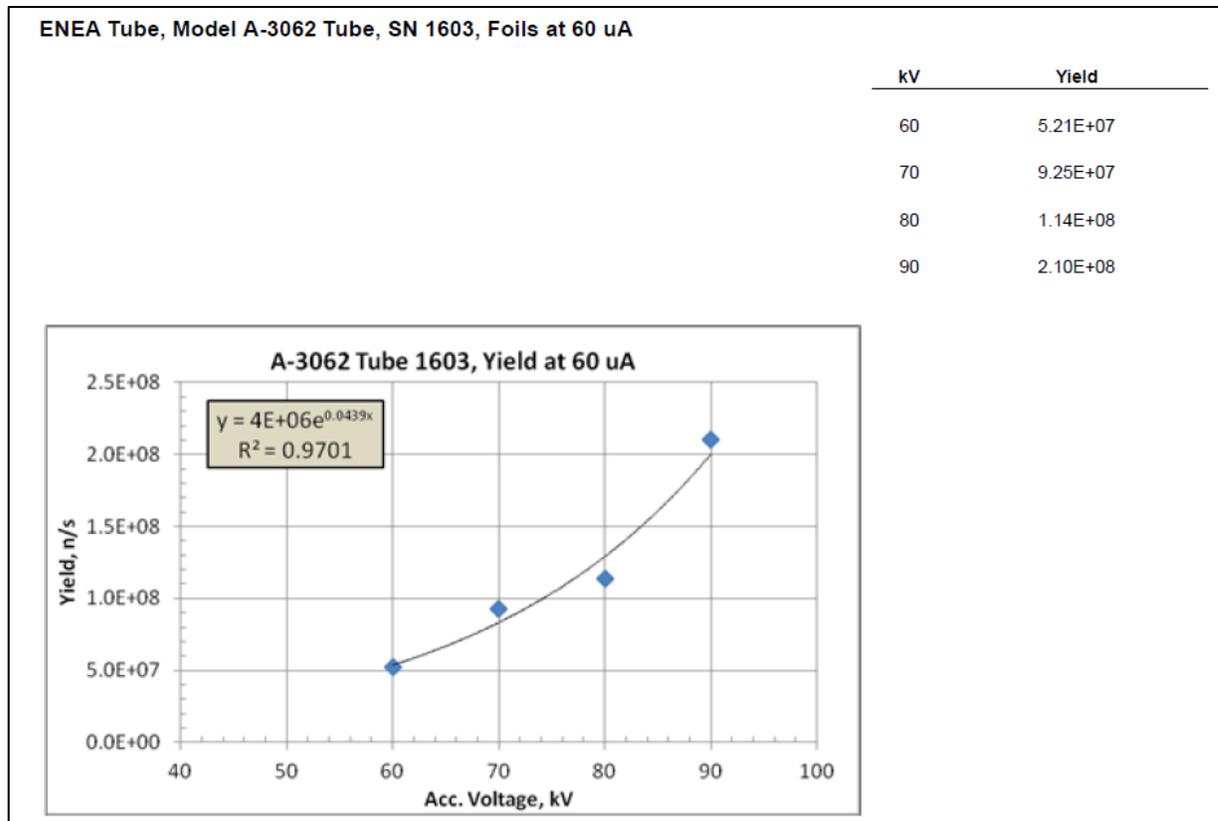


Figura 5-7 – Indicazioni fornite dalla casa costruttrice circa il legame tra tensione di accelerazione e resa neutronica.

La resa è approssimativamente lineare con la corrente. Sulla base di queste relazioni è possibile stimare la resa del generatore in dipendenza dalla scelta di tensione e corrente.

Per ottenere l'ampiezza dell'impulso desiderata si devono invece impostare i valori di duty factor e frequenza. Il duty factor è definito come la frazione del tempo di irraggiamento in cui il generatore effettivamente emette neutroni. Da ciò si deduce che la relazione che lega l'ampiezza dell'impulso al duty factor e alla frequenza è la seguente:

$$\text{ampiezza dell'impulso} = \frac{\text{duty factor}}{\text{frequenza}}$$

La casa costruttrice ha fornito l'andamento, in funzione dell'angolo di emissione, del flusso neutronico a 50 cm di distanza dal target del generatore, stimato mediante

simulazione, per una resa del generatore di  $10^8$  n/s. Tale andamento è rappresentato in Fig.5-8.

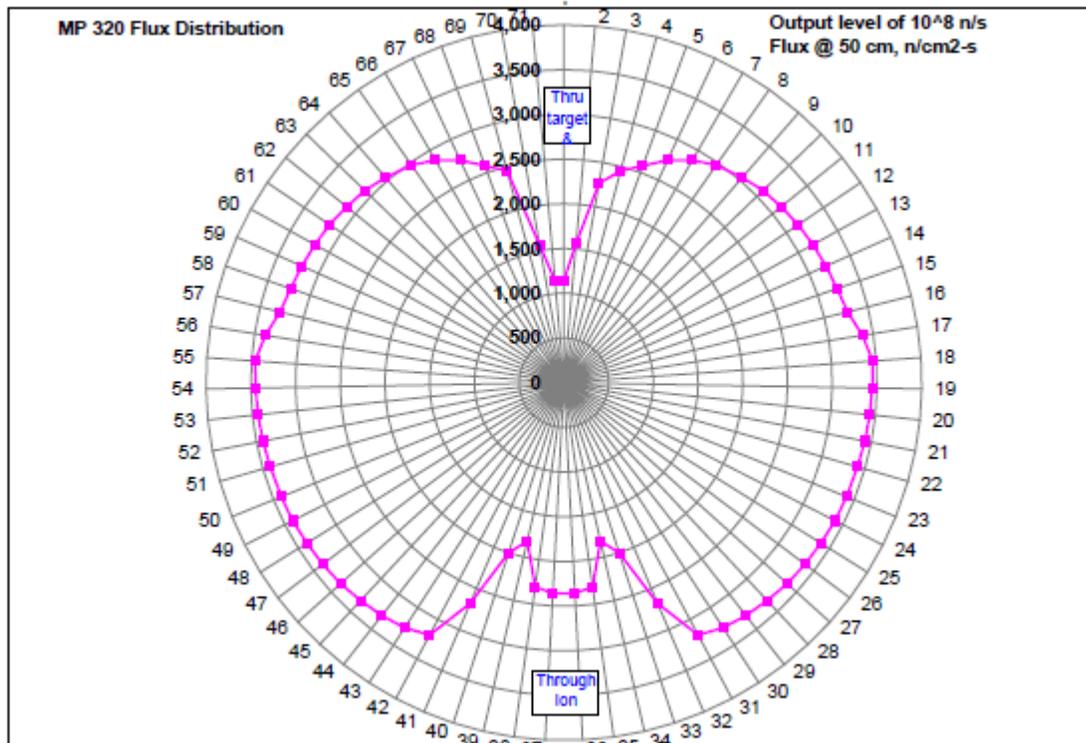


Figura 5-8 – Andamento, in funzione dell'angolo di emissione, del flusso neutronico a 50 cm dal target del generatore.

Per semplicità, nello studio di fattibilità MCNPX si è scelto di simulare il generatore con una sorgente puntiforme e isotropa a 14 MeV. Passati dallo studio di fattibilità alla progettazione vera e propria del dispositivo che si vedrà nei capitoli successivi, si è sentita l'esigenza di realizzare una ricostruzione MCNPX del generatore maggiormente rispondente alla realtà. Per ottimizzare la simulazione del generatore sono state realizzate delle radiografie del generatore stesso mediante il sistema radiografico Gilardoni FEP ME Cargo (38) grazie al quale è stato possibile investigare sulla configurazione interna.

In Fig.5-9 è mostrato il confronto tra la radiografia a 160 kV (sopra) e la radiografia virtuale ricostruita all'interno dell'input MCNPX (sotto).

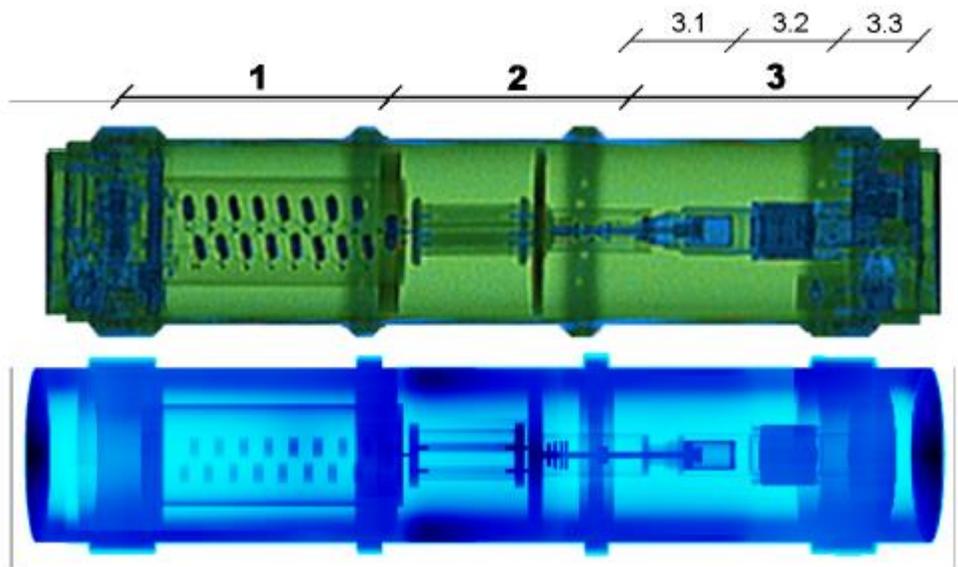


Figura 5-9 – Confronto tra la radiografia reale (sopra) e la radiografia virtuale realizzata mediante MCNPX (sotto).

Osservando la Fig.5-9 è possibile individuare i componenti principali del generatore:

1. Generatore Cockcroft-Walton;
2. Conessioni elettriche con il tubo sigillato del generatore;
3. Tubo sigillato del generatore, costituito a sua volta da:
  - 3.1 Sezione del target triziato;
  - 3.2 Sorgente Penning di deuteroni;
  - 3.3 Serbatoio di gas deuterio.

Partendo dalla radiografia, l'input MCNPX del generatore è stato via via modificato con lo scopo di riprodurre l'andamento del flusso neutronico emesso mostrato in Fig.5-8.

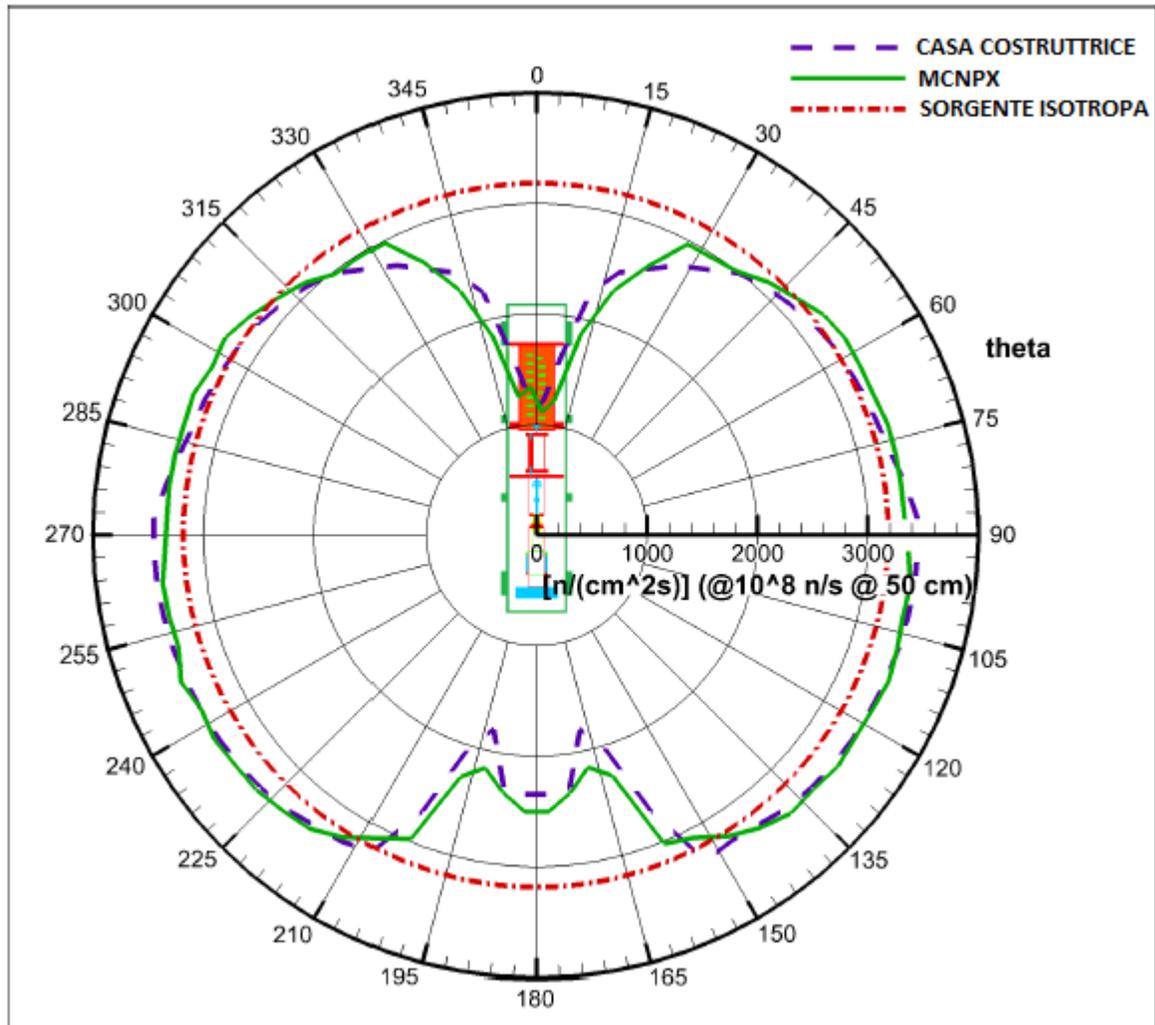


Figura 5-10 – Confronto tra il flusso dichiarato dalla casa costruttrice e i risultati della simulazione MCNPX.

In Fig.5-10 è mostrato il confronto tra quanto dichiarato dalla casa costruttrice e i risultati della simulazione MCNPX. Le massime deviazioni dall'isotropia del flusso neutronico si hanno in corrispondenza di 0° e 180° che corrispondono alle due estremità del generatore, ciò è dovuto ai materiali (rame, allumina, vetro, ecc.) che si trovano in maggior quantitativo lungo tali direzioni con i quali i neutroni possono interagire.

### ***5.3 Caratterizzazione sperimentale del generatore di neutroni***

La caratterizzazione sperimentale del generatore di neutroni è avvenuta in due fasi, utilizzando due tipi di rivelatori:

- fase 1: caratterizzazione sperimentale del flusso neutronico in corrispondenza dei diversi angoli di emissione mediante il Berthold LB6411 (39);
- fase 2: caratterizzazione sperimentale del flusso neutronico e dell'energia dei neutroni in corrispondenza dei diversi angoli di emissione mediante un rivelatore al diamante.

#### ***5.3.1 Fase 1: Caratterizzazione sperimentale del flusso neutronico in corrispondenza dei diversi angoli di emissione mediante il Berthold LB6411***

Per verificare la distribuzione angolare dell'emissione neutronica dichiarata dalla casa costruttrice e confermare le capacità dell'input MCNPX sviluppato nella riproduzione dei valori sperimentali, è stato messo a punto un setup sperimentale facendo uso dello strumento Berthold LB6411, mostrato in Fig.5-11.



*Figura 5-11 – Berthold LB6411.*

Si tratta di una sonda progettata per la misura dell'equivalente di dose ambientale per neutroni in accordo con le raccomandazioni dell'International Commission on Radiation Protection, ICRP. È costituito da una sfera moderatrice di polietilene che al centro presenta un tubo a  $^3\text{He}$ , che conta i protoni di rinculo generati per interazione dell' $^3\text{He}$  con i neutroni termalizzati grazie alla presenza del polietilene. Il rateo di conteggio misurato dal Berthold LB6411 può essere convertito in un flusso neutronico o in equivalente di dose ambientale  $H^*(10)$  attraverso opportuni coefficienti di conversione. I valori precaricati nel rivelatore sono riferiti allo spettro neutronico da fissione spontanea del  $^{252}\text{Cf}$ . Le valutazioni fatte con tale sonda in campo vanno considerate come valori medi per ottenere un ordine di grandezza della quantità analizzata. Se invece si vogliono fare valutazioni più accurate, i valori del coefficiente di conversione precaricati di default nello strumento non possono essere utilizzati e il rateo di conteggio va convertito in flusso utilizzando un valore più idoneo per il coefficiente di conversione. Il valore di tale coefficiente si può trovare nel manuale del dispositivo una volta noto lo spettro energetico dei neutroni nella posizione in cui si trova il rivelatore, nel caso in esame si può considerare in prima analisi un'energia di 14 MeV. Lo stesso coefficiente può essere calcolato inoltre mediante simulazione MCNPX che permette di conoscere lo spettro energetico dei neutroni nel punto di analisi e applicare un coefficiente di conversione corretto ottimale.

Il setup sperimentale mostrato in Fig.5-12 è stato posizionato in un ambiente molto ampio su una griglia metallica a 4 m di altezza rispetto al pavimento con l'intento di ridurre al massimo il contributo sul rivelatore legato ai neutroni che subiscono scattering e massimizzare così la componente incollata.

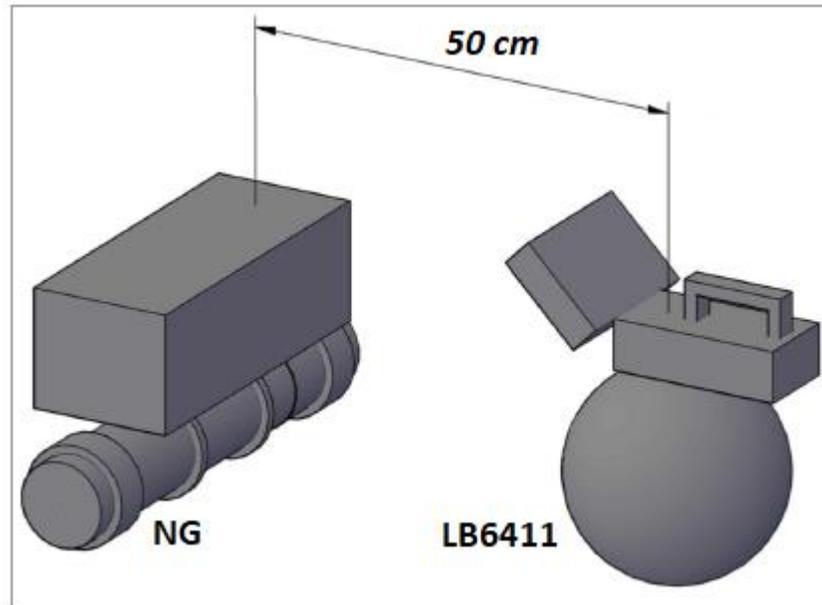


Figura 5-12 – Setup sperimentale della fase 1 di caratterizzazione del generatore di neutroni.

Le misure sono state condotte posizionando la sonda per neutroni a 50 cm dal centro del target in diverse posizioni angolari, partendo da  $0^\circ$  rispetto alla direzione dei deuteroni incidenti e spostandosi progressivamente di  $22.5^\circ$ . I ratei di conteggio misurati sono poi stati convertiti in flusso neutronico per mezzo del coefficiente tabellato nel manuale della sonda e, per confronto, del coefficiente calcolato mediante la determinazione MCNPX dello spettro energetico dei neutroni nel punto di misura.

I risultati ottenuti sono riportati in Fig.5-13 e mostrano un eccellente accordo tra i dati forniti dalla casa produttrice, i dati sperimentali e i dati ottenuti mediante simulazione MCNPX. In Fig.5-13 sono comprese anche le barre di errore: per la serie di dati 'MCNPX' è considerato un errore del 10% sulla resa neutronica, per la serie di dati sperimentali per calcolare gli errori è stata scelta una distribuzione di Poisson sui conteggi (in particolare, è stato considerato un valore  $5\sigma$  per tenere in considerazione altri errori, quali quello sulla distanza geometrica tra generatore e rivelatore e l'errore nella reale resa neutronica del generatore).

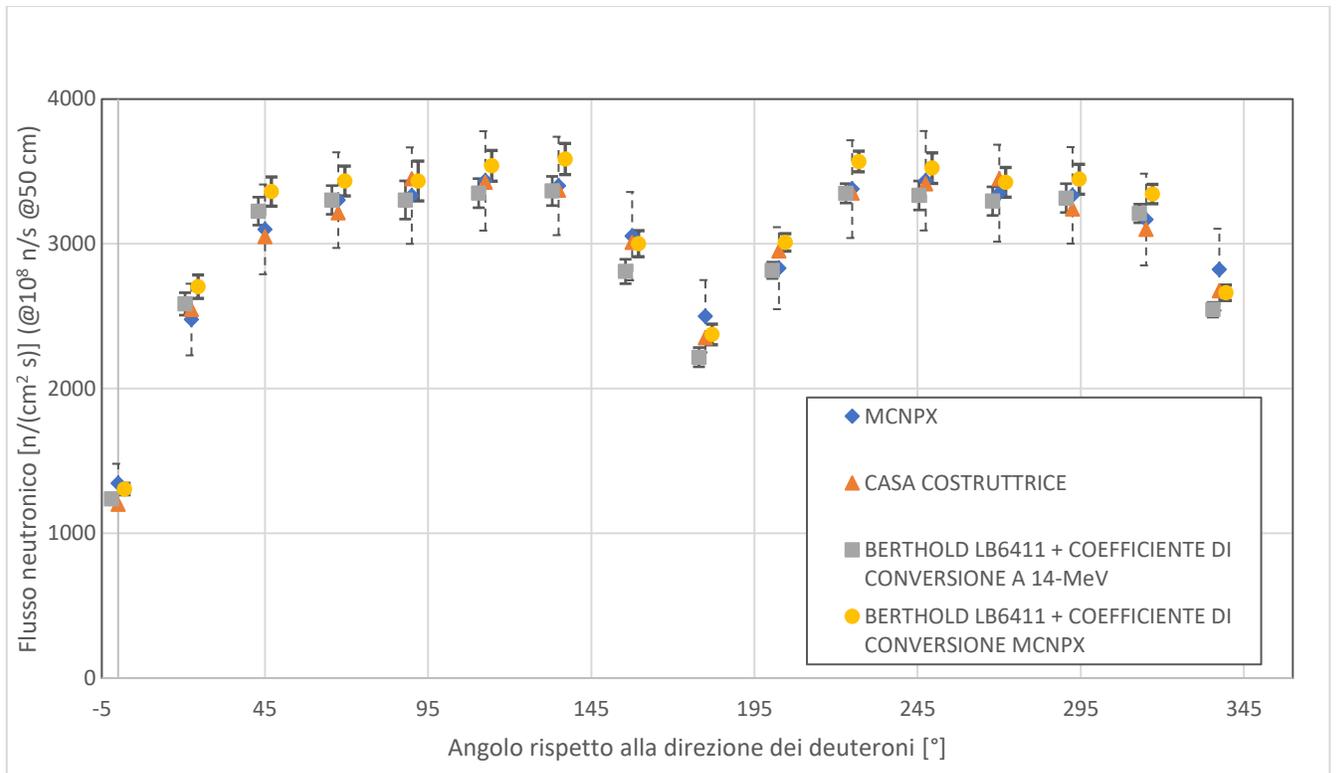


Figura 5-13 – Flusso neutronico Vs. angolo di emissione. Confronto tra i dati dichiarati dalla casa costruttrice, MCNPX e le valutazioni sperimentali.

### 5.3.2 Fase 2: Caratterizzazione sperimentale del flusso neutronico e dell'energia dei neutroni in corrispondenza dei diversi angoli di emissione mediante un rivelatore al diamante

Per una verifica ulteriore della distribuzione angolare dell'emissione neutronica dichiarata dalla casa costruttrice e per verificare la variazione di energia dei neutroni con l'angolo di emissione, è stato messo a punto un ulteriore esperimento. Il rivelatore utilizzato in questo caso è un rivelatore al diamante CVD (Chemical Vapour Deposition) (40) dalle dimensioni di 0.47 cm x 0.47 cm x 0.05 cm (Fig.5-14).

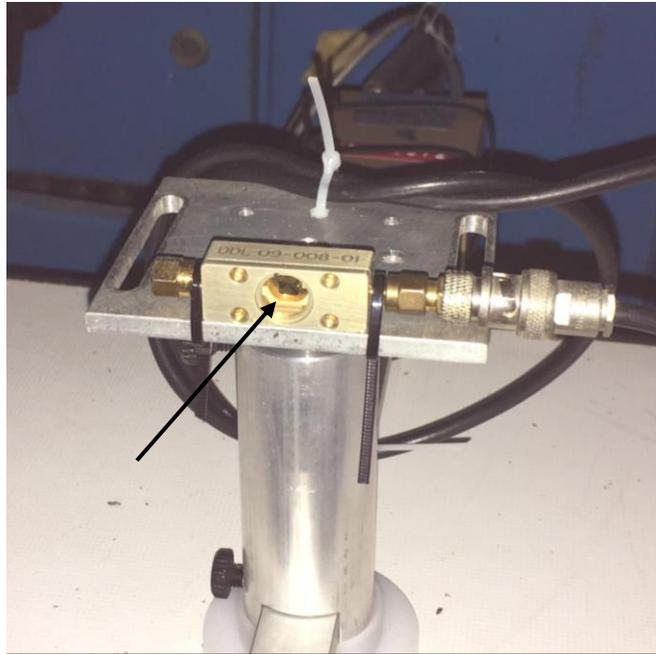


Figura 5-14 – Rivelatore al diamante utilizzato nell'esperimento. La freccia indica il cristallo.

Si tratta di un rivelatore che si comporta come una camera a ionizzazione a stato solido a forma di parallelepipedo. Una particella carica o un fotone con energia superiore alla bandgap passa attraverso il diamante e lo ionizza generando coppie di elettrone-lacuna, che sono separati mediante un campo elettrico tra gli elettrodi (l'energia necessaria per formare una coppia elettrone-lacuna è 13 eV). I neutroni veloci sono rivelati attraverso la reazione  $^{12}\text{C}(n,\alpha)^9\text{Be}$ . I prodotti di reazione,  $^9\text{Be}$  e  $\alpha$ , hanno un'energia totale pari a  $E_n - 5.7\text{MeV}$ , dove  $E_n$  è l'energia del neutrone incidente. In particolare, lo spettro dell'energia depositata in un diamante da neutroni veloci con energia 14.1 MeV è mostrato in Fig.5-15 in cui sono evidenziati con numerazione differente i contributi allo spettro connessi a diverse reazioni che sono elencate in Tab.5-4.

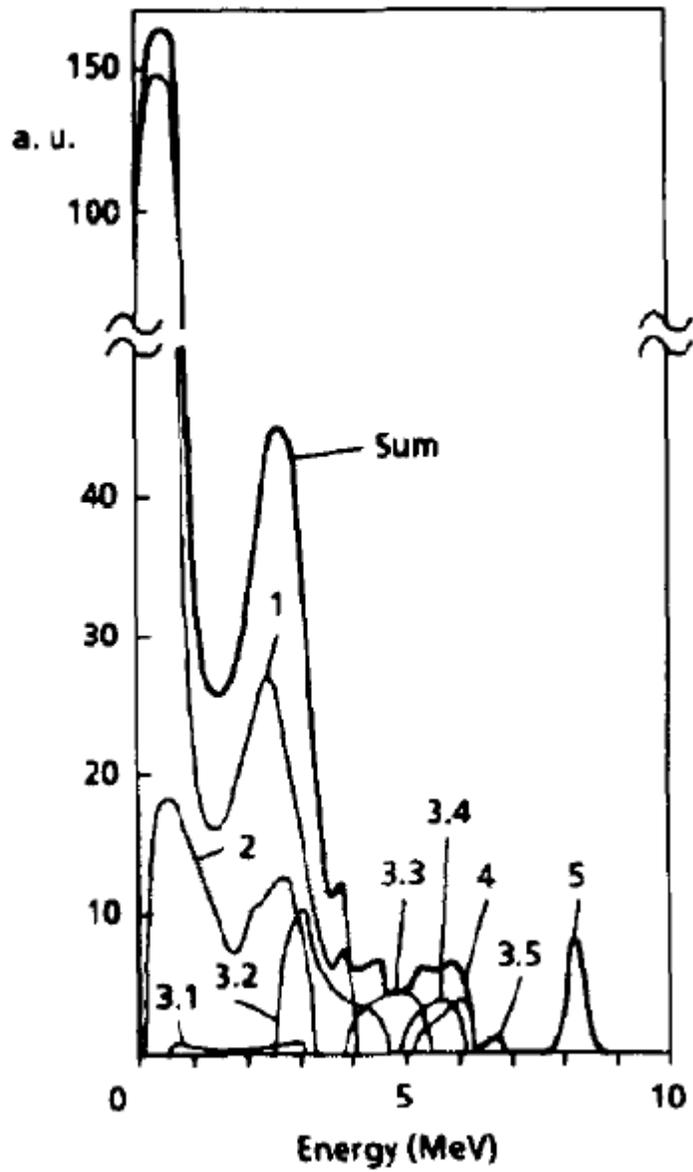


Figura 5-15 – Spettro dell'energia depositata da neutroni da 14.1 MeV in un diamante. (41)

Tabella 5-4 – Possibili canali di reazione dei neutroni da 14.1 MeV con il carbonio. I numeri sono corrispondenti a quelli riportati in Fig.5-15. (41)

	Canale di reazione	Soglia energetica (MeV)	Sezione d'urto (mb)		Range della somma delle energie cinetiche dei prodotti di reazione (MeV)
			$E_n = 14.1 \text{ MeV}$	$E_n = 14.1 \text{ MeV}$	
1	Elastic scattering $^{12}\text{C}(n,n')^{12}\text{C}$	0	800		0.00–4.00
2	Inelastic scattering $^{12}\text{C}(n,n')^{12}\text{C}^*$ ( $E^* = 4.439 \text{ MeV}$ )	4.8	200		0.04–3.29
3	$^{12}\text{C}(n,n')^{12}\text{C}^*(\alpha)^8\text{Be}(\alpha)$				
3.1	$E_{^{12}\text{C}^*} = 7.65 \text{ MeV}$	8.3	$10 \pm 2$		0.50–3.07
3.2	$E_{^{12}\text{C}^*} = 9.64 \text{ MeV}$	10.4	$76 \pm 8$		2.60–4.64
3.3	$E_{^{12}\text{C}^*} = 10.8 \text{ MeV}$	11.7	$47 \pm 4$		3.87–5.52
3.4	$E_{^{12}\text{C}^*} = 11.8 \text{ MeV}$	12.8	$39 \pm 12$		5.01–6.25
3.5	$E_{^{12}\text{C}^*} = 12.8 \text{ MeV}$	13.8	$39 \pm 12$		6.29–6.80
3.6	$E_{^{12}\text{C}^*} = 14.0 \text{ MeV}$	15.1	0		
4	$^{12}\text{C}(n,\alpha)^9\text{Be}^*$ ( $E^* = 2.43 \text{ MeV}$ )	8.8	$32 \pm 20$		5.10–6.30
5	$^{12}\text{C}(n,\alpha_0)^9\text{Be}$	6.2	$72 \pm 9$		8.40

Come anticipato, la reazione di interesse per la rivelazione dei neutroni veloci da 14 MeV è l'ultima, responsabile del picco a ( $E_n=5.7 \text{ MeV}$ ) nello spettro. Osservando la posizione di tale picco in misure relative a posizioni angolari diverse si può stimare l'energia di emissione dei neutroni al variare dell'angolo di emissione. Valutando invece l'area sottesa al picco è possibile avere informazioni circa il flusso incidente nel punto di interesse e confrontare i valori ottenuti con i dati forniti dalla casa costruttrice (Fig.5-8).

Si è scelto di utilizzare il generatore a 80 kV e 60  $\mu\text{A}$  in modalità di emissione continua, l'andamento teorico dell'energia dei neutroni emessi in funzione dell'angolo di emissione per deuteroni di energia 80 keV è mostrato in Fig.5-16, dove si può notare che il range energetico di emissione dei neutroni è compreso teoricamente tra circa 13.5 MeV in corrispondenza della posizione a 180° e 14.7 MeV in corrispondenza di 0°.

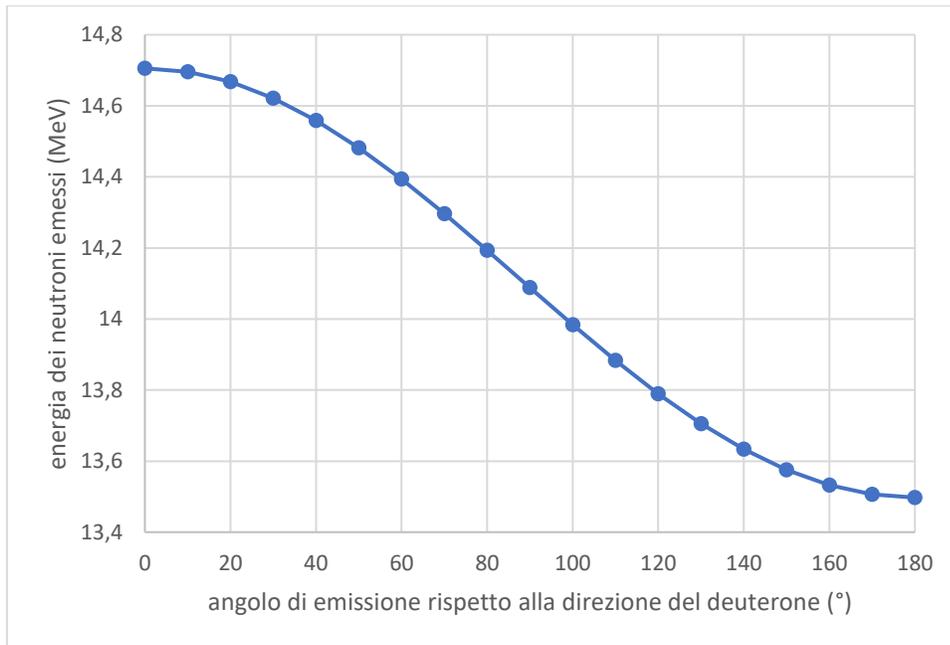


Figura 5-16 – Andamento teorico dell'energia del neutrone emesso in funzione dell'angolo di emissione per una energia del deuteron incidente pari a 80 keV.

Per massimizzare il flusso nel punto di indagine e ridurre così il tempo di misura si è scelto di posizionare il diamante a 17 cm dal target del generatore in 11 posizioni angolari: 45°, 67.5°, 90°, 112.5°, 135°, 157.5°, 168.75°, 180°, 191.25°, 225°, 270°. Le misure in corrispondenza delle ultime tre posizioni angolari sono state condotte al fine di verificare la simmetria d'irraggiamento, non è stato possibile invece indagare la zona compresa tra 0° e 45° poiché, a causa dell'ingombro del generatore, sarebbe stato necessario aumentare la distanza dal target incrementando il tempo di misura in maniera non realizzabile. Nelle Figg.5-17 – 5-18 è mostrata la struttura metallica che unisce solidalmente il diamante al generatore e permette tramite un braccio mobile di far ruotare il diamante attorno al centro del target. In Fig.5-19 sono riportati invece gli spettri acquisiti nelle varie posizioni e in Fig.5-20 è mostrata la parte dello spettro d'interesse, caratteristica della reazione  $^{12}\text{C}(n,\alpha)^9\text{Be}$ .



Figura 5-17 – Layout sperimentale utilizzato per la caratterizzazione del generatore mediante rivelatore al diamante.



Figura 5-18 – Braccio metallico rotante attorno al target del generatore.

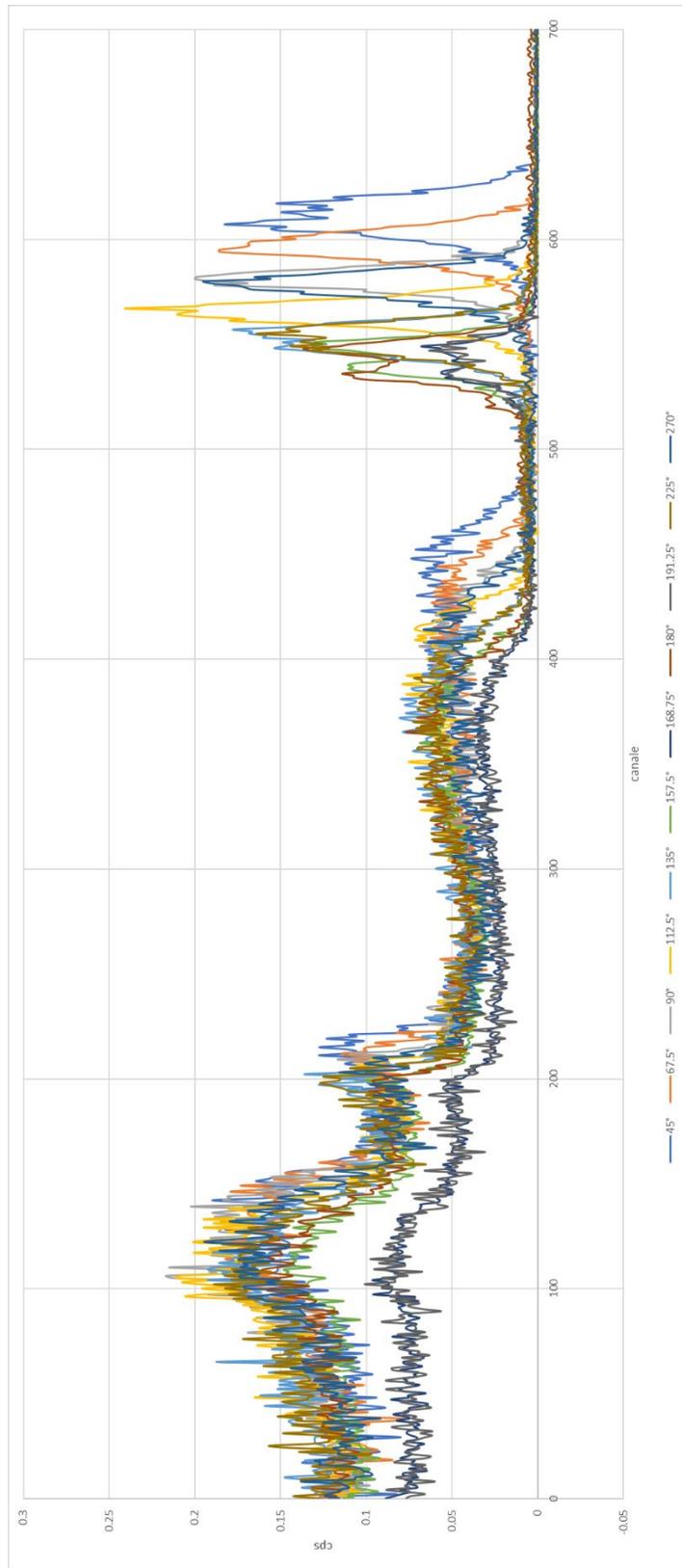


Figura 5-19 – Spettro dell'energia depositata nel diamante al variare della posizione angolare.

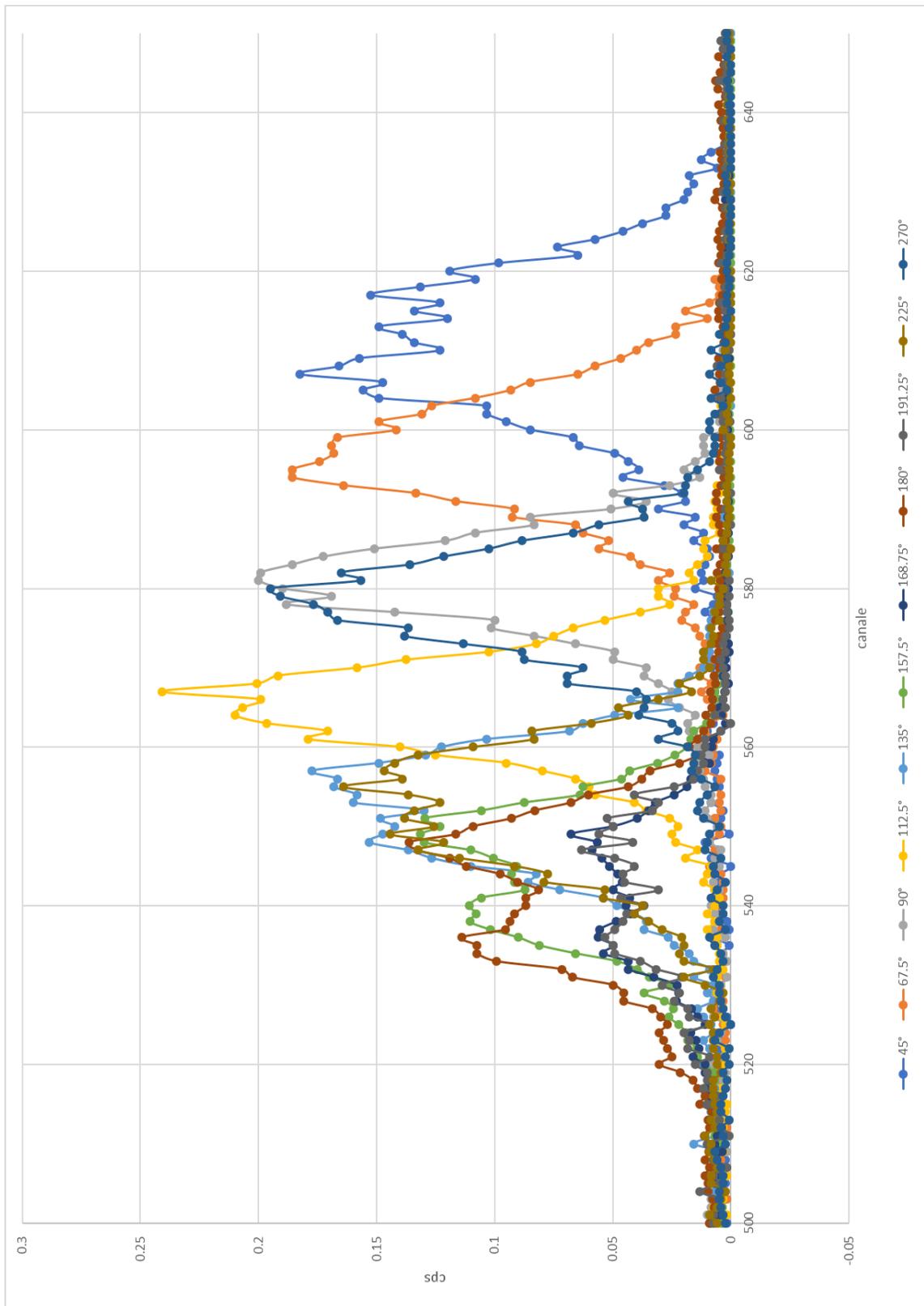


Figura 5-20 – Parte dello spettro d'interesse relativa alla reazione  $^{12}\text{C}(n, \alpha)^9\text{Be}$ .

L'area sottesa al picco corrispondente alla reazione  $^{12}\text{C}(n,\alpha)^9\text{Be}$  corrisponde al rateo di conteggio relativo alla componente neutronica incollisa. Volendo risalire al flusso incidente a 50 cm dal target per poter operare un confronto con i dati forniti dalla casa costruttrice, si è utilizzata la seguente relazione:

$$\varphi_{50\text{ cm}} = \frac{R}{\sigma \cdot N \cdot V} \cdot K$$

in cui R è il rateo di conteggio corrispondente all'area sottesa al picco d'interesse,  $\sigma$  è la sezione d'urto della reazione  $^{12}\text{C}(n,\alpha)^9\text{Be}$  valutata all'energia teorica in corrispondenza della posizione angolare considerata (si veda Fig.5-16), N è la densità di particelle nel diamante ( $1.76 \cdot 10^{23}$  atomi/cm<sup>3</sup>), V è il volume del diamante e K un fattore correttivo per la distanza.

In Fig.5-21 è riportata la sezione d'urto della reazione  $^{12}\text{C}(n,\alpha)^9\text{Be}$ .

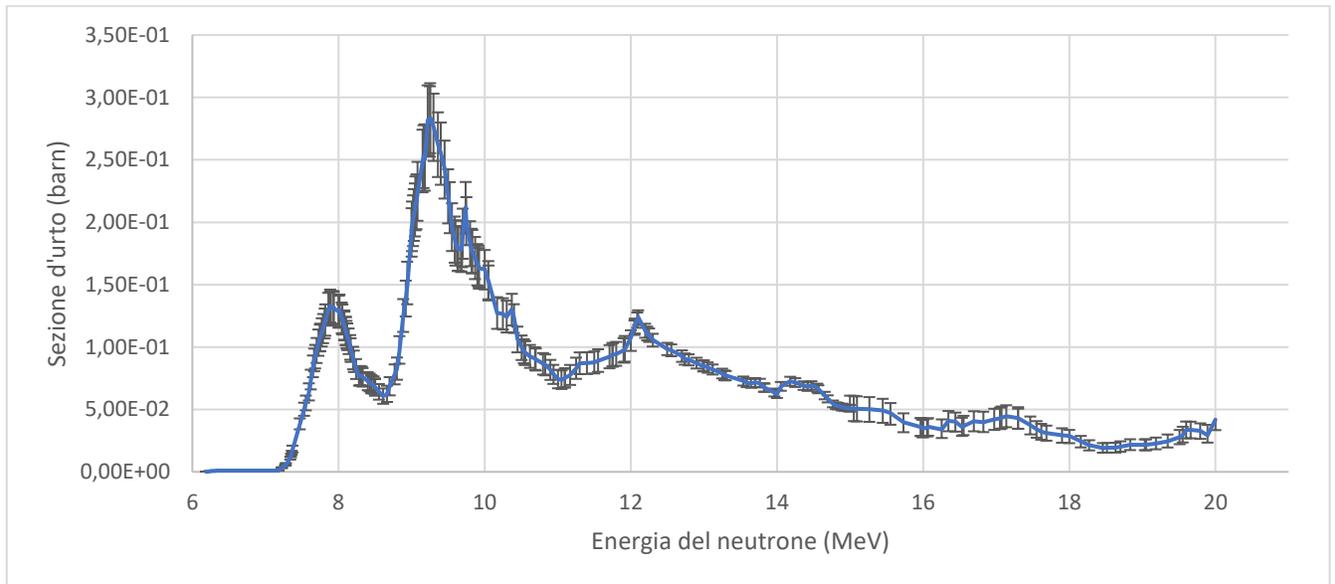


Figura 5-21 – Sezione d'urto della reazione  $^{12}\text{C}(n,\alpha)^9\text{Be}$  (42).

Dopo una verifica sperimentale effettuata realizzando misure a diverse distanze dal target, è risultato verosimile considerare un'attenuazione del flusso con il quadrato della distanza. Per tale motivo il fattore correttivo K è stato definito nel seguente modo:

$$K = \frac{17^2}{50^2}$$

In Fig.5-22 è riportato il confronto tra i valori ottenuti dall'elaborazione dei dati sperimentali e i dati forniti dalla casa costruttrice. Per la valutazione delle incertezze si è considerata la propagazione degli errori sui conteggi e sulle sezioni d'urto. Per i conteggi si è considerata una distribuzione di Poisson e un'incertezza pari a  $3\sigma$ , per le sezioni d'urto sono state considerate le incertezze dichiarate nella libreria di riferimento. È bene ricordare che i dati forniti dalla casa costruttrice sono dati simulati che presentano essi stessi delle incertezze. È inoltre dichiarato dalla stessa casa costruttrice che con le impostazioni di tensione e corrente rispettivamente a 80 kV e 60  $\mu$ A la resa del generatore risulta  $1.1 \times 10^8$  n/s con un'incertezza del 25%. Tenendo presenti tali considerazioni in Fig.5-22 sono riportati con linea tratteggiata i dati forniti dalla casa costruttrice aumentati e diminuiti del 25%. Si evince dall'analisi dei dati una piena rispondenza tra i risultati sperimentali e i dati della casa costruttrice.

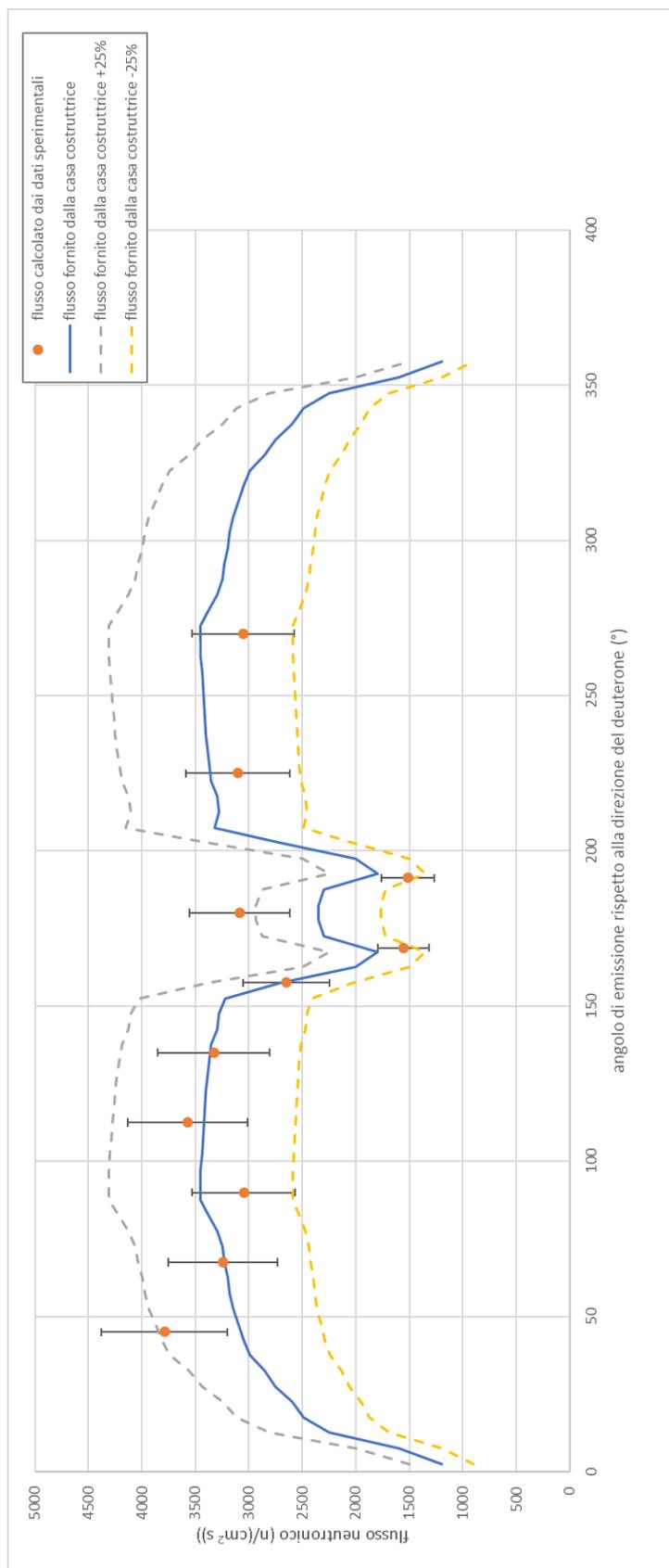


Figura 5-22 – Confronto tra il flusso calcolato a partire dai dati sperimentali e il flusso dichiarato dalla casa costruttrice.

Dall'analisi delle Figg.5-19 – 5-20 risulta ben visibile lo shift energetico che subisce il picco caratteristico in funzione dell'angolo di emissione, in particolare a 180° corrispondono i canali minori, a 45° i canali maggiori e a posizioni angolari intermedie canali intermedi. Ciò è conforme all'andamento teorico mostrato in Fig.5-16.

Per verificare dunque la variazione di energia dei neutroni emessi al variare dell'angolo di emissione si è proceduto nel seguente modo:

- per stabilire il canale corrispondente al centroide di ciascun picco si è eseguito un fit mediante funzione gaussiana del tipo  $f(x) = ae^{-\left(\frac{x-b}{c}\right)^2}$ . In Fig.5-23 sono riportate le curve corrispondenti a tale fit;
- utilizzando i valori noti delle energie teoriche corrispondenti a ciascun angolo di emissione, si è valutata l'ampiezza del range energetico ( $E_{max} - E_{min}$ ) entro il quale si devono posizionare i centroidi dei diversi picchi;
- utilizzando i risultati del fit si è valutato il numero di canali corrispondenti entro i quali si devono posizionare i centroidi dei diversi picchi ( $ch_{E_{max}} - ch_{E_{min}}$ );
- si è valutata, dal rapporto tra le due grandezze, quanta energia corrisponde a ciascun canale ( $E/ch$ );
- tenendo conto del fatto che indipendentemente dall'energia del deuteroni a un angolo di emissione del neutrone di circa 90° corrisponde un'energia di 14.1 MeV, si è valutata l'energia corrispondente al canale centroide di ciascun picco con la seguente relazione:

$$E_{centroide} = 14.1 + (ch - ch_{90^\circ}) \cdot \left(\frac{E}{ch}\right)$$

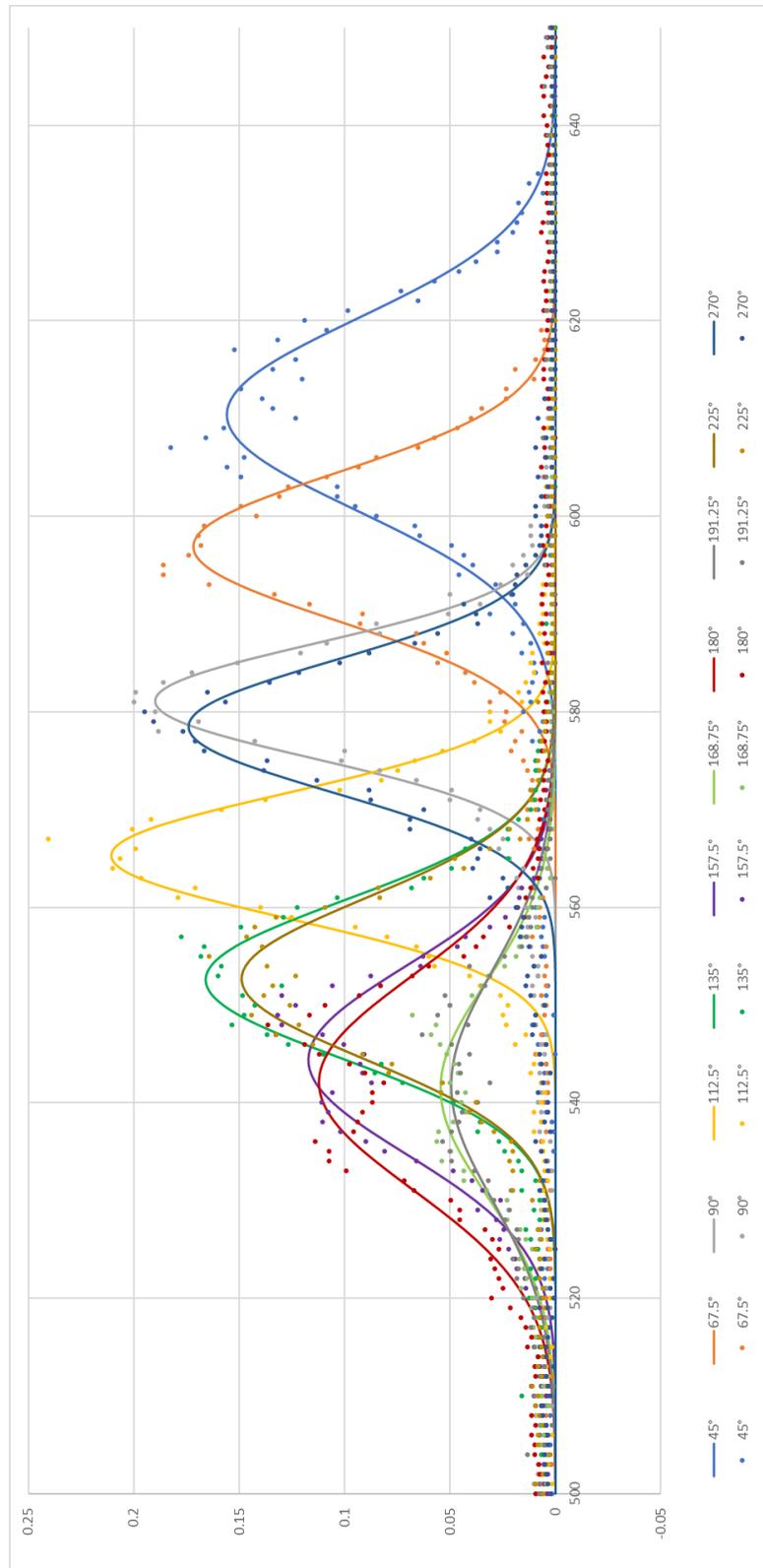


Figura 5-23 – Fit mediante funzione gaussiana dei picchi corrispondenti alla reazione  $^{12}\text{C}(n,\alpha)^9\text{Be}$ .

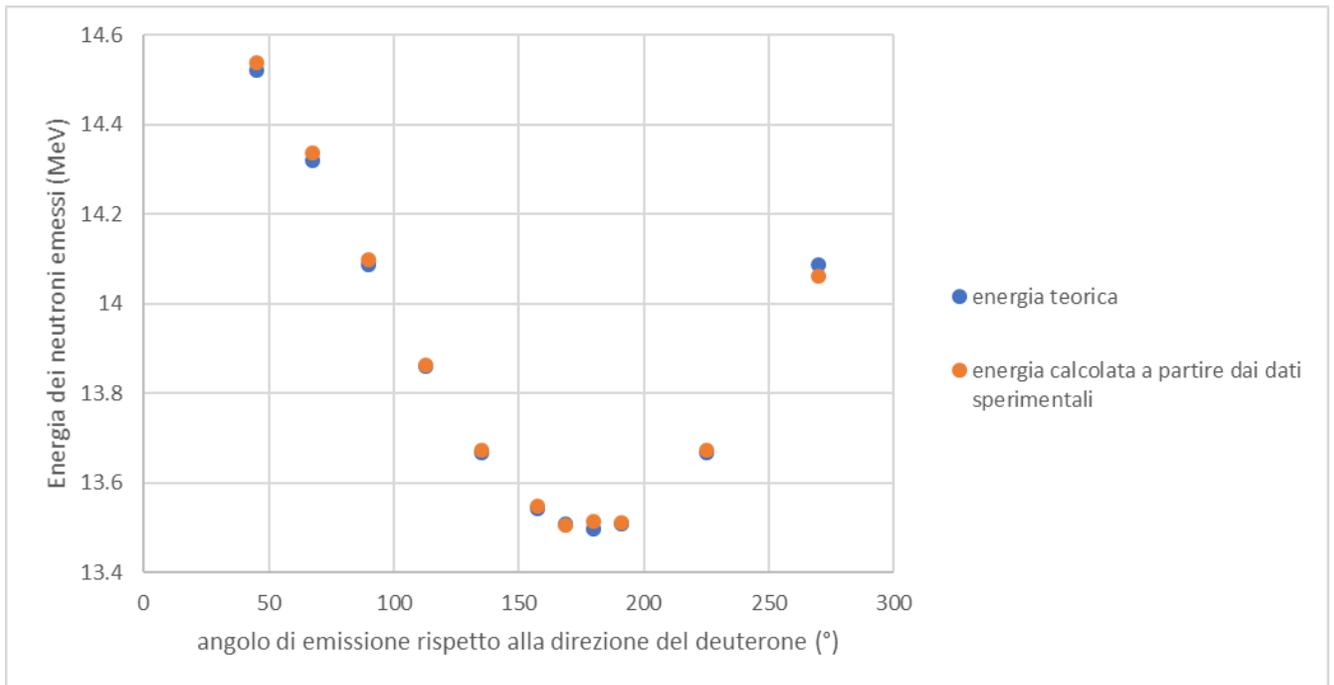


Figura 5-24 – Confronto tra energia teorica dei neutroni emessi e energia calcolata a partire dai dati sperimentali al variare dell'angolo di emissione.

In Fig.5-24 è riportato il confronto tra l'energia teorica corrispondente a ciascun centroide e la medesima energia calcolata con il metodo descritto a partire dalle misure effettuate. È possibile asserire che esiste rispondenza tra i risultati sperimentali e i dati teorici.

## 6. Caratterizzazione dei rivelatori $^3\text{He}$

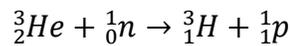
In seguito alla caratterizzazione del campo di radiazione emesso dal generatore di neutroni, si è passati ad analizzare le prestazioni dei tubi  $^3\text{He}$ , elementi primari del sistema di rivelazione.

Non essendo portatori di carica, i neutroni, come accade per i raggi gamma, non possono interagire con la materia per effetto della forza coulombiana, la quale domina, invece, i meccanismi di perdita di energia per gli elettroni e le altre particelle cariche. I neutroni possono infatti viaggiare attraverso diversi centimetri di materia senza alcun tipo di interazione e per questo possono risultare totalmente invisibili ad un rivelatore di dimensioni comuni. Quando un neutrone subisce un'interazione con un nucleo del materiale assorbente, può sia scomparire totalmente ed essere rimpiazzato da una o più radiazioni secondarie oppure può cambiare significativamente la propria energia o direzione. Le radiazioni secondarie risultanti dalle interazioni dei neutroni con la materia sono nella maggior parte dei casi particelle cariche pesanti che possono essere prodotte sia come risultato di una reazione nucleare indotta da neutroni oppure possono essere i nuclei stessi del materiale assorbente che hanno guadagnato energia come risultato delle collisioni. La maggior parte dei rivelatori per neutroni si basa su una reazione di conversione, la quale converte appunto il neutrone incidente in particelle secondarie cariche che possono essere rivelate direttamente. Un qualunque tipo di rivelatore per neutroni è costituito dalla combinazione di un materiale bersaglio progettato per dar luogo alla conversione e un convenzionale rivelatore di radiazioni. Poiché la sezione d'urto per le interazioni dei neutroni nella maggior parte dei materiali è fortemente funzione dell'energia del neutrone, differenti tecniche sono state sviluppate per la rivelazione dei neutroni in diverse regioni energetiche. Per individuare le migliori reazioni nucleari utili per la rivelazione dei neutroni, diversi fattori devono essere presi in considerazione.

- Primariamente, la sezione d'urto della reazione deve essere la più elevata possibile, in tal modo rivelatori efficienti possono avere dimensioni relativamente contenute. Ciò è particolarmente importante per i rivelatori nei quali il materiale bersaglio è incorporato in forma gassosa.
- Il nuclide bersaglio dovrebbe essere di elevata abbondanza isotopica nell'elemento naturale oppure dovrebbe essere disponibile una economica sorgente dell'elemento artificialmente arricchito nell'isotopo utile alla rivelazione.
- In molte applicazioni intensi campi gamma sono associati ai campi neutronici e la scelta della reazione di conversione influisce sulla possibilità di discriminare i neutroni dai gamma nel processo di rivelazione. Di principale importanza è in tal senso il Q-valore della reazione che determina l'energia liberata nella reazione che segue la cattura del neutrone. Più alto è il Q-valore maggiore è l'energia conferita ai prodotti della reazione e più semplice risulta il compito di discriminare rispetto agli eventi causati dai raggi gamma usando una semplice discriminazione in ampiezza dell'impulso. Tutte le reazioni di conversione sono sufficientemente esoenergetiche cosicché l'energia cinetica dei prodotti di reazione è determinata esclusivamente dal Q-valore della reazione e non risente dell'energia del neutrone lento incidente. La distanza percorsa dai prodotti di reazione in seguito alla loro formazione ha importanti conseguenze nella scelta del rivelatore. Se risulta necessario catturare l'intera energia cinetica di questi prodotti, il rivelatore deve essere progettato con un volume attivo grande abbastanza per fermare interamente le particelle. Se il mezzo del rivelatore è un solido, questa richiesta è facilmente realizzabile perché il range dei prodotti di reazione non supera qualche decimo di millimetro in un qualunque materiale solido. Se il mezzo del rivelatore è un gas il range dei prodotti di reazione (tipicamente diversi centimetri) può essere comparato con le dimensioni del rivelatore e alcuni di essi possono non depositare tutta la loro energia. Se il rivelatore è grande abbastanza queste perdite possono

essere trascurate, la funzione di risposta sarà molto semplice e consisterà in un singolo full-energy peak. Se invece un significativo numero di eventi indotti da neutroni non deposita tutta l'energia un continuum a più bassa energia si aggiunge al full-energy peak e la prestazione del rivelatore ne risente.

Uno dei gas ampiamente usati per rivelatori di neutroni termici è il gas  $^3\text{He}$  che permette la rivelazione grazie alla reazione di conversione:



Per reazioni indotte da neutroni lenti il Q-valore, che risulta essere 0.764 MeV, si ripartisce tra i due prodotti di reazione diretti in modo opposto con energie:

$$E_p = 0.573 \text{ MeV} \text{ e } E_{^3\text{H}} = 0.191 \text{ MeV}.$$

La sezione d'urto per neutroni termici di questa reazione è 5330 barns e il suo valore decresce con legge  $1/v$  (Fig.6-1).

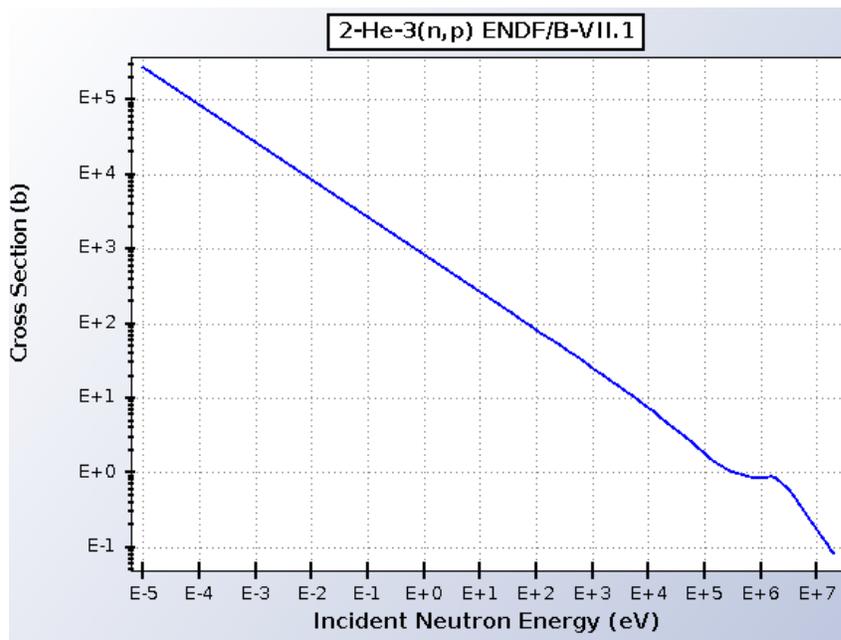


Figura 6-1 - Sezione d'urto Vs. energia per la reazione  $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$  (43).

$^3\text{He}$  di sufficiente purezza si comporta come un gas proporzionale e i rivelatori basati su di esso sono diventati di uso comune. In un grande rivelatore ci si aspetta che ogni reazione indotta da neutroni termici depositi 764 keV nella forma di energia cinetica dei prodotti di reazione, trizio e protone. Poiché il range di questi prodotti di reazione non è

sempre piccolo comparato con le dimensioni di un tubo proporzionale, ha luogo il fenomeno chiamato *effetto parete*. Per un rivelatore grande, quasi tutte le reazioni avvengono sufficientemente lontane dalle pareti del rivelatore e tutta l'energia dei prodotti di reazione viene depositata all'interno del gas. Quando invece le dimensioni del rivelatore diventano comparabili con il range dei prodotti di reazione nel gas, alcuni eventi non depositano più tutta l'energia della reazione nel gas. Se uno dei due prodotti di reazione colpisce la parete viene prodotto un impulso più piccolo. Poiché il neutrone che dà luogo all'interazione non porta con sé un momento apprezzabile, essendo un neutrone termico, i due prodotti di reazione sono diretti in stessa direzione e verso opposto. Se il protone colpisce la parete, il trizio diretto lontano dalla parete deposita tutta la propria energia nel gas, analogamente se il trizio colpisce la parete allora il protone deposita tutta la propria energia nel gas. Esistono due possibilità:

1. Il protone colpisce la parete dopo aver depositato parte della propria energia nel gas e il trizio viene assorbito completamente. Tale evento può accadere se la reazione ha luogo a una distanza dalla parete compresa tra zero e il range del protone nel gas (Fig.6-2).

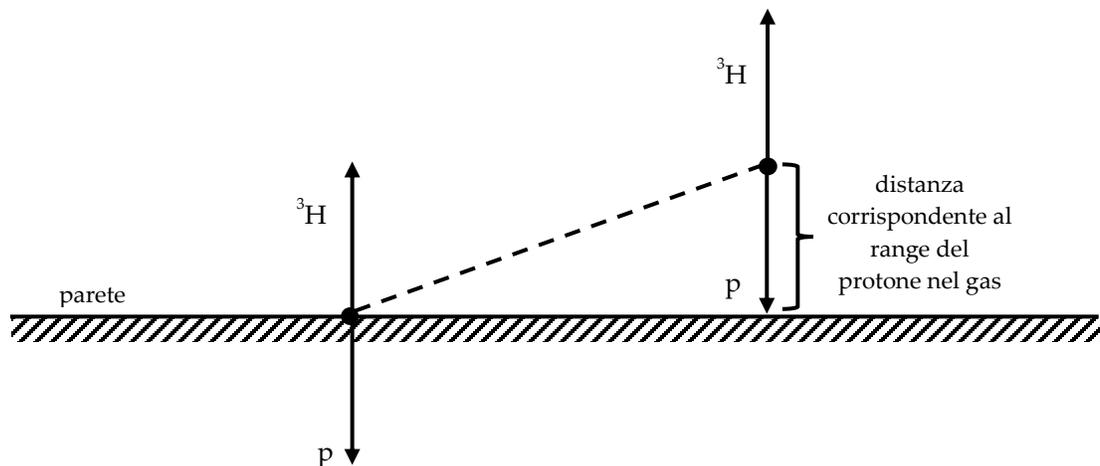


Figura 6-2 – Effetto parete.

L'energia depositata nel gas può dunque variare tra  $E_t$  e  $(E_t + E_p)$ . Poiché tutte le posizioni della reazione sono ugualmente probabili, la distribuzione dell'energia depositata sarà approssimativamente uniforme tra questi due estremi (Fig.6-3).

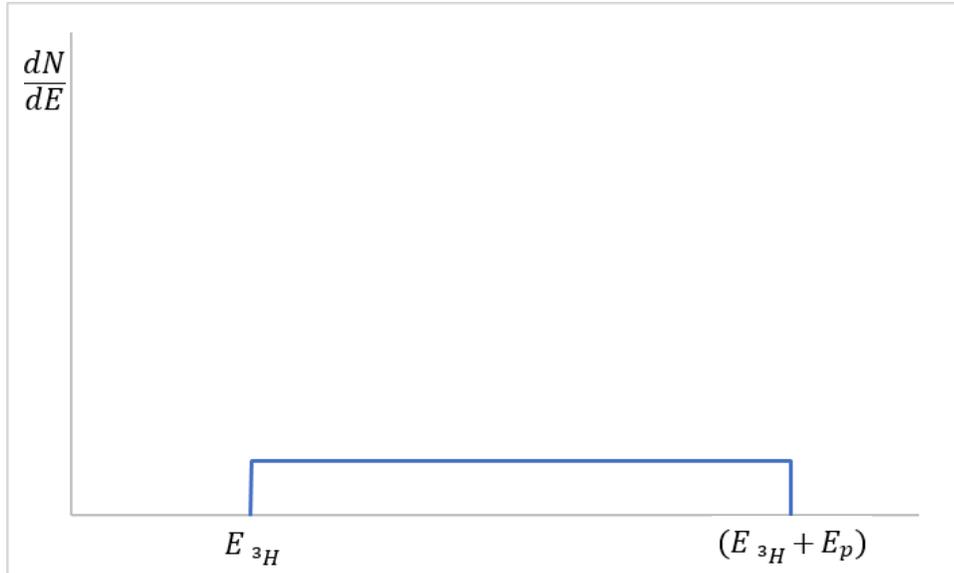


Figura 6-3 – Caso 1.

2. Il trizio colpisce la parete dopo aver depositato parte della propria energia nel gas e il protone viene assorbito completamente. Analogamente al caso 1, l'energia depositata nel gas può variare tra  $E_p$  e  $(E_t + E_p)$  (Fig.6-4).

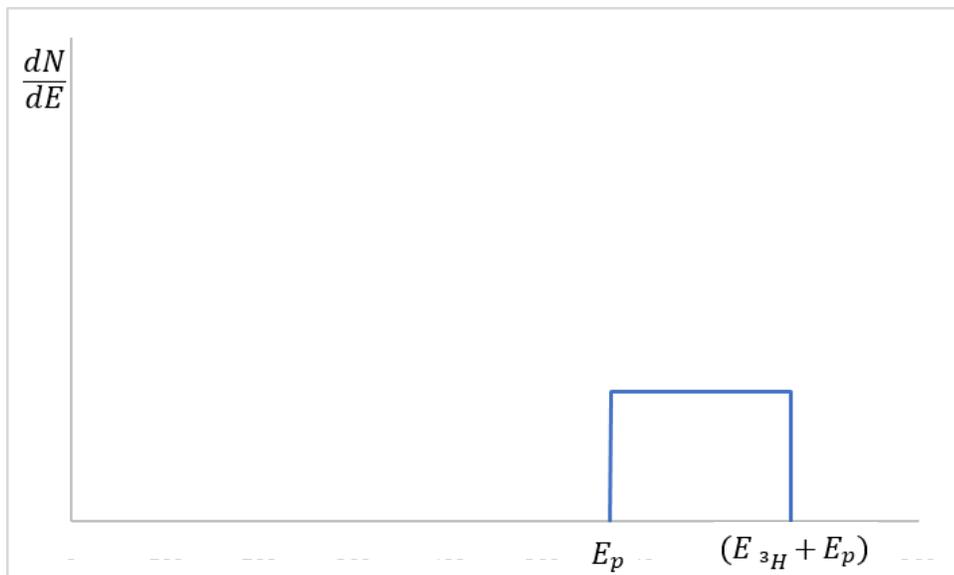


Figura 6-4 – Caso 2.

La distribuzione della deposizione combinata di energia di tutti gli eventi è data dalla somma delle due distribuzioni e del full energy peak relativo al caso in cui i prodotti di reazione non colpiscono le pareti e vengano totalmente assorbiti nel gas (Fig.6-5).

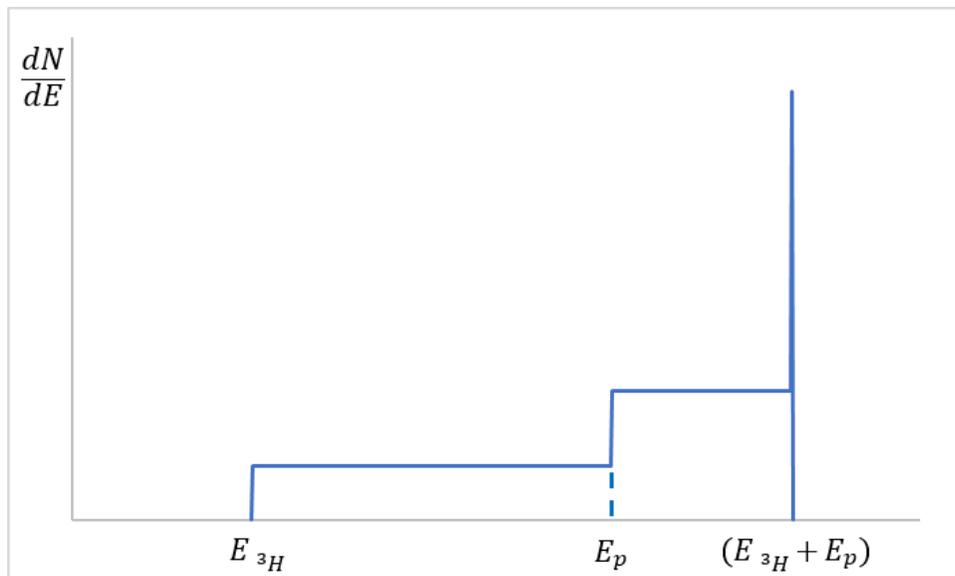


Figura 6-5 – Distribuzione complessiva.

Lo spettro atteso per un tubo di comuni dimensioni è mostrato in Fig.6-6.

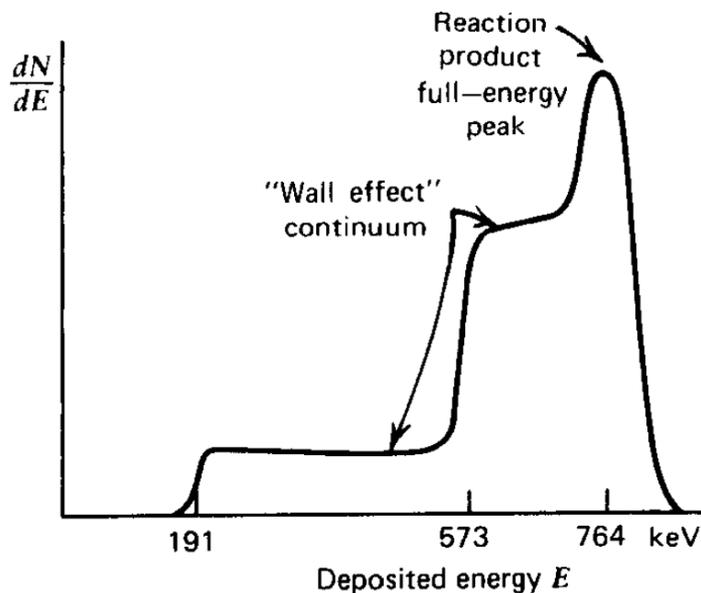


Figura 6-6 – Spettro atteso per un tubo a  $^3\text{He}$  (44).

Il continuum dovuto all'effetto parete comporta la riduzione del range di tensione in corrispondenza del quale esiste un accettabile *counting plateau* e un peggioramento nella

capacità di discriminazione degli impulsi di bassa ampiezza legati a interazioni gamma. I contatori proporzionali a  $^3\text{He}$  sono infatti solitamente accoppiati ad un dispositivo di conteggio con una fissata soglia di discriminazione. Gli impulsi per poter essere registrati devono superare tale soglia che deve essere opportunamente impostata in modo da permettere la discriminazione dei segnali legati a eventi neutronici dai segnali legati a eventi gamma. Esistono due modalità con cui caratterizzare un rivelatore di questo tipo al fine di ottenere una corretta discriminazione:

1. Fissare la tensione di alimentazione e il guadagno di amplificazione e variare la soglia di discriminazione;
2. Fissare la soglia di discriminazione e variare la tensione di alimentazione o il guadagno di amplificazione.

### ***6.1 Fissare la tensione di alimentazione e il guadagno di amplificazione e variare la soglia di discriminazione***

Si consideri la generica distribuzione differenziale delle altezze di impulso riportata in Fig.6-7a. Nel caso in esame si avrà lo spettro di Fig.6-6 in luogo del full energy peak e nella zona delle ampiezze di impulso più basse unitamente al rumore si avrà il contributo degli eventi causati dalle interazioni gamma. In Fig.6-7b è riportata la corrispondente distribuzione integrale delle altezze di impulso, in cui l'ordinata rappresenta il numero di impulsi la cui ampiezza supera il valore dell'ascissa H.

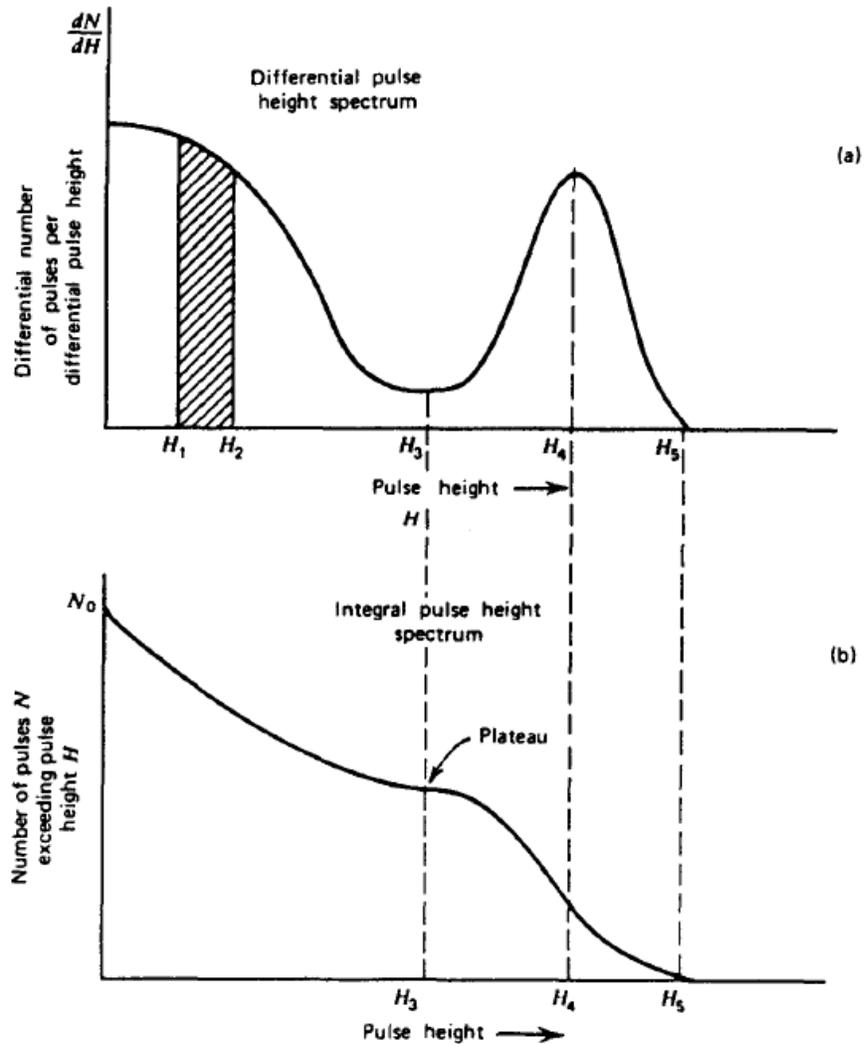


Figura 6-7 – Esempio di distribuzione differenziale (a) e integrale (b) delle altezze di impulso (44).

Assumendo di poter variare la soglia di discriminazione  $H_d$  tra 0 e  $H_5$ , possono essere condotte diverse misure registrando il numero di impulsi misurati per unità di tempo al variare di  $H_d$ . Questa serie di misure rappresenta una determinazione sperimentale della distribuzione integrale delle altezze di impulso, i conteggi misurati devono dunque coincidere con i punti della curva in Fig.6-7b. Nel settaggio di un sistema di misura è spesso desiderabile stabilire un punto di funzionamento che possa fornire la massima stabilità nell'arco di un lungo periodo di tempo. Per esempio, all'atto pratico sono prevedibili piccole oscillazioni del valore impostato di  $H_d$  e si vuole dunque stabilire delle condizioni in cui queste oscillazioni abbiano la minima influenza sui conteggi misurati.

Nel caso in esame tali condizioni sono realizzabili impostando il valore di soglia pari a  $H_3$ . Infatti, in corrispondenza di tale valore la pendenza della distribuzione integrale è minima e piccoli cambiamenti del livello di soglia impostato hanno un minimo impatto sul numero totale di impulsi registrati. In generale, le regioni di minima pendenza nella distribuzione integrale sono chiamate *counting plateau* e rappresentano le aree di funzionamento in cui è raggiunta la minima sensibilità alle oscillazioni del livello di discriminazione. È da notare che le regioni di minima pendenza nella distribuzione integrale corrispondono alle regioni di minimo nella distribuzione differenziale.

### ***6.2 Fissare la soglia di discriminazione e variare la tensione di alimentazione o il guadagno di amplificazione***

In Fig.6-8 sono riportate le distribuzioni differenziali delle altezze di impulso per tre diversi valori di tensione di alimentazione o guadagno di amplificazione, avendo mantenuto fisso il valore della soglia di discriminazione. Il termine *gain* in figura rappresenta il rapporto tra l'ampiezza di tensione per un dato evento nel rivelatore e la stessa ampiezza prima che un parametro tra guadagno di amplificazione o tensione di alimentazione sia cambiato. Nell'esempio mostrato in Fig.6-8 per un guadagno  $G=1$  nessun conteggio viene registrato perché tutti gli impulsi hanno ampiezza inferiore a  $H_d$ , per un guadagno  $G=2$  qualche impulso comincia ad essere registrato. È possibile allora condurre un esperimento in cui il numero degli impulsi registrati è misurato come funzione del guadagno applicato. La curva così costruita prende il nome di *counting curve* ed è riportata in Fig.6-8. Impostando un valore di guadagno nel punto medio del *plateau* (in questo caso  $G=3$ ) la soglia di discriminazione  $H_d$  risulta passare per il minimo della distribuzione differenziale garantendo la massima stabilità della misura nel tempo. (44)

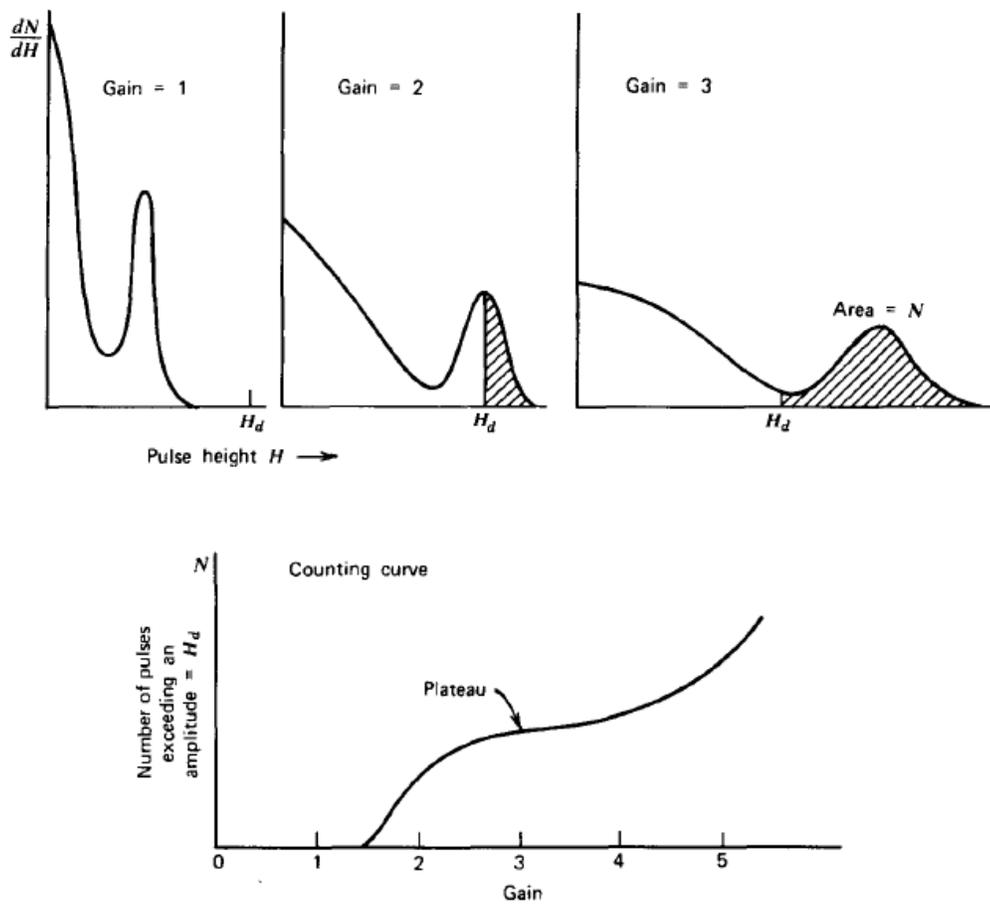


Figura 6-8 – Esempio di counting curve generata variando la tensione di alimentazione o il guadagno di amplificazione (44).

### 6.3 Caratterizzazione sperimentale dei rivelatori

La sorgente utilizzata per la caratterizzazione è la PIDIE7 (45) che al momento delle misure presentava le seguenti caratteristiche:

Tabella 6-1 – Caratteristiche della sorgente PIDIE7.

Isotopo	Composizione isotopica	Massa [g]	Resa da fissione spontanea [n/s]	Resa da ( $\alpha,n$ ) [n/s]	Resa totale [n/s]
Pu-238	0.0106	0.0044	11.3973	58.9668	70.3641
Pu-239	0.6539	0.2726	0.0055	10.3584	10.3639
Pu-240	0.2694	0.1123	114.5461	15.8343	130.3804
Pu-241	0.0167	0.0070	0.0003	0.0091	0.0094
Pu-242	0.0494	0.0206	35.4011	0.0412	35.4423
Am-241	0.0858	0.0358	-	96.2306	96.2306
				<b>Resa totale</b>	<b>342.7906</b>



Figura 6-9 – Moduli compatti di monitoraggio neutronico PDT10A.

I rivelatori sono connessi direttamente a moduli compatti di monitoraggio neutronico PDT10A (46), costituiti da un preamplificatore, un amplificatore, un circuito di *wave shaping* e un discriminatore.

Ogni modulo, di cui è riportata un'immagine in Fig.6-9, produce un segnale TTL in uscita per ogni evento rivelato che supera la soglia del discriminatore, tali segnali vengono opportunamente registrati da un modulo di elettronica. È presente inoltre su ogni modulo PDT10A un pin di monitoraggio analogico che permette di monitorare gli eventi amplificati. Utilizzando un analizzatore multicanale è stato

possibile connettendosi a tale pin ricostruire la distribuzione differenziale delle altezze di impulso per ciascun rivelatore.

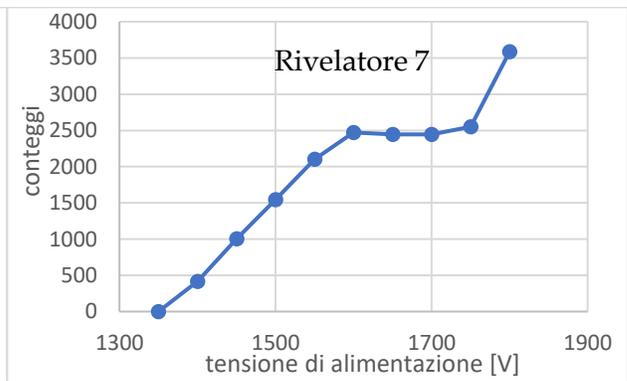
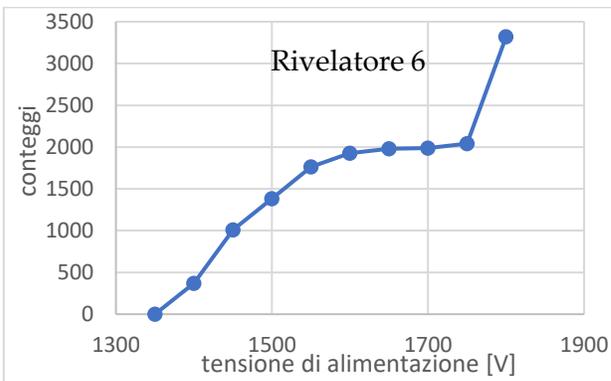
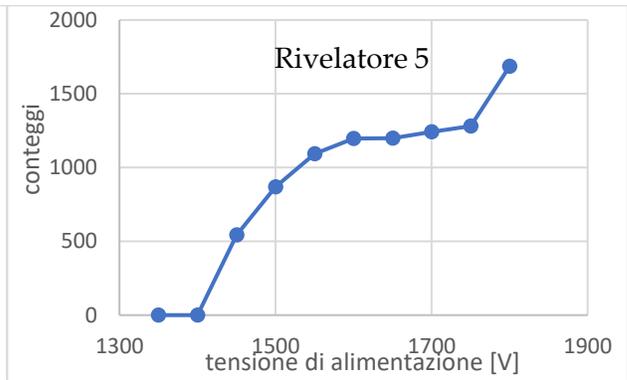
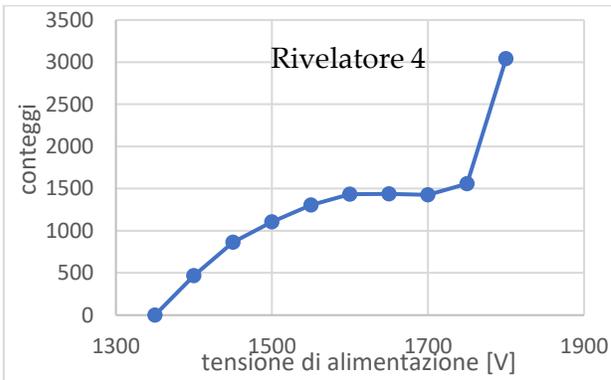
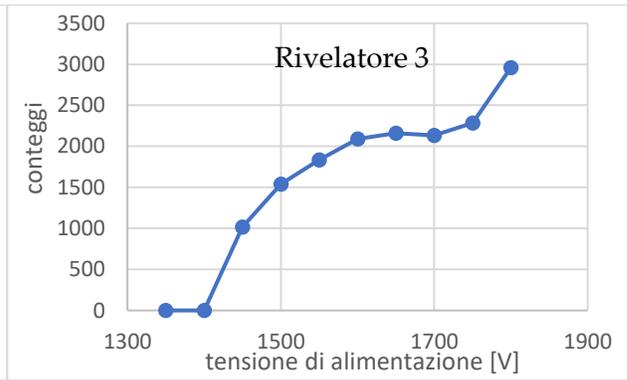
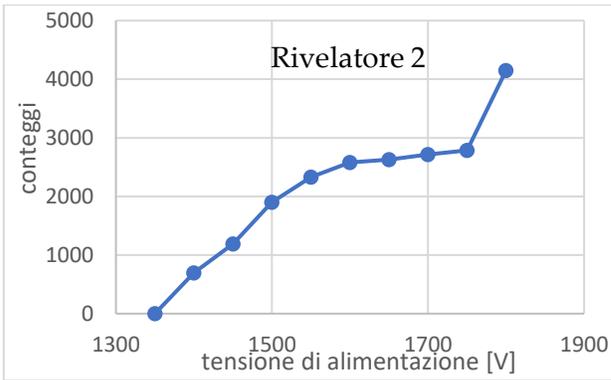
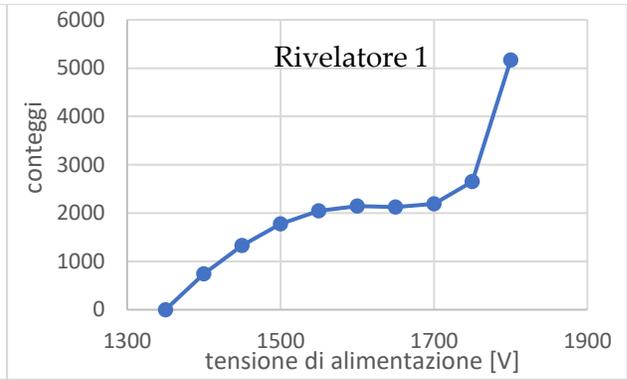
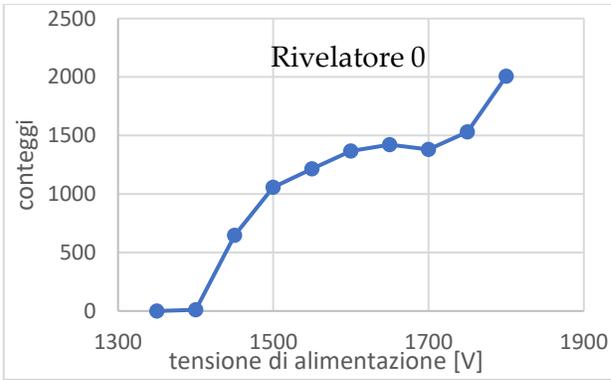
La caratterizzazione dei rivelatori è avvenuta in due fasi:

- nella prima fase utilizzando i conteggi provenienti dai segnali TTL sono state ricostruite le *counting curve* al variare della tensione di alimentazione ed è stata scelta per ciascun rivelatore la tensione ottimale di alimentazione;
- nella seconda fase invece, fissando la tensione di alimentazione al valore ottimale ricavato nella fase 1, è stata acquisita la distribuzione differenziale delle altezze di impulso per ciascun rivelatore al fine di escludere la parte dello spettro non imputabile agli eventi indotti da neutroni, calcolare in modo alternativo il rateo di conteggio registrato dai rivelatori e verificare il risultato ottenuto nella prima fase.

### **6.3.1 Fase 1: costruzione delle *counting curve***

La costruzione delle *counting curve* è stata realizzata per un blocco di rivelazione alla volta.

1. la sorgente è stata posizionata di fronte al rivelatore centrale di ciascun blocco di polietilene ad una quota pari a metà altezza del blocco stesso;
2. si sono effettuate 13 misure da 10 minuti ciascuna, una per ogni valore di tensione di alimentazione scelto nell'intervallo 1200V – 1800V a partire da 1200 V e aumentando di 50V di misura in misura.
3. sono stati registrati in contemporanea per ciascun rivelatore i conteggi provenienti dai segnali TTL in uscita dai moduli PDT10A relativi agli eventi che hanno causato un segnale di ampiezza superiore alla soglia del discriminatore. In Fig.6-10 sono riportate le *counting curve* relative ai 10 rivelatori.



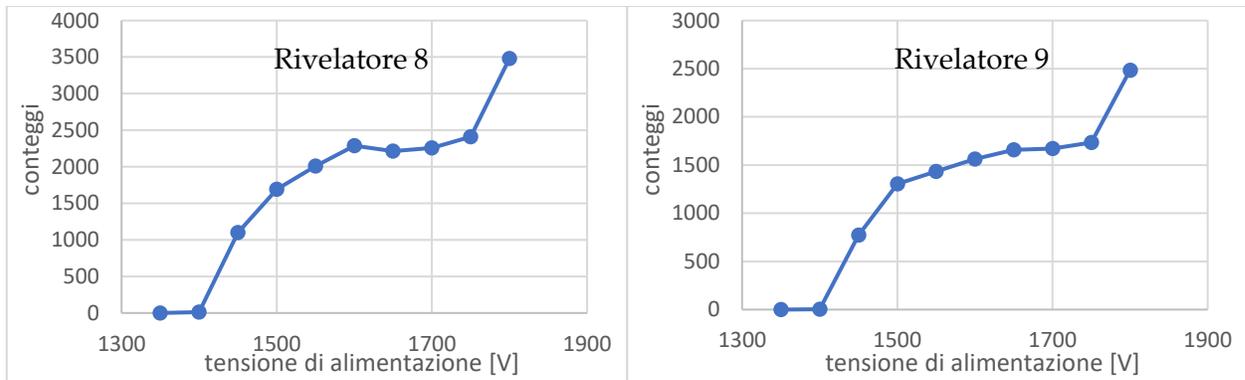


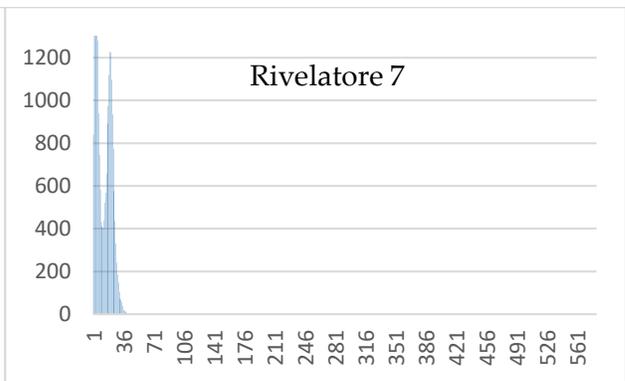
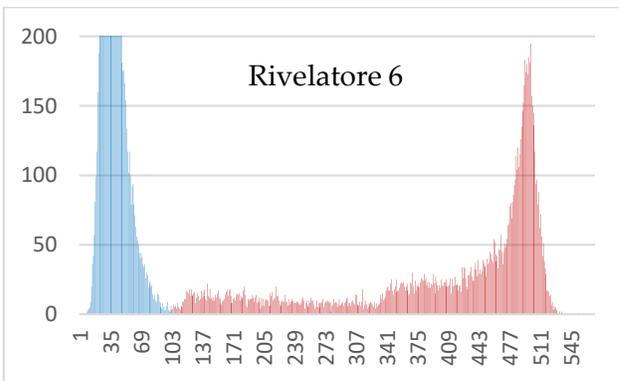
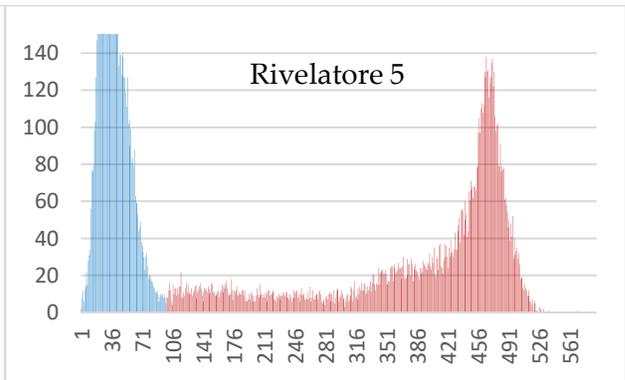
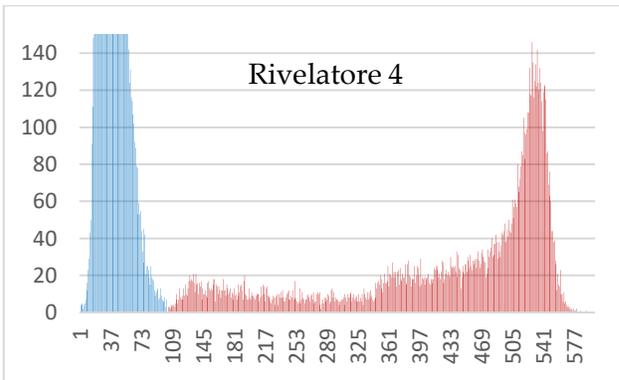
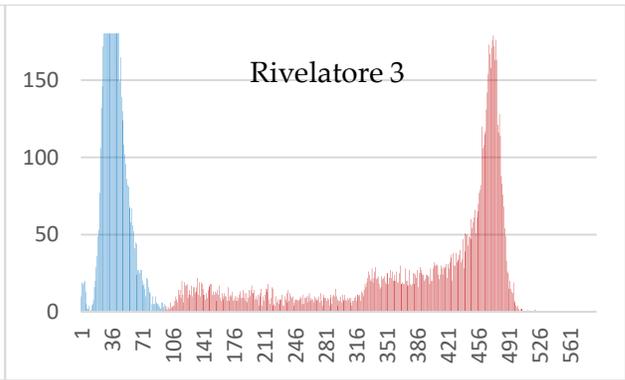
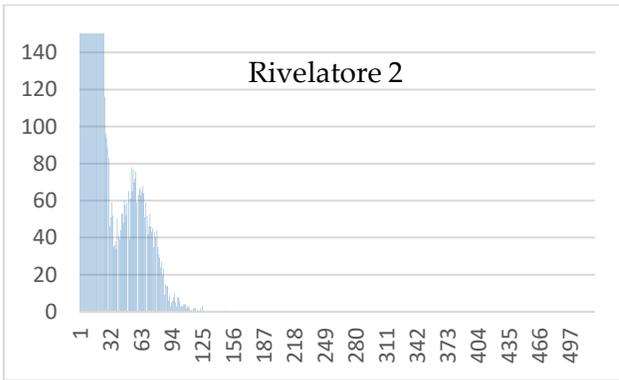
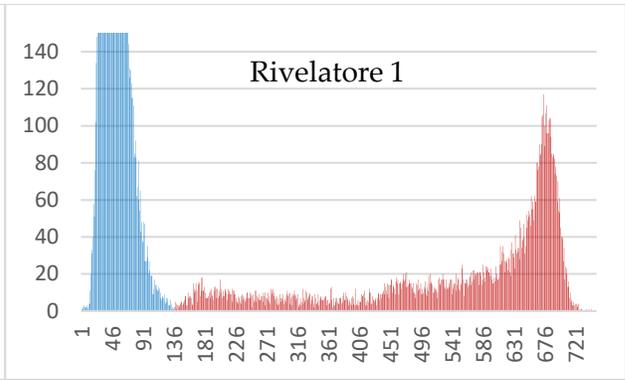
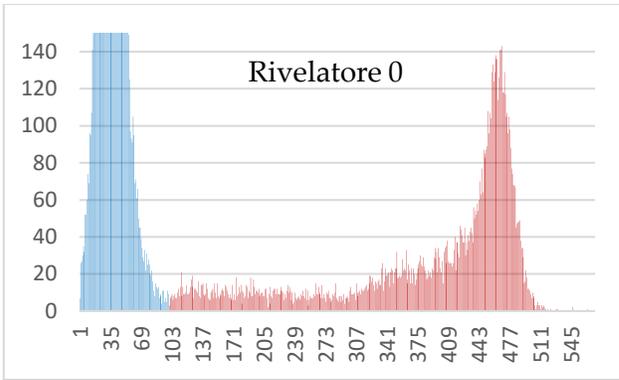
Figura 6-10 – Counting curve per i 10 rivelatori.

Dall'analisi dei dati ottenuti si è scelta una tensione di alimentazione ottimale di 1680V per tutti i rivelatori. Tale valore di tensione, compreso all'interno dei *plateau* delle curve di conteggio, conferisce stabilità al sistema di rivelazione rispetto alle possibili oscillazioni nel valore di tensione di alimentazione stesso e nel valore della soglia impostata nel discriminatore interno ai moduli PDT.

### 6.3.2 Fase 2: verifica mediante l'acquisizione degli spettri di energia depositata nei rivelatori

Per verificare che alla tensione ottimale di alimentazione corrisponda un corretto posizionamento della soglia del discriminatore rispetto alla distribuzione differenziale delle altezze di impulso si è proceduto nel modo seguente:

1. la sorgente è stata posizionata di fronte ad un rivelatore alla volta ad una quota pari a metà altezza del blocco stesso;
2. è stata acquisita per ciascun rivelatore la distribuzione differenziale delle altezze di impulso per un tempo pari a 1800s. In Fig.6-11 sono riportati i risultati delle misure per i 10 rivelatori.



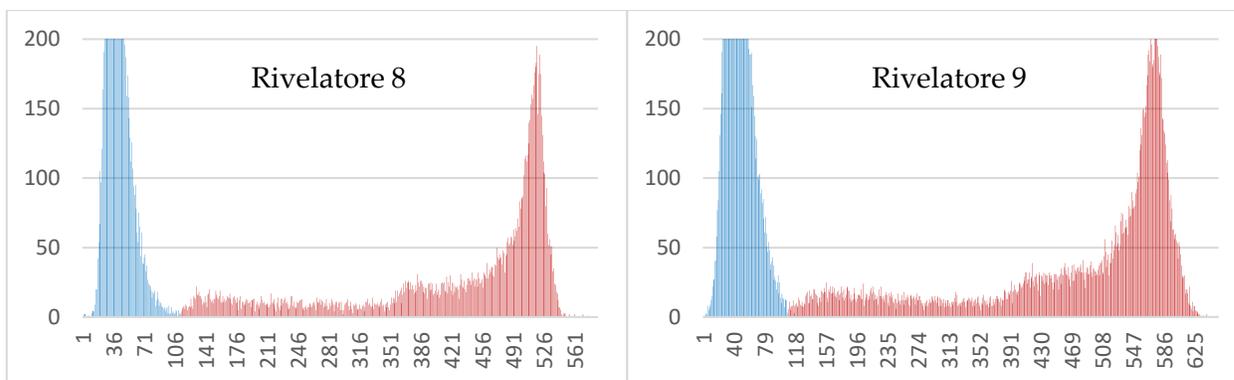


Figura 6-11 – Distribuzione differenziale delle altezze di impulso per i 10 rivelatori.

Osservando i risultati, è possibile notare che per i rivelatori 2 e 7 gli spettri hanno andamento diverso da quello atteso. Per tale motivo si è scelto di non utilizzarli.

3. Per i rivelatori rimanenti è stata calcolata l'area sottesa alla distribuzione fissando la soglia di discriminazione nel punto di minimo dello spettro (in rosso in Fig.6-11). In Tab.6-2 è riportato il confronto tra i risultati ottenuti nella fase 1 e nella fase 2.

Tabella 6-2 – Confronto tra i risultati ottenuti nella fase 1 e nella fase 2.

Rivelatore	Rateo registrato con PDT (fase 1)	Rateo calcolato dallo spettro (fase 2)
0	5.55±0.10	5.58±0.06
1	5.71±0.10	5.72±0.06
3	5.09±0.13	5.09±0.05
4	6.10±0.14	6.13±0.06
5	5.81±0.14	5.79±0.06
6	4.57±0.12	4.76±0.08
8	6.12±0.14	6.19±0.06
9	4.96±0.09	4.84±0.04

Dal confronto è possibile stabilire che la scelta della tensione ottimale di alimentazione coincide con il posizionamento corretto della soglia di discriminazione nel punto di minimo dello spettro. Ciò è confermato dalla Fig.6-12 in cui è evidente la sovrapposizione tra i risultati ottenuti nelle due fasi di caratterizzazione dei rivelatori.

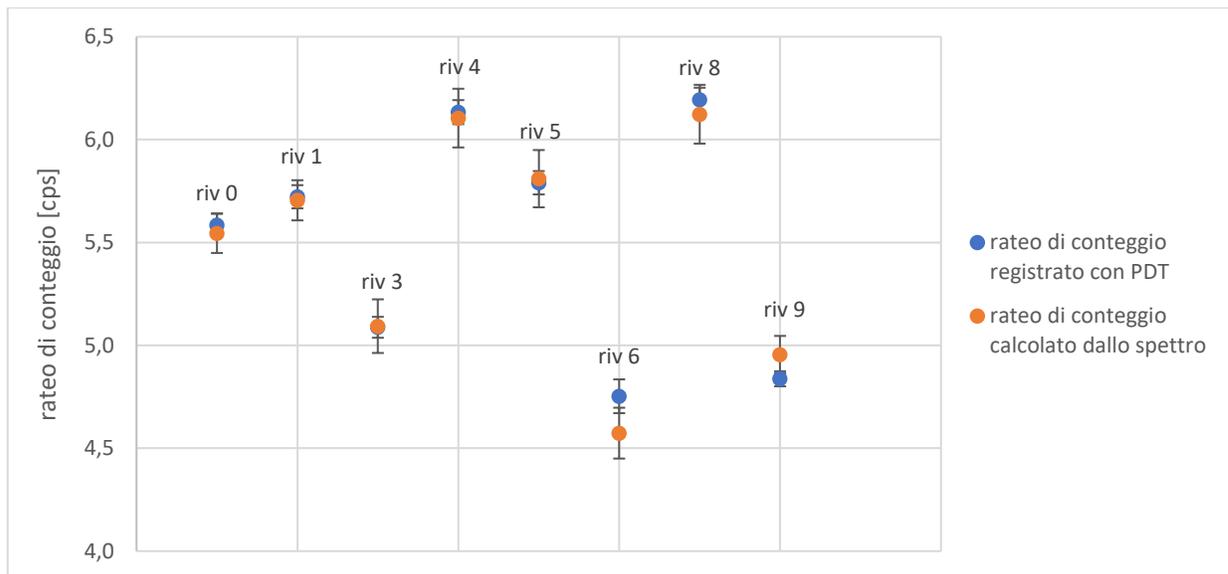


Figura 6-12 – Confronto tra i risultati ottenuti nella fase 1 e nella fase 2.

## 7. Messa a punto dello script

Un'analisi DDAA, sebbene possa apparire concettualmente semplice, nella sua esecuzione sperimentale nasconde notevoli complicazioni pratiche legate alle tempistiche di registrazione del segnale, il cosiddetto "treno d'impulsi". Le elevate frequenze in gioco, da diversi kHz a qualche MHz, richiedono che gli impulsi TTL provenienti dai rivelatori abbiano durate inferiori a 0.5  $\mu$ s e che l'elettronica di acquisizione abbia una capacità di discriminazione temporale sufficientemente alta a distinguere gli impulsi in rapida successione, nonché possibilità di registrarli riducendo i tempi morti al minimo.

A seguito della registrazione del treno d'impulsi, salvato in termini di date di arrivo degli impulsi su un opportuno file di testo, è necessario effettuare l'analisi dei dati e ricostruire le curve tipiche del metodo.

Pertanto, in seguito alla caratterizzazione del generatore di neutroni e dei rivelatori, si è proceduto con la messa a punto di uno script, realizzato in ambiente Matlab, per l'elaborazione dei dati acquisiti mediante il sistema elettronico connesso ai rivelatori.

Come già accennato, i rivelatori sono connessi direttamente a moduli compatti di monitoraggio neutronico PDT10A, costituiti da un preamplificatore, un amplificatore, un circuito di *wave shaping* e un discriminatore. Ogni modulo produce un segnale TTL in uscita per ogni evento rivelato che supera la soglia del discriminatore; tali segnali vengono forniti in ingresso a un circuito *Time Interval Analyzer* (TIA) (47).

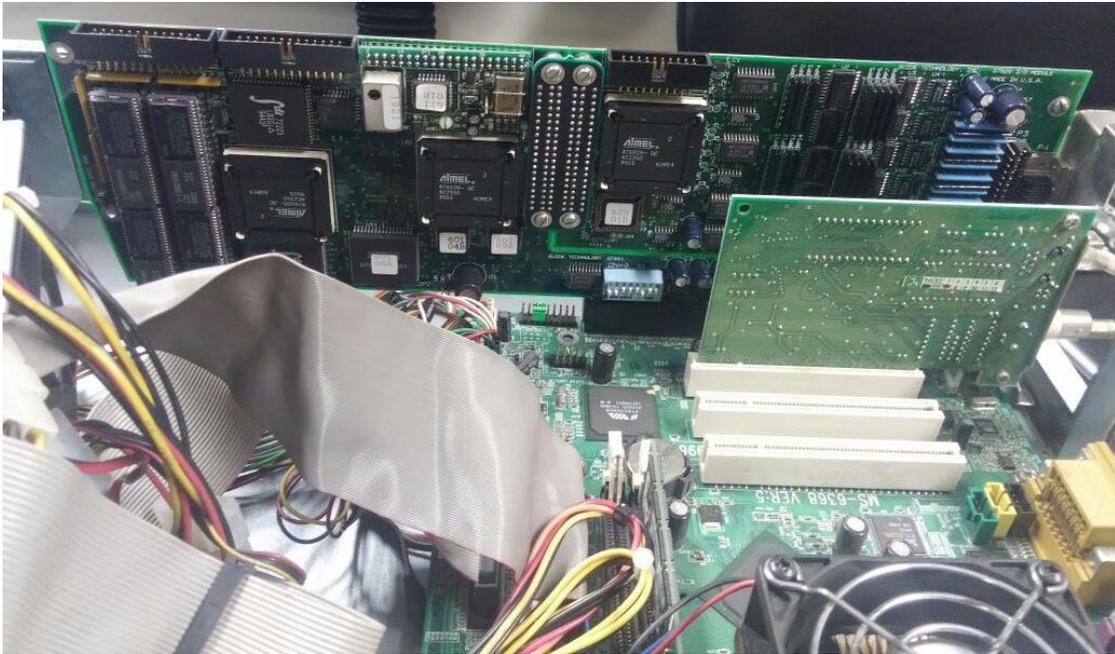


Figura 7-1 – Time Interval Analyzer.

Quest'ultimo strumento registra ad altissima velocità e frequenza impulsi nell'ordine di milioni di conteggi al secondo. Le prestazioni di velocità e frequenza sono fortemente connesse al tipo di processore montato sul computer connesso alla scheda. Il software fornito con la scheda produce un file di testo contenente le date di arrivo degli impulsi registrati. Tale file costituisce il punto di partenza dello script realizzato *ad hoc* il cui fine ultimo è la ricostruzione delle curve DDAA.

Prima di spiegare il principio di funzionamento dello script, sono necessarie alcune considerazioni sulla natura dei dati da analizzare.

Il generatore di neutroni viene operato in modalità pulsata, in particolare si è scelto di utilizzare una frequenza di 500 Hz e un duty factor pari a 0.1. Ciò significa che ogni ciclo di funzionamento del generatore ha la durata di 2 ms e all'interno di ciascun ciclo i neutroni sono prodotti esclusivamente in un intervallo iniziale di 200  $\mu$ s, mentre nei restanti 1800  $\mu$ s non vi è generazione di neutroni.

La scelta della frequenza corrisponde al valore minimo utilizzabile 250 Hz, ciò è motivato dalla volontà di non sovraccaricare l'elettronica in termini di rateo di conteggi registrato.

La scelta del duty factor invece è basata sui dati ottenuti dalla simulazione: i 1800  $\mu\text{s}$  successivi alla fine dell'impulso di neutroni sono infatti necessari a portare ad una diminuzione del numero di conteggi registrati ad un livello comparabile al fondo neutronico rendendo il sistema completamente disponibile per un nuovo ciclo di interrogazione, evitando così la sovrapposizione di segnale dovuta a cicli contigui.

Per quanto concerne l'analisi dei dati, la sequenza delle date di arrivo prodotta dalla scheda TIA deve essere analizzata al fine di individuare l'andamento complessivo del segnale registrato nel tempo. In particolare, se si suddivide il periodo di 2 ms in opportuni intervalli di tempo, per esempio di 50  $\mu\text{s}$ , si ottiene un certo numero di bin temporali per ciclo, nel caso in esame 40 bin. Catalogando le date di arrivo dei segnali TTL in tali bin si ottiene un certo numero di conteggi per ciascun bin temporale e un certo andamento del segnale registrato in funzione del tempo per ciascun ciclo del generatore. In condizioni ideali la frequenza dei singoli impulsi così prodotti e associati a ciascun ciclo è costante e perfettamente uguale a 500 Hz, i singoli impulsi sono inoltre identici, come riportato in Fig.7-2.

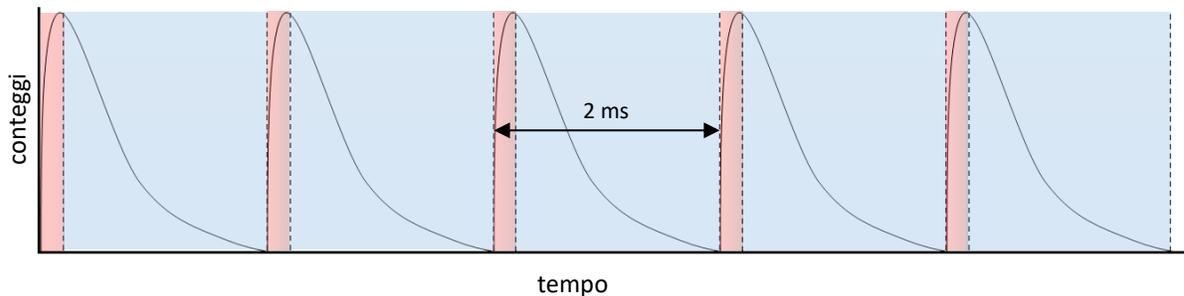


Figura 7-2 – Andamento degli impulsi associati a ciascun ciclo in condizioni ideali: in rosso è indicata la fase di produzione dei neutroni di interrogazione (200  $\mu\text{s}$ ), in blu la fase in cui non vengono prodotti neutroni destinata esclusivamente alla misura (1800  $\mu\text{s}$ ).

Quindi, se il treno è costituito da un determinato numero  $N$  di cicli e di corrispondenti impulsi, ciascuno catalogato in un numero  $n$  di bin, è possibile sommare gli  $N$  contributi corrispondenti all' $i$ -esimo bin ( $i=1, \dots, n$ ) di ciascun ciclo per ottenere così un unico impulso, chiamato *impulso somma*, rappresentativo dell'intero treno di impulsi. Esso riporterà l'andamento dei conteggi somma registrati in ciascun  $i$ -esimo bin.

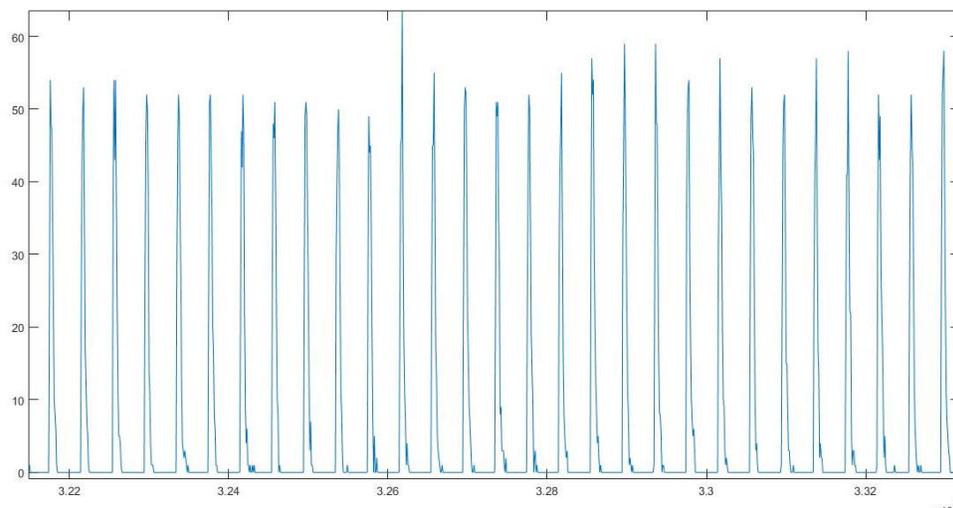
Il software messo a punto per l'analisi dei dati sperimentali opera in linea di principio come esposto sopra, tenendo però in considerazione il fatto che il treno di impulsi registrato non presenta un comportamento sovrapponibile a quello ideale. In particolare, la frequenza degli impulsi associati a ciascun ciclo non è perfettamente costante a causa di fenomeni fisici che si verificano all'interno del generatore. La sorgente ionica del sistema è infatti guidata da un interruttore a stato solido comandato da un impulso elettrico. L'ampiezza dell'impulso neutronico è sempre inferiore rispetto a quella dell'impulso elettrico a causa del ritardo necessario all'accensione della sorgente ionica. Per esempio, se il sistema è settato per una frequenza di 10 kHz e un duty factor del 10% con una corrente di fascio approssimativamente di 50  $\mu\text{A}$ , l'impulso elettrico avrà ampiezza 10  $\mu\text{s}$  ( $1/\text{frequenza} \cdot \text{duty factor}$ ) mentre l'impulso neutronico sarà approssimativamente di durata 6  $\mu\text{s}$ . Tali informazioni sono riportate nel manuale del generatore di neutroni [5].

Non potendo fissare una frequenza costante, è necessario quindi che il software sia in grado di individuare da solo l'inizio di ciascun impulso per operare poi la somma dei singoli impulsi al fine di generare l'*impulso somma*. Poiché ciascun impulso è caratterizzato da un certo numero di bin successivi tutti "popolati" (corrispondenti alla fase di *beam on* del generatore) e un certo numero, circa un ordine di grandezza superiore, di bin "non popolati" o "popolati" in modo alternato, si chiede al software di identificare il gruppo di bin successivi tutti "popolati" e di memorizzare il primo bin di tale gruppo all'interno di un vettore che conterrà tutti i bin corrispondenti all'inizio di ciascun impulso.

Poiché i neutroni vengono registrati anche dopo l'impulso d'interrogazione, può verificarsi in alcuni casi che un unico impulso venga visto come due, in tal caso tuttavia la prima porzione di impulso registrerà un numero di conteggi elevato perché relativa alla fase d'interrogazione mentre la seconda registrerà un numero di conteggi nettamente inferiore perché associata alla fase di generatore spento. Per correggere tale fenomeno si escludono allora tutti gli impulsi la cui area sottesa è inferiore a una certa frazione della medesima area relativa al primo impulso. Tale frazione è un parametro che può essere impostato dall'utente.

Di seguito è riportata la sequenza delle operazioni compiute dal software:

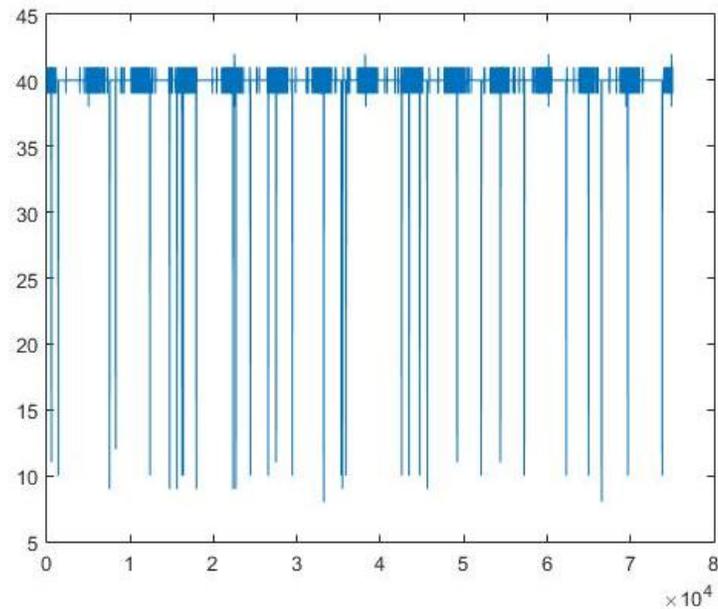
1. inserimento dei dati di input:
  - nome dei due file contenenti le date di arrivo relative alla prova in assenza e in presenza di campione;
  - tempo di misura di ciascuna delle due prove;
  - frequenza del generatore per ciascuna delle due prove;
  - ampiezza dei bin temporali utilizzati per la conversione della sequenza delle date di arrivo (il treno di impulsi) nelle curve DDAA;
  - frazione dell'area sottesa al primo impulso utilizzata per correggere il criterio di identificazione dell'inizio di ciascun impulso;
2. conversione della sequenza delle date di arrivo registrate nella prova in assenza di campione in un treno di impulsi, mediante definizione di un numero di bin temporali in cui suddividere ciascun ciclo del generatore;
3. visualizzazione del treno di impulsi relativo alla prova in assenza di campione:



*Figura 7-3 – Porzione di un treno di impulsi.*

4. implementazione del criterio necessario per l'individuazione dell'inizio di ciascun impulso;

5. plot della distanza tra l'inizio di impulsi successivi per visualizzare la variazione della frequenza precedentemente alla correzione del criterio di identificazione dell'inizio di ciascun impulso (in condizioni ideali tale distanza sarebbe costante);



*Figura 7-4 – Esempio della funzione distanza tra l'inizio di impulsi successivi precedentemente alla correzione: è possibile notare come in corrispondenza degli impulsi che sono considerati erroneamente come doppi la distanza tra impulsi successivi risulta inferiore.*

6. correzione del criterio per l'individuazione dell'inizio di ciascun impulso;
7. plot della distanza tra l'inizio di impulsi successivi per visualizzare la variazione della frequenza (in condizioni ideali tale distanza sarebbe costante) e l'efficacia della correzione;

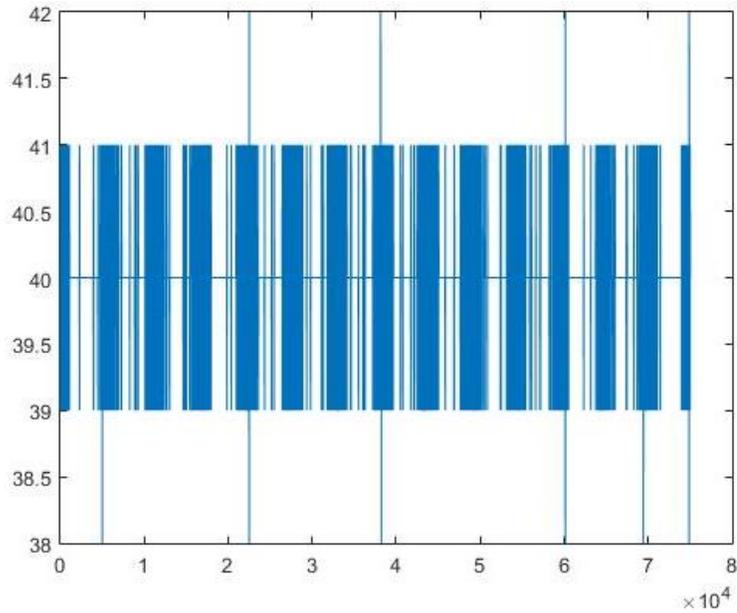
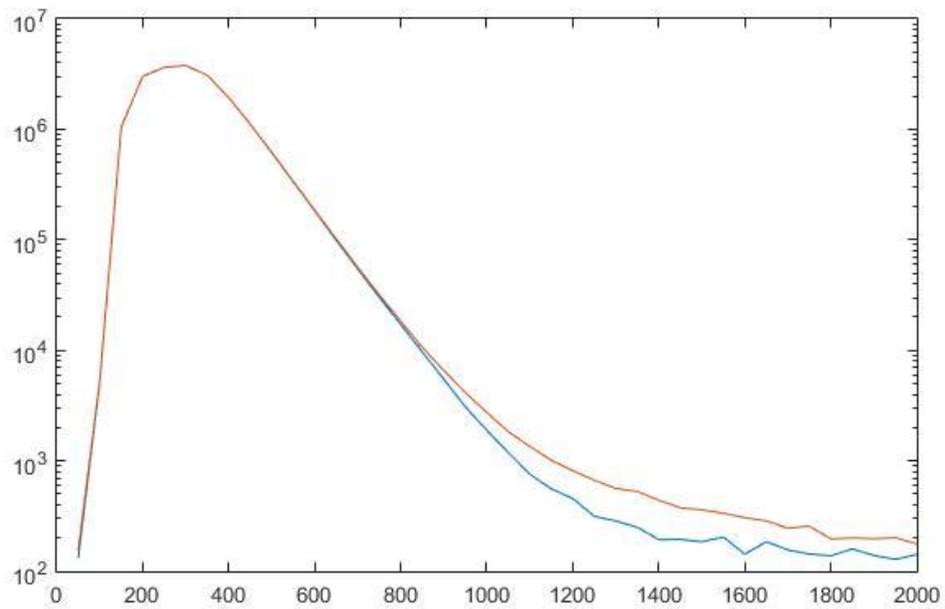


Figura 7-5 – Esempio della funzione distanza tra l’inizio di impulsi successivi in seguito alla correzione: oltre all’efficacia della correzione si nota come tale valore non sia costante ma oscilli attorno ad un valore medio.

8. costruzione dell’*impulso somma* relativo alla prova in assenza di campione;
9. ripetizione dei punti da 1 a 7 per i dati sperimentali relativi alla prova in presenza del campione;
10. plot dei due *impulsi somma* in scala logaritmica.



*Figura 7-6 – Plot dei due impulsi somma relativi al caso in assenza di campione (curva blu) e al caso in presenza del campione (curva rossa).*

Lo script qui descritto, prima della sua applicazione sperimentale alla DDAA è stato testato e qualificato con treni d'impulsi sintetici costruiti artificialmente attraverso un Arbitrary Function Generator Tektronix AFG3011C. Fornendo in input all'elettronica di acquisizione il segnale noto prodotto da tale generatore di funzioni, si è studiata la capacità di riproduzione delle curve DDAA attese, potendo quindi correggere passo passo l'algoritmo ad ogni stadio della sua realizzazione.

## 8. Campagne sperimentali

A seguito della messa a punto degli strumenti hardware e software per l'implementazione della tecnica DDAA, si è dato inizio a diverse prove sperimentali per verificare il corretto funzionamento della strumentazione ed il funzionamento della tecnica.

L'elemento inizialmente mancante, ma poi risolto mediante simulazione Monte Carlo, è stato la configurazione del sistema di moderazione in cui inserire il campione fissile in prova al fine di massimizzare l'efficacia della tecnica ed incrementare –per quanto possibile– il rapporto segnale/rumore, ovvero la distanza fra le curve DDAA in assenza e in presenza di materiale fissile.

In seguito alla prima dimostrazione sperimentale di funzionamento, si sono effettuate diverse campagne di test –prima in simulazione e poi in campo– al fine di alleggerire l'intera struttura e rendere il sistema il più possibile indipendente dal luogo della sua utilizzazione. Si mostreranno, pertanto, le differenti configurazioni implementate in quanto segue.

### 8.1 Prima campagna sperimentale

Il primo setup sperimentale è stato realizzato per la dimostrazione del 29 e 30 settembre 2015 presso il Centro Ricerche ENEA di Frascati, nell'ambito del Progetto EDEN (1), è composto da:

- un generatore di neutroni compatto basato sulla reazione di fusione d-t;
- due lastre di polietilene ad alta densità dotate ciascuna di cinque fori cilindrici per l'alloggiamento dei contatori proporzionali  $^3\text{He}$ ;
- due ulteriori lastre di polietilene ad alta densità disposte in modo tale da creare una configurazione a cavità;
- due fogli di cadmio rivestiti in alluminio per permettere di tagliare il segnale di disturbo proveniente dai neutroni di interrogazione termalizzati;
- una struttura moderante realizzata in risme di carta da  $0.65 \text{ g/cm}^3$  per rallentare i neutroni di interrogazione e massimizzare la sezione d'urto di fissione termica;
- il campione contenente circa 6 g di  $^{235}\text{U}$  dispersi in un sale di uranio depleto.

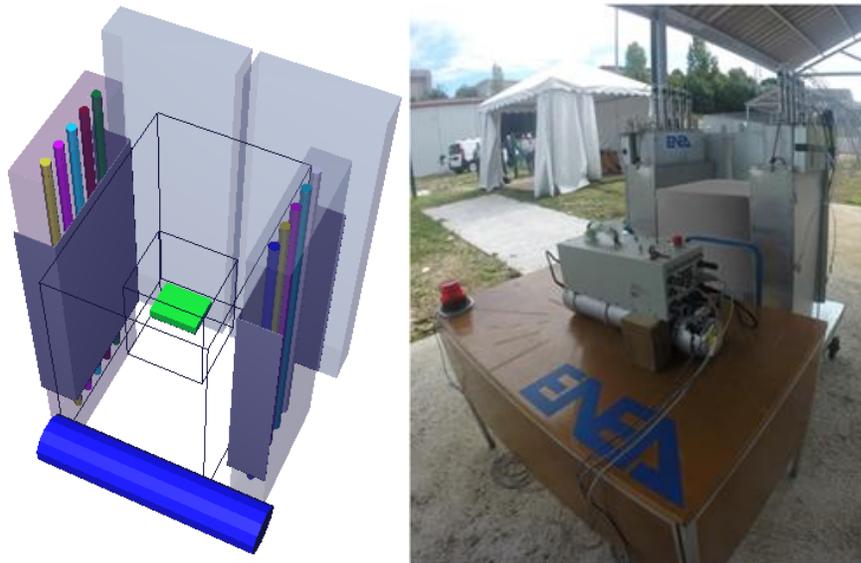


Figura 8-1 – Primo setup sperimentale (a destra) e layout simulato corrispondente (a sinistra): in blu il generatore di neutroni, in grigio le quattro lastre di polietilene, due delle quali contenenti i rivelatori  $^3\text{He}$ , in grigio scuro i due fogli di cadmio, in verde il campione, in trasparente la struttura moderante in carta.

I risultati ottenuti dall'elaborazione dei dati sperimentali sono mostrati in Fig.8-2 e riportano l'andamento logaritmico del segnale registrato dai rivelatori  $^3\text{He}$  nel tempo in casi differenti. Tale andamento è riportato per la misura di *bianco* in blu e per la misura in presenza del campione in rosso: a sinistra è mostrato il caso in cui il campione contiene fissile, a destra il caso in cui il campione è costituito da materiale ferroso.

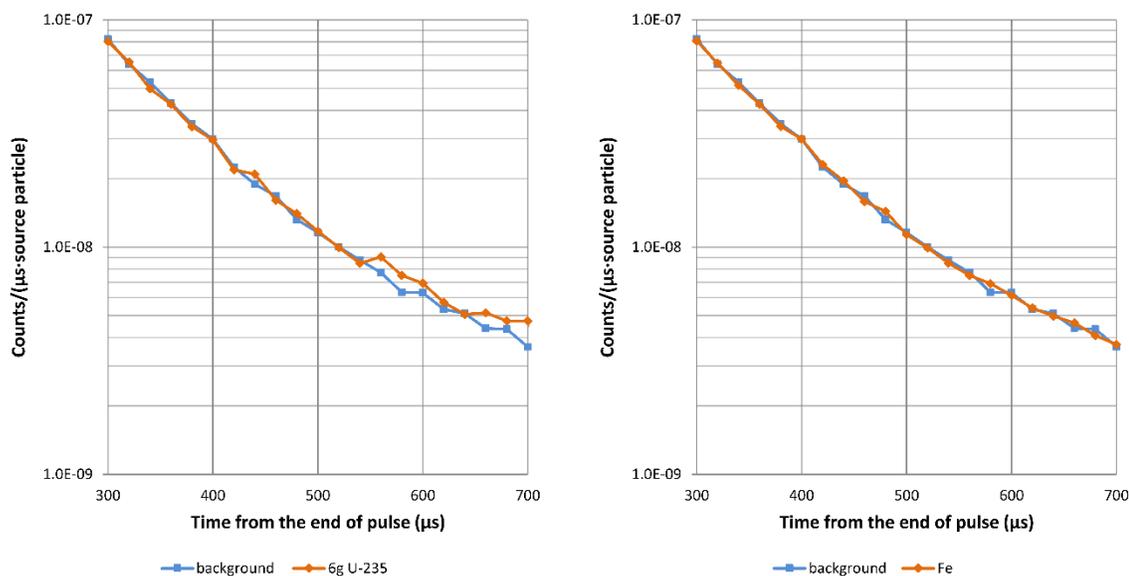


Figura 8-2 – Risultati sperimentali relativi al primo setup testato: a sinistra le curve di DDAA relative ad un campione contenente 6 g di  $^{235}\text{U}$ , a destra le curve di DDAA relative ad un campione “pulito” contenente ferro.

Considerando  $n=8$  bin temporali di ampiezza  $10\ \mu\text{s}$  a partire dall’istante  $t=560\ \mu\text{s}$  in seguito alla fine dell’impulso, è stata calcolata per ogni bin la differenza ( $\Delta B_i$  con  $i=1, \dots, n$ ) tra i conteggi registrati in presenza del campione e quelli registrati in assenza dello stesso. Se  $\Delta B$  è la media dei valori  $\Delta B_i$  e  $\sigma_B$  è la corrispondente deviazione standard della media, la rivelazione di materiale fissile è considerata positiva se  $\Delta B / \sigma_B > 3$  in quanto rappresenta la probabilità che il segnale rivelato non sia casuale con una confidenza del 99%, nell’ipotesi che la serie di misure sia distribuita normalmente.

Nel caso sperimentale in esame, osservando la Fig.8-2 a sinistra, risulta uno scostamento tra la curva di background e la curva in presenza di 6 g di  $^{235}\text{U}$  per  $t > 560\ \mu\text{s}$ , in particolare,  $\Delta B / \sigma_B = 4.3$ . Per quanto concerne invece il caso in cui il campione misurato è ferro, le due curve risultano in pratica sovrapposte e il rapporto  $\Delta B / \sigma_B < 3$ .

La rivelazione del materiale potenzialmente pericoloso è, quindi, positiva. Tuttavia, il confronto qualitativo e quantitativo con i risultati della simulazione mostrati in Fig.8-3 suggerisce da un lato la presenza di fattori peculiari dell’esperimento reale non considerati in simulazione, dall’altro la possibilità di raggiungere mediante ulteriori studi una configurazione sperimentale che migliori nettamente i risultati in campo avvicinandoli a quelli potenziali simulati.

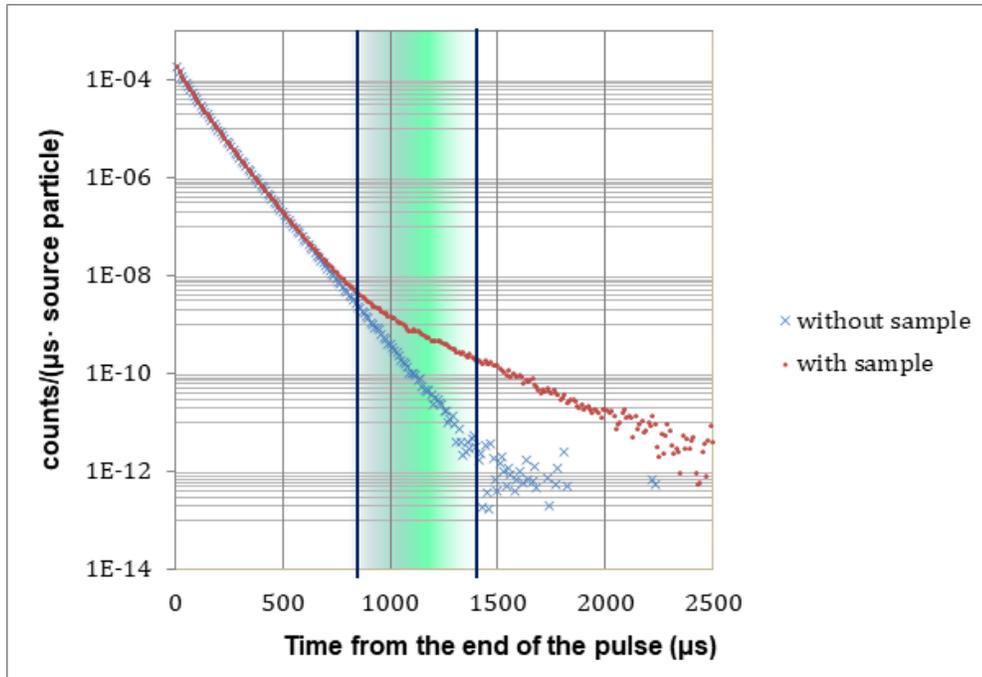


Figura 8-3 – Risultati simulati relativi al primo setup testato: nell’intervallo temporale evidenziato il segnale risulta essere superiore al fondo del 149%.

## 8.2 Individuazione di modifiche migliorative per il dispositivo NAI mediante simulazioni Monte Carlo

I risultati della simulazione mostrati in Fig.8-3 sono relativi al setup sperimentale di Fig.8-1 nell’ipotesi semplificativa in cui il sistema sia collocato in aria libera, in assenza di pareti, soffitto e pavimento. Tale ipotesi era stata avanzata al fine di confrontare in simulazione diversi layout sperimentali indipendentemente dall’ambiente circostante e identificare il più performante facendo uso di una figura di merito definita ad-hoc [3], [4].

Collocando il dispositivo all’interno di una struttura in calcestruzzo di spessore 20 cm e di dimensioni 4 m x 4 m x 3 m, si ottiene in simulazione, nell’intervallo temporale 600 – 1100 μs in seguito alla fine dell’impulso di neutroni, l’andamento mostrato in Fig.8-4, nel quale la discriminazione tra fondo e segnale non è affatto evidente, ci si avvicina pertanto a quanto ottenuto sperimentalmente.

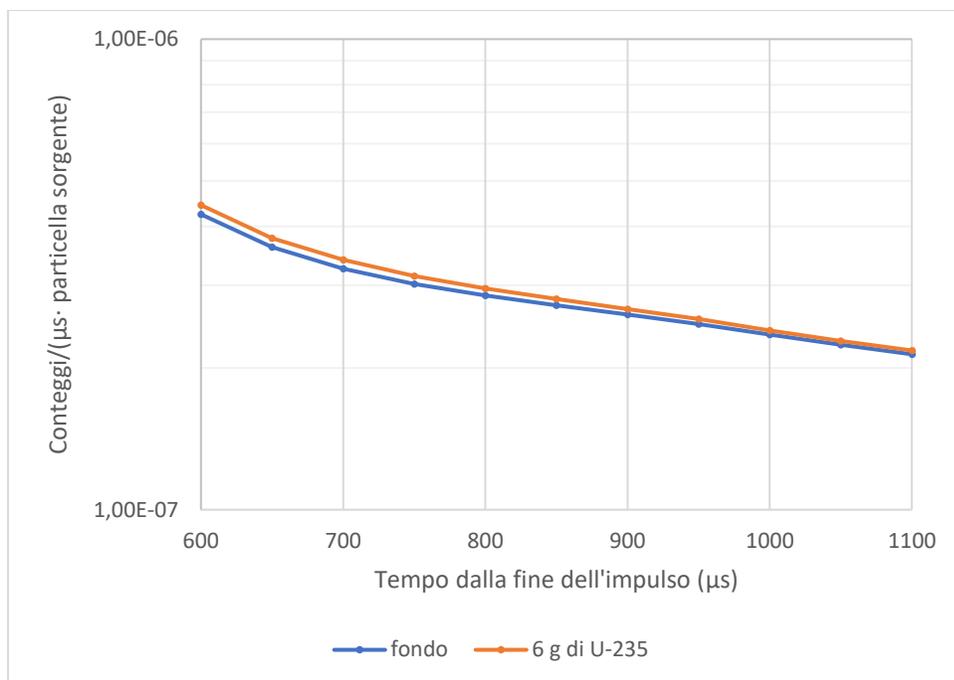


Figura 8-4 – Risultati simulati relativi alla configurazione originaria posta all'interno di una struttura in calcestruzzo.

La ragione di tale risultato è rappresentata dalla configurazione geometrica dei fogli di cadmio. Nella prima versione dell'esperimento infatti, per ragioni logistiche, era disponibile una superficie di cadmio non sufficiente a coprire l'intera superficie esterna dei blocchi in polietilene contenenti i rivelatori. In particolare, come riportato in Fig.8-5, solo una porzione della superficie interna (rispetto alla cavità) e laterale erano coperte da cadmio.



*Figura 8-5 – Configurazione dei fogli di cadmio nella prima campagna sperimentale.*

In tal modo una buona parte dei neutroni veloci di interrogazione, che termalizzano interagendo con i materiali presenti, raggiungono i rivelatori senza essere “filtrati” dal cadmio, costituendo segnale di disturbo per la misura.

Simulando il dispositivo all’interno della medesima struttura in calcestruzzo e circondando con un foglio di cadmio l’intera superficie esterna dei blocchi di polietilene contenenti i rivelatori, si ottiene un andamento del fondo di circa un ordine di grandezza al di sotto di quello associato alla configurazione precedente, come mostrato in Fig.8-6.

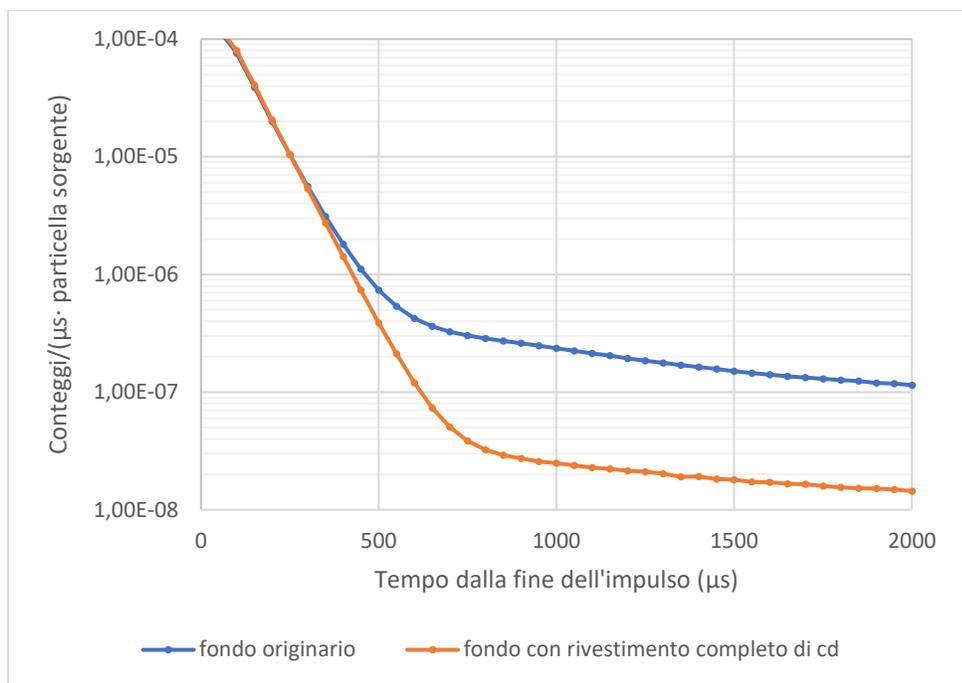


Figura 8-6 – Confronto tra il fondo originario in cui il rivestimento di cadmio dei blocchi di rivelazione era parziale e il fondo con rivestimento completo.

Tale diminuzione del fondo consente una migliore discriminazione del segnale utile. In particolare, in Fig.8-7 sono riportate le curve DDAA, fissando l'attenzione sull'intervallo temporale 600 – 1100 μs in seguito alla fine dell'impulso di neutroni. Confrontando quanto ottenuto nei due casi, con rivestimento parziale di cadmio si ottiene in simulazione un segnale pari a circa il 3% in più rispetto al fondo, con rivestimento completo invece il segnale risulta essere pari al 23% in più.

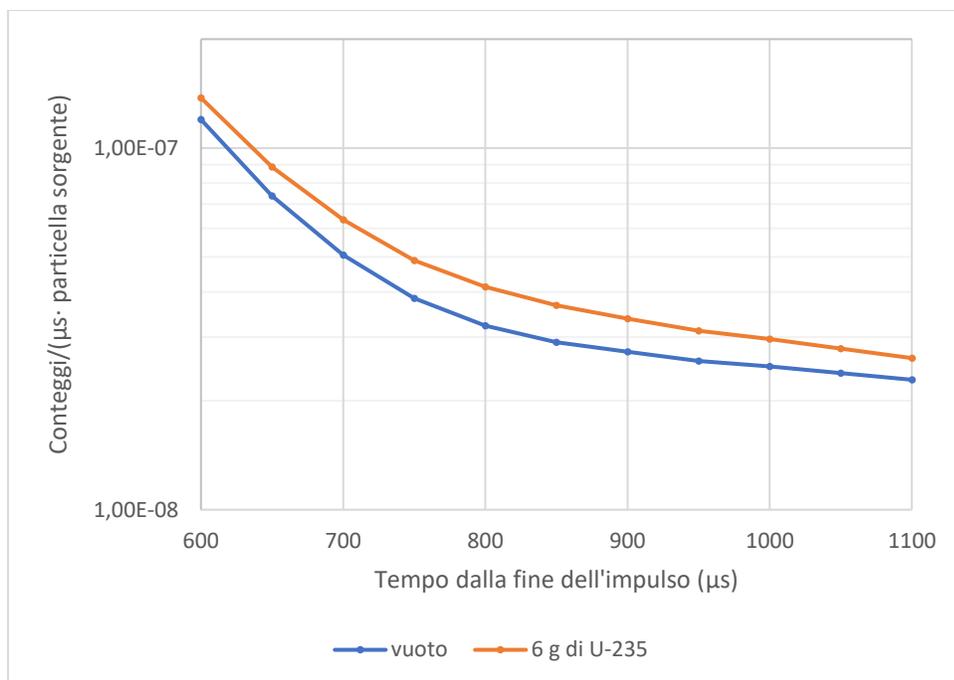
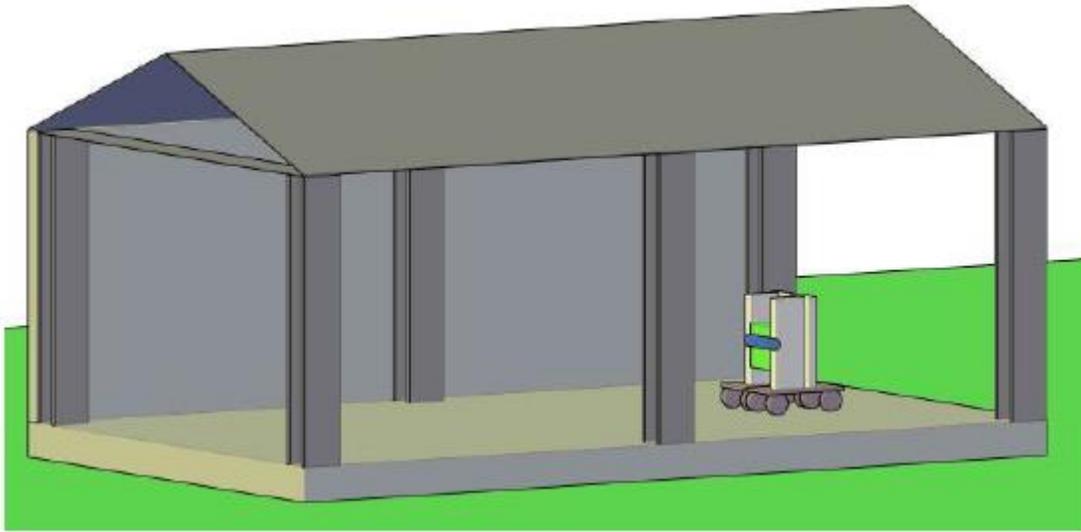


Figura 8-7 – Risultati simulati relativi alla configurazione originaria posta all'interno di una struttura in calcestruzzo con rivestimento completo di cadmio dei blocchi di rivelazione.

Tale risultato suggerisce di ripetere le misure rivestendo completamente il sistema di rivelazione con cadmio.

La differenza che comunque permane con il caso ideale in assenza di pareti, pavimento e soffitto, suggerisce di testare il dispositivo in un ambiente del tipo “campo aperto” e in un ambiente del tipo “bunker” per constatare sperimentalmente il contributo dello scattering dei neutroni legato alla presenza di materiale strutturale.

È infatti da ricordare che durante la dimostrazione del 29 e 30 settembre 2015 il sistema di misura era posizionato in una geometria intermedia tra un “campo aperto” e un “bunker”, come mostrato in Fig.8-8.



*Figura 8-8 – Condizioni geometriche del primo setup sperimentale.*

Il dispositivo NAI era posizionato in una struttura con un pavimento e una parete laterale in calcestruzzo e un tetto metallico. La presenza dei componenti in calcestruzzo e il rivestimento parziale di cadmio sono stati identificati in seguito a tale trattazione i responsabili dell'innalzamento del segnale di fondo che ha permesso una discriminazione del contributo dei neutroni di fissione appena sufficiente e considerevolmente peggiore rispetto ai risultati della simulazione.

### ***8.3 Seconda campagna sperimentale in una geometria del tipo "campo aperto"***

Per minimizzare l'effetto dei materiali strutturali si è pensato di condurre una prima campagna di misure in un ambiente molto ampio al di sopra di una griglia metallica, posta a circa 4 metri dal terreno sottostante. In tali condizioni ciascuno dei due blocchi di polietilene contenenti i rivelatori è stato rivestito con 1 mm di cadmio sulle 4 facce laterali, sono stati inoltre inseriti 1 mm aggiuntivo di cadmio sulla faccia laterale interna alla cavità e 2 mm di cadmio sulla faccia inferiore di ciascun blocco di rivelazione.



*Figura 8-9 – Layout sperimentale della seconda campagna di misura.*

Sono state condotte 4 misure della durata di 170 secondi ciascuna:

1. misura in assenza di campione;
2. misura con campione metallico;
3. misura con campione contenente circa 6 g di  $^{235}\text{U}$  (lo stesso dell'esperimento originario);
4. misura con campione contenente circa 2 g di  $^{235}\text{U}$ .

Le impostazioni del generatore di neutroni sono riassunte nella Tab.8-1 che segue:

*Tabella 8-1 – Impostazioni del generatore di neutroni nella seconda campagna sperimentale.*

Frequenza	500 Hz
Corrente di fascio	40 $\mu\text{A}$
Tensione	60 kV
Duty cycle	10%

A tali impostazioni si stima una resa del generatore di circa  $3.7 \cdot 10^7$  n/s.

I dati registrati sono stati analizzati mediante il software descritto nel capitolo 7 e sono state prodotte le curve di DDAA mostrate nelle Figg. 8-10 – 8-12.

Fino a questo momento era stato possibile considerare positiva la rivelazione di 6 g di  $^{235}\text{U}$  con uno scostamento tra le curve di fondo e segnale molto limitato [2], ora le due curve si discostano in maniera molto più evidente e risulta possibile identificare anche una massa più piccola di fissile: 2g di  $^{235}\text{U}$ . Le performance del dispositivo risultano dunque nettamente migliorate rispetto alla prova sperimentale originaria.

Le modifiche apportate hanno dunque permesso di ridurre il limite di rivelazione, in Fig.8-13 e in Tab.8-2 è riportato inoltre un confronto più dettagliato tra le varie prove nell'intervallo di tempo 1000 – 1500  $\mu\text{s}$ . Nella valutazione del rapporto  $\frac{\text{segnale}-\text{fondo}}{\text{fondo}}$ , riportato in Tab.8-2, il *segnale* è inteso come somma dei conteggi registrati in presenza del campione nell'intervallo di tempo 1000 – 1500  $\mu\text{s}$ , il *fondo* è inteso come somma dei conteggi registrati in assenza del campione nello stesso intervallo temporale. L'incertezza su tale rapporto è valutata mediante la propagazione degli errori facendo l'assunzione che sia i conteggi relativi al segnale che quelli relativi al fondo seguono una distribuzione Poissoniana.

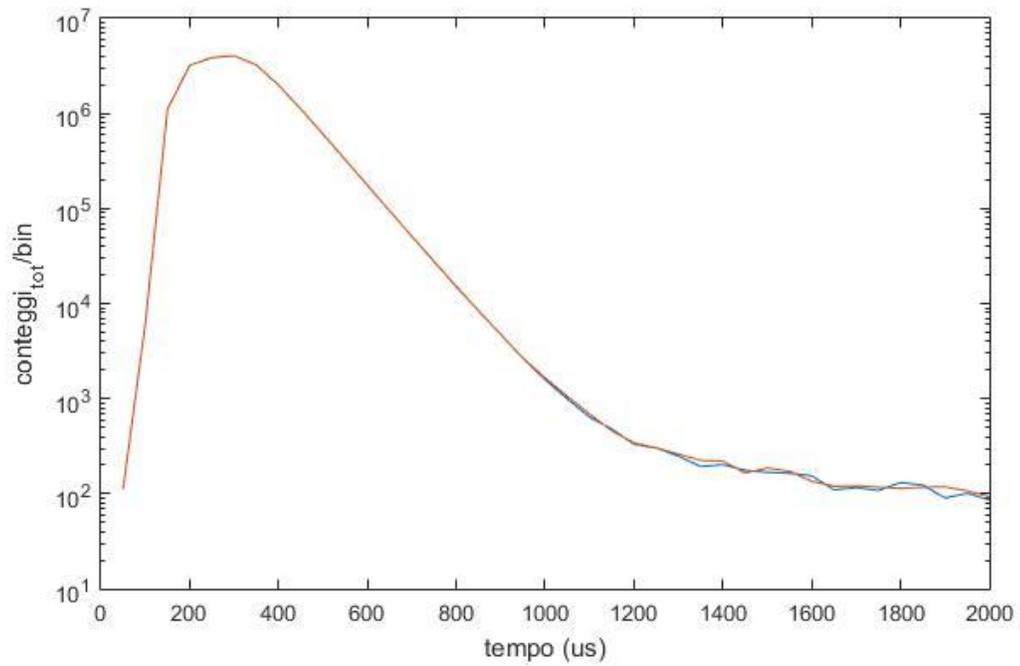


Figura 8-10 – Risultati sperimentali prova con campione metallico: in blu l'andamento dei conteggi nel tempo relativo alla prova in assenza di campione, in rosso il medesimo andamento relativo alla prova in presenza del campione.

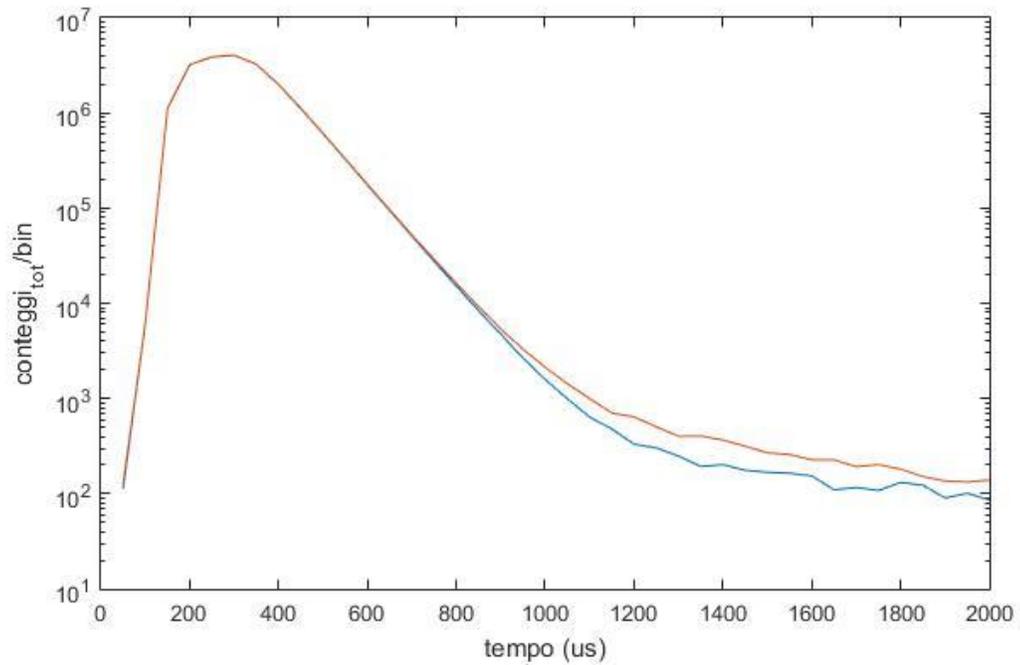


Figura 8-11 – Risultati sperimentali prova con campione contenente 2g di  $^{235}\text{U}$ : in blu l'andamento dei conteggi nel tempo relativo alla prova in assenza di campione, in rosso il medesimo andamento relativo alla prova in presenza del campione.

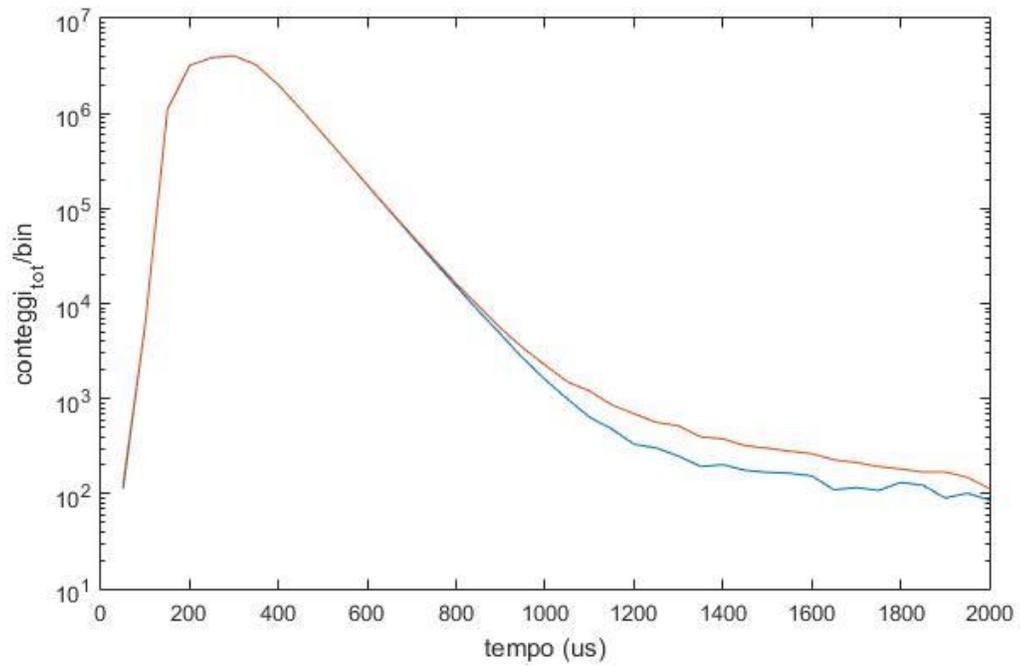


Figura 8-12 – Risultati sperimentali prova con campione contenente 6g di  $^{235}\text{U}$ : in blu l'andamento dei conteggi nel tempo relativo alla prova in assenza di campione, in rosso il medesimo andamento relativo alla prova in presenza del campione.

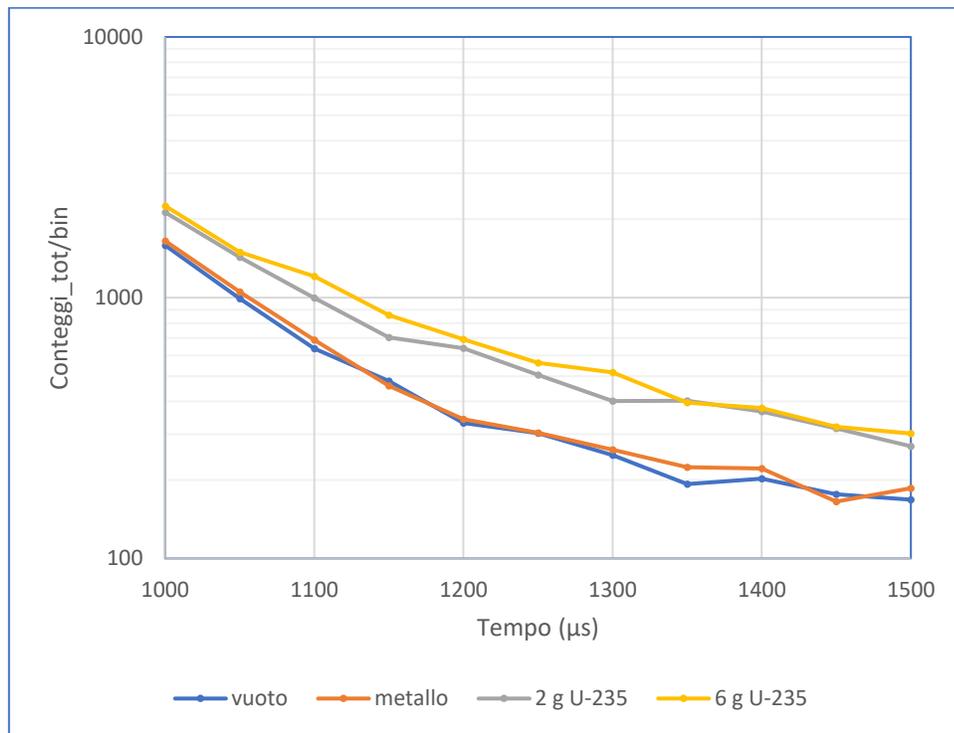


Figura 8-13 – Confronto delle tre prove nell'intervallo temporale 1000 – 1500  $\mu\text{s}$ .

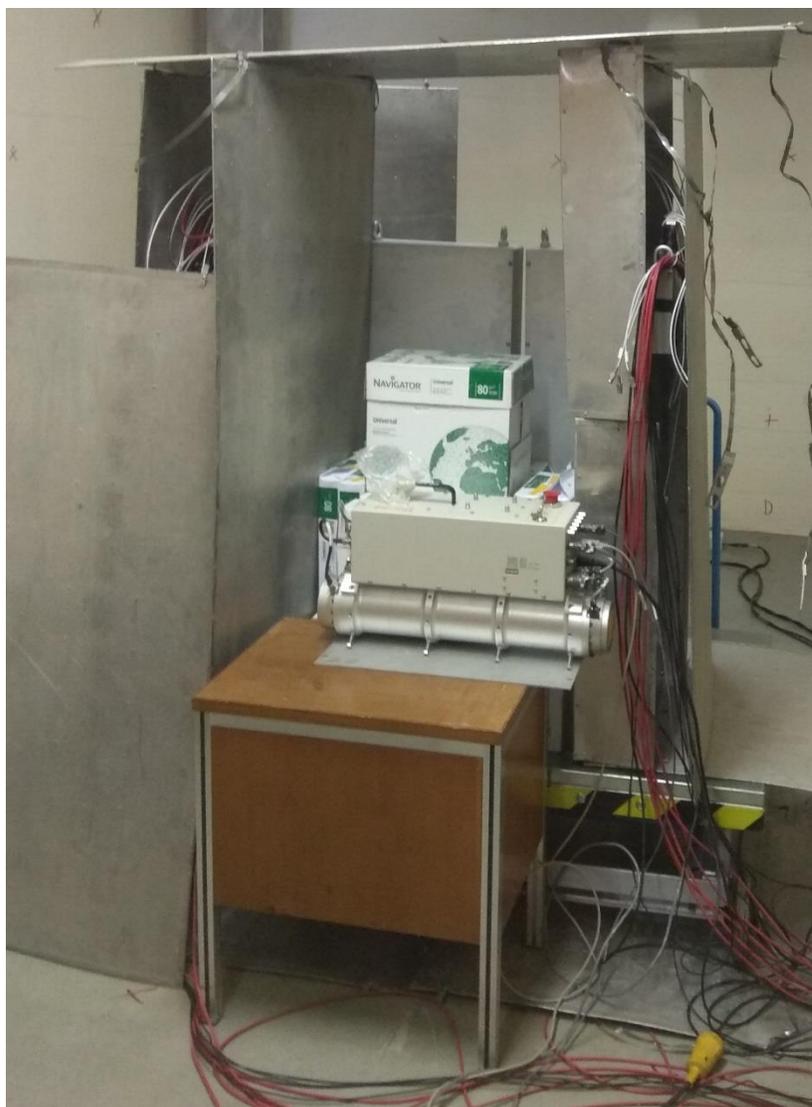
Tabella 8-2 – Confronto delle tre prove nell'intervallo temporale 1000 – 1500  $\mu$ s.

	<b>(segnale-fondo)/fondo</b>
<b>Metallo</b>	(5 $\pm$ 2)%
<b>2g <sup>235</sup>U</b>	(62 $\pm$ 3)%
<b>6g <sup>235</sup>U</b>	(80 $\pm$ 4)%

Osservando la Tab.8-2 si nota come lo scostamento tra il segnale e il fondo in presenza di fissile risulta più di un ordine di grandezza superiore rispetto al caso in cui il campione non contenga materiale fissile (metallo).

#### ***8.4 Terza campagna sperimentale in una geometria del tipo "bunker"***

Per avvicinarsi a più comuni geometrie di misura che per ragioni di radioprotezione obbligano a operare il generatore all'interno di strutture schermate, si è deciso di condurre una seconda campagna sperimentale in un ambiente più chiuso, all'interno di una struttura di dimensioni circa 4 m x 8 m x 3 m. Per limitare l'effetto dello scattering dei neutroni legato alla presenza delle pareti e del soffitto, si è pensato di aggiungere un ulteriore strato di cadmio dello spessore di 1 mm anche sulle facce laterali esterne (rispetto alla cavità) dei blocchi di rivelazione e un foglio di cadmio dello spessore di 1 mm al di sopra dell'intero sistema come visibile dalla Fig.8-14.



*Figura 8-14 – Layout sperimentale della terza campagna di misura.*

Sono state condotte 4 misure della durata di 150 secondi ciascuna:

1. misura in assenza di campione;
2. misura con campione metallico;
3. misura con campione contenente circa 6 g di  $^{235}\text{U}$  (lo stesso dell'esperimento originario);
4. misura con campione contenente circa 2 g di  $^{235}\text{U}$ .

Le impostazioni del generatore di neutroni sono riassunte nella Tab.8-3 che segue:

Tabella 8-3 – Impostazioni del generatore di neutroni nella terza campagna di misura.

Frequenza	500 Hz
Corrente di fascio	40 $\mu$ A
Tensione	60 kV
Duty cycle	10%

A tali impostazioni si stima una resa del generatore di circa  $3.7 \cdot 10^7$  n/s.

I dati registrati sono stati analizzati mediante il software descritto nel capitolo 7 e sono state prodotte le curve di DDAA mostrate nelle Figg. 8-15 – 8-17.

È possibile osservare come le performance del dispositivo siano ben confrontabili con quelle in ambiente del tipo “campo aperto”, ciò risulta maggiormente evidente osservando la Fig.8-18 e la Tab.8-4 in cui è riportato un confronto più dettagliato tra le varie prove nell’intervallo di tempo 1000 – 1500  $\mu$ s. Nella valutazione del rapporto  $\frac{\text{segnale}-\text{fondo}}{\text{fondo}}$ , riportato in Tab.8-2, il *segnale* è inteso come somma dei conteggi registrati in presenza del campione nell’intervallo di tempo 1000 – 1500  $\mu$ s, il *fondo* è inteso come somma dei conteggi registrati in assenza del campione nello stesso intervallo temporale. L’incertezza su tale rapporto è valutata mediante la propagazione degli errori facendo l’assunzione che sia i conteggi relativi al segnale che quelli relativi al fondo seguono una distribuzione Poissoniana.

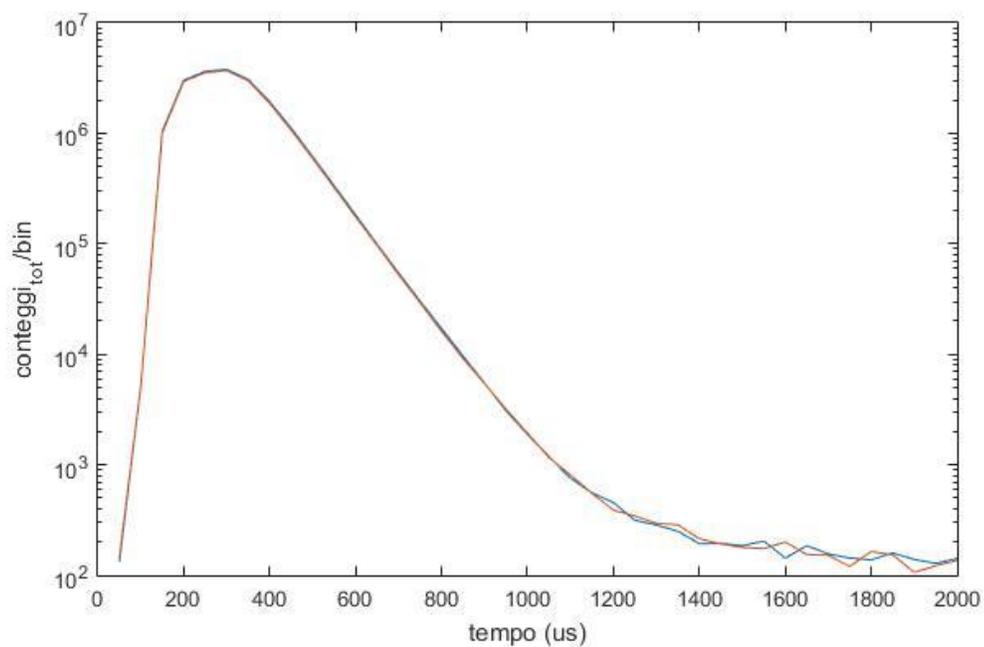


Figura 8-15 – Risultati sperimentali prova con campione contenente metallo: in blu l'andamento dei conteggi nel tempo relativo alla prova in assenza di campione, in rosso il medesimo andamento relativo alla prova in presenza del campione.

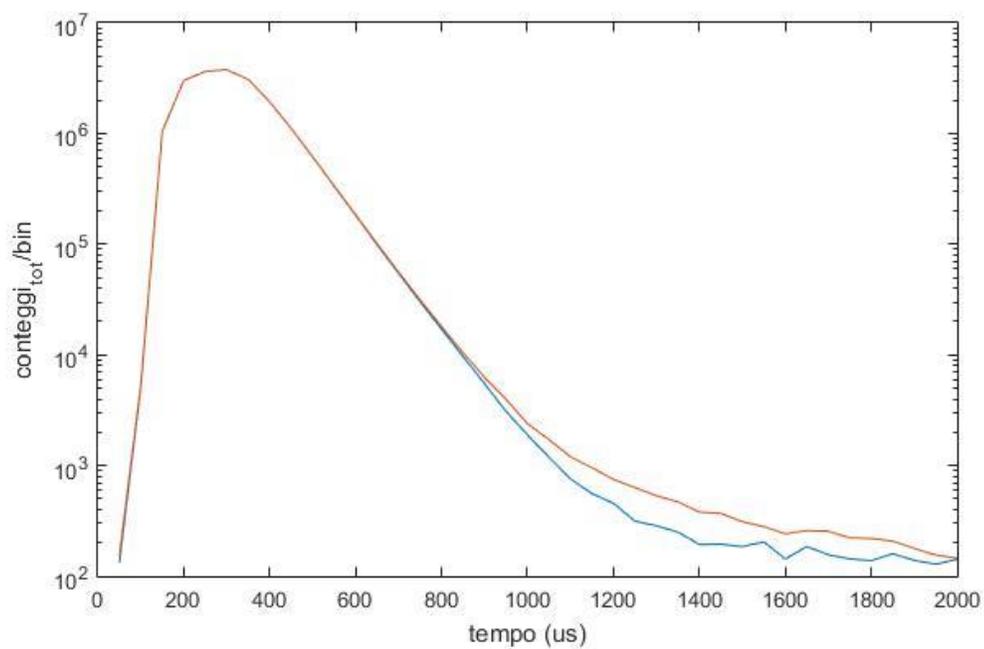


Figura 8-16 – Risultati sperimentali prova con campione contenente 2g di  $^{235}\text{U}$ : in blu l'andamento dei conteggi nel tempo relativo alla prova in assenza di campione, in rosso il medesimo andamento relativo alla prova in presenza del campione.

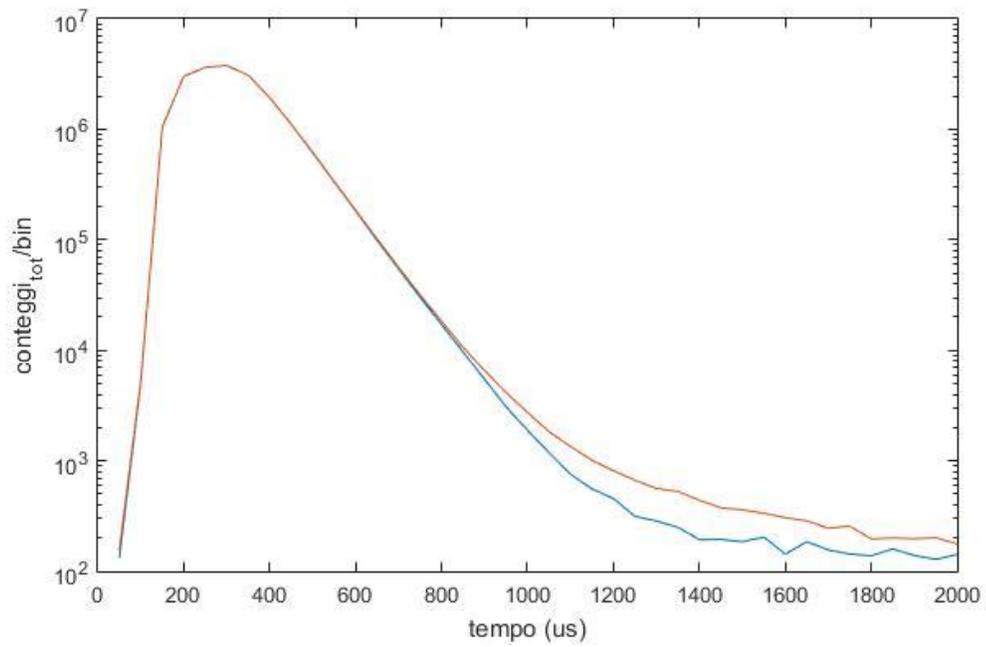


Figura 8-17 – Risultati sperimentali prova con campione contenente 6g di  $^{235}\text{U}$ : in blu l'andamento dei conteggi nel tempo relativo alla prova in assenza di campione, in rosso il medesimo andamento relativo alla prova in presenza del campione.

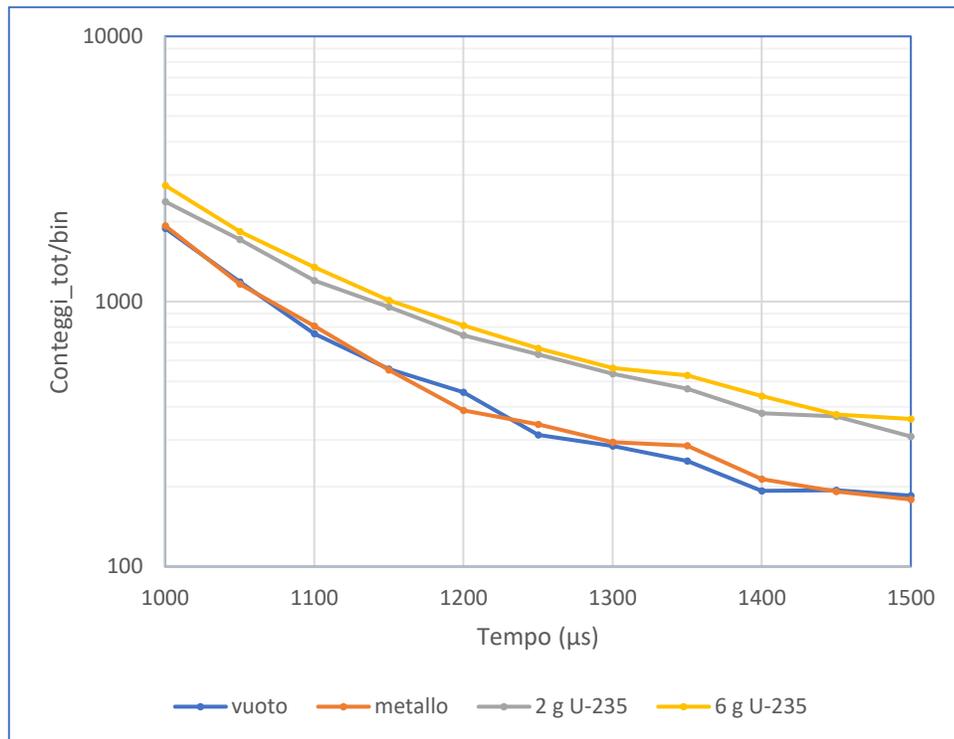


Figura 8-18 – Confronto delle tre prove nell'intervallo temporale 1000 – 1500  $\mu\text{s}$ .

Tabella 8-4 – Confronto delle tre prove nell'intervallo temporale 1000 – 1500  $\mu$ s.

	<b>(segnale-fondo)/fondo</b>
<b>Metallo</b>	(1 $\pm$ 2)%
<b>2g <sup>235</sup>U</b>	(67 $\pm$ 3)%
<b>6g <sup>235</sup>U</b>	(81 $\pm$ 3)%

Alla luce dei risultati ottenuti, è possibile constatare che il setup sperimentale qui proposto consente la rivelazione di 2 g di <sup>235</sup>U con uno scostamento rispetto al fondo maggiore del 50% indipendentemente dall'ambiente in cui il dispositivo si trova ad operare.

## 9. Prospettive future

L'obiettivo di rendere NAI un dispositivo da campo per l'analisi di qualsiasi campione sospettato di contenere materiale fissile spinge verso una necessità di "generalizzazione" della macchina, in modo tale che essa possa restituire risposte affidabili ed adeguate indipendentemente dalla natura del campione in prova. In altre parole, si ricerca una configurazione tale per cui si riconosca, con ragionevole certezza, la presenza di fissile, quali che siano le dimensioni, i materiali, le densità, lo stato fisico delle varie componenti del campione stesso. In questo senso, sono state testate diverse matrici contenenti fissile, variando gli isotopi, lo stato fisico, lo stato chimico, la quantità di fissile coinvolto. Inoltre, con riferimento alla configurazione di funzionamento più efficace individuata, esiste per ciascun campione una configurazione ottimale della struttura di moderazione, il che obbligherebbe a trattare ciascun campione in maniera "personalizzata". Al fine di eliminare tale inconveniente e rendere anche la struttura moderante indipendente dalla natura del campione, si è studiata una nuova configurazione sperimentale in cui viene completamente eliminata la struttura di moderazione al centro della cavità preservando il funzionamento della macchina mediante l'aggiunta di ulteriore polietilene sui pannelli ospitanti i rivelatori. In quanto segue si descrivono le operazioni condotte finora ed i relativi risultati, evidenziando le criticità attuali ed individuando i potenziali miglioramenti di cui NAI potrà beneficiare.

### *9.1 Studio dell'influenza del materiale costituente la matrice del campione*

Successive prove sperimentali sono state condotte nella medesima geometria del tipo "bunker" descritta nel capitolo precedente utilizzando materiali in diverse forme fisiche e con differenti tipi di matrici, al fine di studiarne l'influenza sulla risposta del dispositivo NAI. In particolare, i due campioni utilizzati finora contenenti 2g e 6g di  $^{235}\text{U}$  sono sali in

forma fisica solida, mentre i campioni utilizzati in questa successiva campagna sperimentale presentano le caratteristiche indicate di seguito:

- un campione contenente 4g di  $^{235}\text{U}$  nella forma chimica di un sale e nella forma fisica liquida (Fig.9-1a);
- un campione contenente 0.8g di  $^{233}\text{U}$  nella forma chimica di un sale e nella forma fisica liquida (Fig.9-1b);
- 4 campioni identici contenenti ciascuno 0.48g di  $^{239}\text{Pu}$  in matrice di vetro (Fig.9-1c).

Sono state effettuate dunque ulteriori 6 misure (il campione costituito da 4 sottocampioni è stato analizzato in 4 misure successive ciascuna con un sottocampione aggiuntivo) dalla durata di 150 secondi ciascuna.

Le impostazioni del generatore di neutroni sono riassunte nella Tab.9-1 che segue:

*Tabella 9-1 – Impostazioni del generatore di neutroni nella campagna di misura relativa allo studio dell'influenza della matrice e dello stato fisico del campione.*

Frequenza	500 Hz
Corrente di fascio	40 $\mu\text{A}$
Tensione	60 kV
Duty cycle	10%

A tali impostazioni si stima una resa del generatore di circa  $3.7 \cdot 10^7$  n/s.

Nel grafico in Fig.9-2 sono riportate le curve di DDAA nell'intervallo temporale 1000 – 1500  $\mu\text{s}$ , ottenute analizzando i dati sperimentali e confrontate con quelle relative ai campioni contenenti 2g e 6g di  $^{235}\text{U}$  nella forma chimica di sali e nella forma fisica solida.

In Tab.9-2 sono riportati per il medesimo intervallo temporale i rapporti tra il segnale netto e il fondo per le diverse prove.



Figura 9-1 – Campioni di uranio e plutonio in diversa forma fisica e chimica.

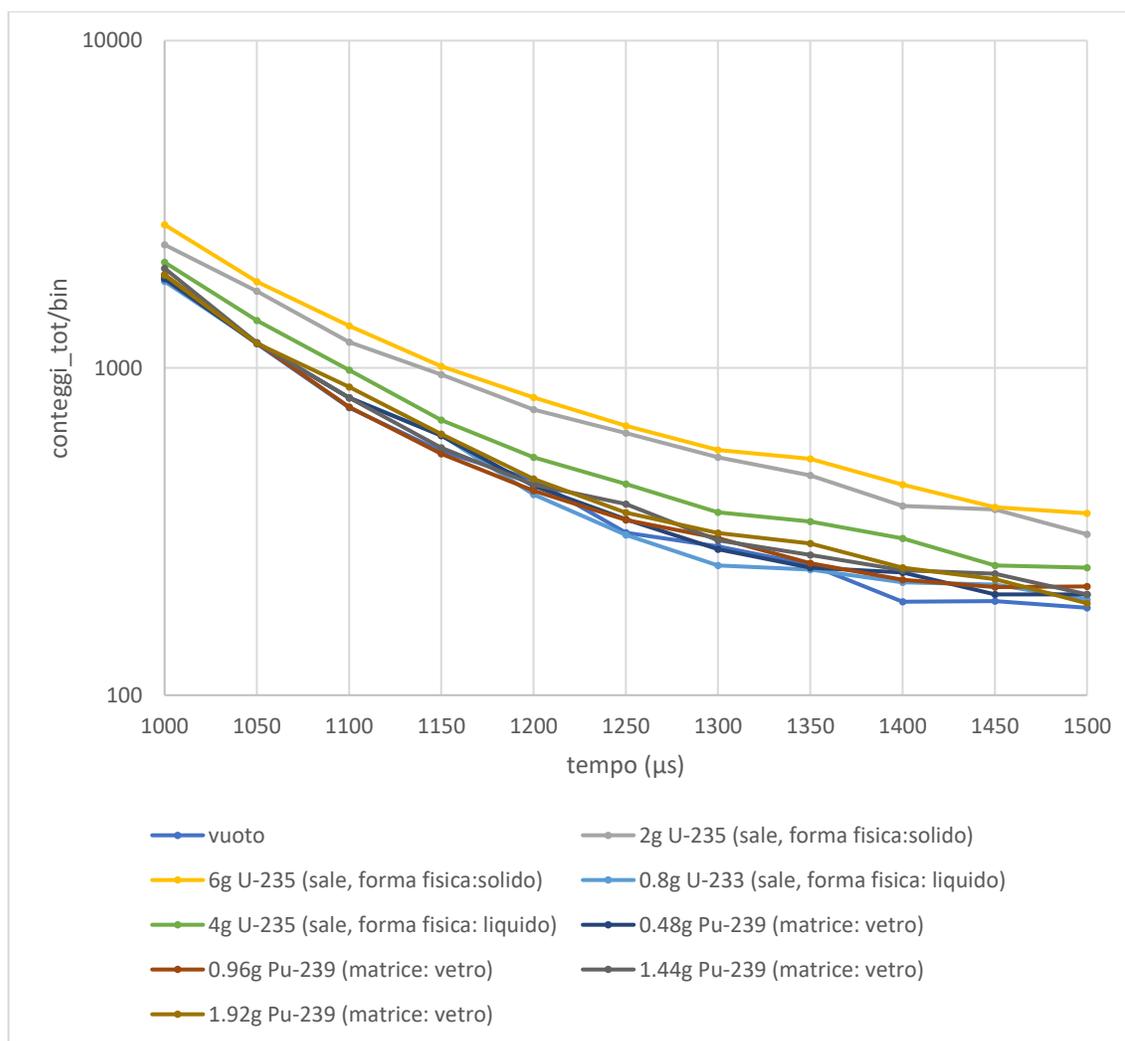


Figura 9-2 - Confronto tra i risultati delle diverse prove nell'intervallo temporale 1000 – 1500 μs.

Tabella 9-2 – Confronto tra i risultati delle diverse prove nell'intervallo temporale 1000 – 1500  $\mu$ s.

	<b>(segnale-fondo)/fondo</b>
<b>Metallo</b>	(1 $\pm$ 2)%
<b>2g <sup>235</sup>U (sale, forma fisica: solido)</b>	(67 $\pm$ 3)%
<b>6g <sup>235</sup>U (sale, forma fisica: solido)</b>	(81 $\pm$ 3)%
<b>4g <sup>235</sup>U (sale, forma fisica: liquido)</b>	(27 $\pm$ 3)%
<b>0.8g <sup>233</sup>U (sale, forma fisica: liquido)</b>	(2 $\pm$ 2)%
<b>0.48g <sup>239</sup>Pu (matrice: vetro)</b>	(4 $\pm$ 2)%
<b>0.96g <sup>239</sup>Pu (matrice: vetro)</b>	(2 $\pm$ 2)%
<b>1.44g <sup>239</sup>Pu (matrice: vetro)</b>	(6 $\pm$ 2)%
<b>1.92g <sup>239</sup>Pu (matrice: vetro)</b>	(9 $\pm$ 2)%

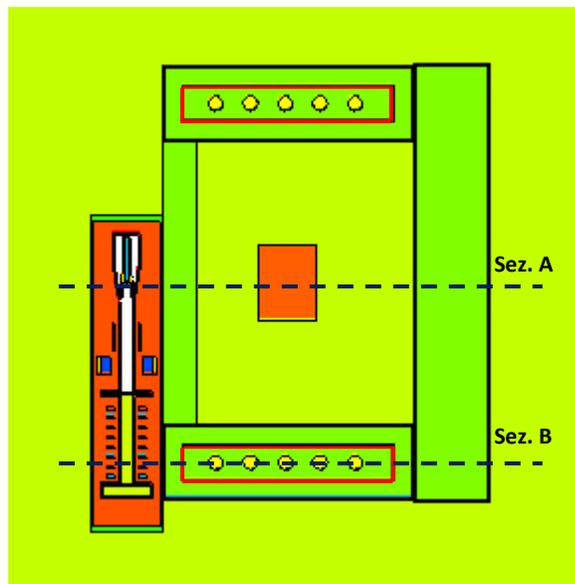
Osservando i risultati è possibile constatare che la forma fisica e la matrice in cui è disperso il materiale nucleare è di fondamentale importanza in termini di influenza sulle prestazioni del dispositivo NAI. Infatti, ad esempio, il campione contenente 4g di <sup>235</sup>U nella forma chimica di sale ma in forma fisica liquida non si colloca in termini di risultati tra il campione contenente 2g di <sup>235</sup>U e 6g di <sup>235</sup>U ma presenta un numero di conteggi associati inferiore a entrambi. Non esiste quindi proporzionalità diretta tra la massa di <sup>235</sup>U e la risposta. Per gli altri campioni è difficile asserire che esiste una rivelazione positiva del materiale nucleare. Il rapporto infatti tra il segnale netto e il fondo è dello stesso ordine di grandezza del caso di campione metallico non contenente fissile. È da sottolineare che tutti i campioni sono stati misurati sfruttando la medesima matrice moderante di carta.

Si rende dunque necessario un ulteriore studio volto alla ottimizzazione delle prestazioni del dispositivo NAI al fine di renderle il più possibile indipendenti dalla matrice e dalla forma fisica in cui il campione si trova. Si può pensare, ad esempio, di sviluppare un fattore correttivo della risposta, in funzione della matrice o della forma fisica, che

permetta di associare la risposta strumentale alla massa di materiale fissile allo scopo di quantificare il materiale nucleare presente anziché segnalarne esclusivamente la presenza.

### ***9.2 Eliminazione dell'ingombro della carta per aumentare le dimensioni del campione ispezionabile e allo stesso tempo ridurre i limiti di rivelazione***

Parallelamente alle campagne sperimentali sono stati condotti ulteriori studi in simulazione mirati all'eliminazione dell'ingombro della carta per permettere la misura con campioni di dimensioni più elevate e rendere più "snello" e facilmente trasportabile il sistema di misura. Tali studi hanno portato alla definizione di una prima proposta di variazione alla struttura del dispositivo, mostrata nelle figg.20, 21, 22.



*Figura 9-3 – Vista in pianta del layout proposto.*

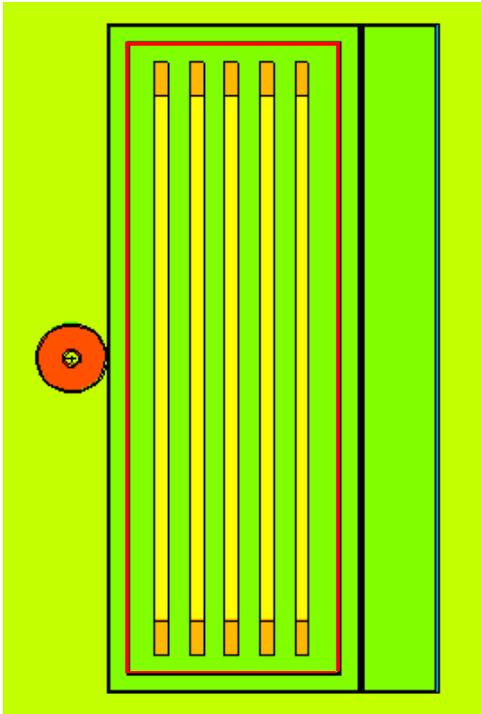


Figura 9-4 – Sezione B della vista in Fig.9-3.

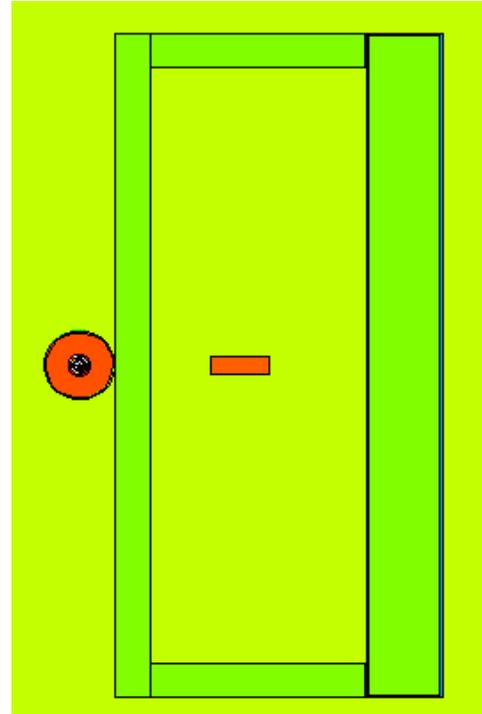


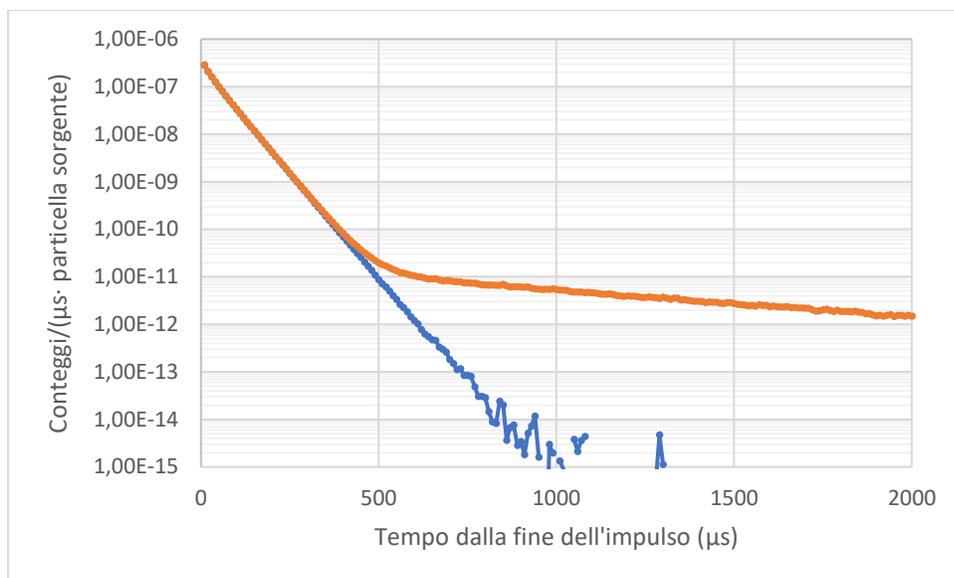
Figura 9-5 – Sezione A della vista in Fig.9-3.

Le modifiche più significative sono riportate di seguito:

- i due blocchi di polietilene in cui sono alloggiati i rivelatori nella configurazione precedente avevano dimensioni 11 cm x 36 cm x 100 cm e una piccola porzione della lunghezza dei rivelatori fuoriusciva dal moderatore, nella nuova configurazione hanno dimensioni 6 cm x 36 cm x 110 cm inglobando in altezza tutta la lunghezza dei rivelatori (volume in meno di polietilene 31680 cm<sup>3</sup> e massa in meno 31 kg circa);
- nella configurazione precedente il cadmio era collocato all'esterno dei blocchi di rivelazione, nella nuova configurazione esso è collocato più vicino rispetto ai rivelatori (si veda la linea rossa nelle figg.20 e 21) in quanto risulta minore lo spessore della lastra di polietilene ed è circondato da un ulteriore strato di polietilene che ne migliora le prestazioni in termini di filtraggio dei neutroni di interrogazione termalizzati che disturbano il segnale utile;

- nella configurazione precedente erano presenti 29 risme di carta per un volume complessivo di 91350 cm<sup>3</sup> e una massa di circa 60 kg, nella nuova configurazione esse sono sostituite con uno spessore aggiuntivo di 3 cm di polietilene su ogni faccia dei blocchi contenenti i rivelatori, due lastre di polietilene identiche di dimensioni 6 cm x 37 cm x 50 cm poste sopra e sotto il campione e una lastra di polietilene di dimensioni 6 cm x 50 cm x 118 cm posta davanti al generatore, per un volume complessivo di 123984 cm<sup>3</sup> e una massa di circa 120 kg. Le tre lastre di polietilene creano una cavità completamente chiusa rispetto alla configurazione precedente che risultava parzialmente aperta.
- Le due lastre di polietilene senza rivelatori utilizzate per rendere la geometria più vicina ad una cavità avevano dimensioni 11 cm x 36 cm x 100 cm, per un volume complessivo di 79200 cm<sup>3</sup> e una massa di 78 kg circa, ora esse sono sostituite da un'unica lastra di polietilene dalle dimensioni di 107616 cm<sup>3</sup> e massa 105 kg circa.
- La nuova configurazione presenta un peso di circa 60 kg superiore alla configurazione precedente (il peso complessivo resta comunque al di sotto del carico massimo dei carrelli su cui sono montati i vari componenti) ma una cavità di dimensioni 37 cm x 50 cm x 106 cm, contro quella precedente di dimensioni 8 cm x 31 cm x 26 cm. Nell'ottica di automatizzazione del processo, ciò comporta anche che non occorre più scegliere una struttura moderante ad-hoc da sistemare attorno al campione prima della misura, poiché la struttura proposta consente la rivelazione del fissile includendo semplicemente il campione stesso nella cavità, senza ulteriori operazioni.

Il vantaggio maggiore è però rappresentato dai risultati della simulazione mostrati in Fig. 9-6.



*Figura 9-6 – Risultati simulazione per la nuova configurazione.*

Nella prova simulata il campione contiene circa 2 g di  $^{235}\text{U}$ .

Nell'intervallo di tempo 500 – 1000  $\mu\text{s}$  dopo la fine dell'impulso di neutroni il segnale risulta superiore al fondo di circa il 900 % in più. Un risultato di questo genere lascia pensare ad una potenziale ulteriore diminuzione delle minime quantità rivelabili dal sistema.

Tale risultato è stato ottenuto ponendo il dispositivo all'interno di una struttura in calcestruzzo. La simulazione è stata ripetuta anche in un ambiente del tipo "campo aperto" e le curve sono praticamente sovrapponibili. In simulazione quindi il comportamento del dispositivo è del tutto indipendente dall'ambiente in cui opera.

## Conclusione

La ricerca descritta nella presente tesi di dottorato ha avuto come obiettivo la progettazione e lo sviluppo di un dispositivo per la rivelazione di materiale nucleare, in campo, che sia in grado di fornire un contributo tangibile nell'affrontare le sfide che si palesano nell'ambito della sicurezza nucleare. In particolare, il dispositivo NAI, realizzato in collaborazione con il Laboratorio di Caratterizzazione Radiologica e Gestione dei Rifiuti del Centro Ricerche ENEA Casaccia, è stato qui descritto nelle diverse fasi di progettazione e messa a punto. Nel primo capitolo di contestualizzazione è stato affrontato il tema della sicurezza nucleare e delle sfide che la comunità internazionale si trova a fronteggiare al fine di garantire il controllo in sicurezza dei materiali nucleari. Nel secondo capitolo sono state introdotte le diverse tecniche a disposizione per la rivelazione di uranio e plutonio; dalla trattazione è emerso che le tecniche di rivelazione più adeguate allo scopo proposto sono quelle basate su neutroni, ed in particolare sulla stimolazione attiva del campione. La tecnica neutronica attiva scelta, la Differential Die-Away time Analysis, è stata poi ampiamente descritta nel terzo capitolo in cui è risultata la necessità di uno studio di fattibilità in simulazione per verificare che tale tecnica, nata nell'ambito della caratterizzazione di rifiuti radioattivi, potesse essere applicata alle condizioni peculiari della rivelazione in campo e *real-time*. Lo studio di fattibilità, dall'esito positivo, è stato descritto nel quarto capitolo che costituisce la conclusione della prima parte della tesi dedicata alla contestualizzazione del progetto, la descrizione degli obiettivi, della teoria alla base del funzionamento del dispositivo NAI e delle preliminari scelte progettuali. La seconda parte della ricerca è costituita invece dalla fase prettamente sperimentale del progetto. Nel quinto e sesto capitolo è stata descritta la caratterizzazione sperimentale del generatore di neutroni e dei rivelatori. La messa a punto dello script di analisi del treno di impulsi registrato dal sistema di elettronica connesso ai rivelatori è stata esposta nel settimo capitolo. L'ottavo capitolo è stato dedicato alle campagne

sperimentali che hanno condotto alla rivelazione di 2g di  $^{235}\text{U}$  (nello stato chimico di sale e stato fisico solido) in un tempo di misura pari a 120 secondi con una resa neutronica del generatore nell'ordine di  $10^7$  n/s. Il risultato della ricerca è quindi di notevole rilevanza: per la prima volta si è reso funzionante uno strumento trasportabile che consente la rivelazione di masse di materiale fissile dell'ordine del grammo. Sfruttando la massima resa del generatore di neutroni ( $10^8$  n/s) sarà possibile inoltre rendere tale rivelazione *real-time* permettendo l'utilizzo del dispositivo in situazioni in cui è richiesta una pronta risposta.

Le criticità delle prestazioni del dispositivo NAI sono state infine messe in luce nell'ultimo capitolo, nel quale è emersa la necessità di ottimizzare il dispositivo al fine di legare il segnale registrato alla massa di materiale fissile presente nel campione analizzato, indipendentemente dal tipo di matrice in cui si trova il materiale nucleare o dallo stato fisico o chimico in cui è presente. Un'ulteriore possibile miglioria in termini di configurazione è stata teorizzata mediante simulazioni Monte Carlo al fine di allargare la cavità di interrogazione e quindi le dimensioni del campione ispezionabile con annessa diminuzione delle minime quantità rivelabili.

## Bibliografia

1. EDEN End-user driven DEmo for cbrNe. [Online] <https://eden-security-fp7.eu/>.
2. In field application of differential Die-Away time technique for detecting gram quantities of fissile materials . R.Remetti, G.Gandolfo, L.Lepore, N.Cherubini. 870, 2017, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A, p. 123-130.
3. Field Prototype of the ENEA Neutron Active Interrogation Device for the Detection of Dirty Bombs. N.Cherubini, A.Dodaro, G.Gandolfo, L.Lepore, G.A.Marzo, E.Piccinelli, R.Remetti. 2016, Challenges.
4. The neutron active interrogation system for in-field detection of transuranic-based radioactive dispersal devices for security applications. N.Cherubini, A.Dodaro, G.Gandolfo, L.Lepore, G.A.Marzo, E.Piccinelli, R.Remetti. London : s.n., 2018. 26th International Conference on Nuclear Engineering.
5. Differential die-away analysis response modeling and detector design. A.Jordan, T.Gozani, J.Vujic. 2008, Nuclear Instr. and Methods in Physics Research, Vol. 261, p. 365-368.
6. J.F.Briesmeister. MCNP - A general purpose Monte Carlo code for neutron and photon transport. s.l. : Los Alamos National Laboratory Report 12625, 1993.
7. Materials, International Panel on Fissile. Global fissile material report 2015. 2015.
8. International Atomic Energy Agency, Division of Public Information, PR 2003/03. 2003.
9. Isotopic composition analysis and age dating of uranium samples by high resolution gamma ray spectrometry. A.I. Apostol, A. Pantelica, O. Sima, V. Fugaru. 2016, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, Vol. 383, p. 103-108.
10. Ion beam analysis of elemental signatures in uranium dioxide samples: importance for nuclear forensics. A. I. Apostol, A. Pantelica, I. Ortega-Feliu, N. Marginean, O. Sima, M. Straticiuc, M. C. Jimenez-Ramos, V. Fugaru. 2016, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 311, p. 1339-1346.
11. 2), International Nuclear Verification Series No.1 (Rev. Safeguards Techniques and Equipment: 2011 Edition. s.l. : IAEA, 2011.
12. ORTEC . [Online] [Riportato: 1 10 2018.] <https://www.ortec-online.com/products/application-software/fram>.

13. R. Gunnink, W. D. Ruhter, P. Miller, J. Goerten, M. Swinhoe, H. Wagner, J. Verplancke, M. Bickel, and S. Abousahl. MGAU: A New Analysis Code for Measuring U-235 Enrichments in Arbitrary Samples. Vienna : IAEA Symposium on International Safeguards, 1994.
14. Application Note Segmented Gamma-Ray Scanner. s.l. : Los Alamos National Laboratory, 1991.
15. Hansen, J. Steven. TOMOGRAPHIC GAMMA-RAY SCANNING OF URANIUM AND PLUTONIUM . s.l. : Los Alamos National Laboratory LA-UR-07-5150.
16. M.C.Miller. X-Ray Fluorescence. s.l. : Los Alamos National Laboratory.
17. Hastings A Smith, Jr., and Phyllis A Russo. Densitometry. s.l. : Los Alamos National Laboratory.
18. Ensslin, N. Principles of Neutron Coincidence Counting. s.l. : Los Alamos National Laboratory.
19. N. Ensslin, M. S. Krick, D. G. Langner, M. M. Pickrell, T. D. Reilly, and J. E. Stewart. PASSIVE NEUTRON MULTIPLICITY COUNTING. LA-UR-07-1402.
20. Howard O. Menlove, Gerald E. Bosler. Application of the Active Well Coincidence Counter (AWCC) to High-Enrichment Uranium Metal. s.l. : Los Alamos National Laboratory, 1981.
21. Delayed neutron activation analysis for safeguards. Glasgow, D. C. 2008, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry , Vol. 276, p. 207-211.
22. FLIR. [Online] [Riportato: 1 10 2018.] <https://prod.flir.it/products/identifinder-r400/>.
23. CANBERRA. [Online] [Riportato: 1 10 2018.] [http://www.canberra.com/products/hp\\_radioprotection/inspector-1000.asp](http://www.canberra.com/products/hp_radioprotection/inspector-1000.asp).
24. ORTEC. [Online] [Riportato: 1 10 2018.] <https://www.ortec-online.com/products/nuclear-security-and-safeguards/hand-held-radioisotope-identifiers-riids/detective-100t>.
25. J.M. Blackadar, S.E. Garner, J.A. Bounds, W.H. Casson, D.J. Mercer. Evaluation of Commercial Detectors. s.l. : Los Alamos National Laboratory report LA-UR-03-4020, 2003.
26. Caldwell, J.T., Atencio, J.D., and Kunz, W.E. Tue. Apparatus and method for quantitative assay of generic transuranic wastes from nuclear reactors. US 4483816 United States, 20 11 1984.

27. Transuranic waste assay by neutron interrogation and online prompt and delayed neutron measurement. A.C.Raoux, A.Lyoussi, C.Passard, C.Denis, J.Loridon, J.Misraki, P.Chany. 2003, Nuclear Instr. and Methods in Physics B, Vol. 207, p. 186-194.
28. 01, ASTM Designation: C 1493 -. Standard test method for non-destructive assay of nuclear material in waste by passive and active neutron counting using a differential die-away system. 2001.
29. Gandolfo, Giada. Rivelazione di materiale fissile mediante Differential Die-Away Analysis: studio di prefattibilità tramite simulazioni Monte Carlo. Roma : Sapienza - Università di Roma, 2015.
30. Scientific, Thermo Fisher. [Online] [Riportato: 1 10 2018.] <https://www.thermofisher.com/order/catalog/product/1517021A>.
31. National Nuclear Data Center. [Online] [Riportato: 1 Ottobre 2018.] <https://www.nndc.bnl.gov/sigma/getPlot.jsp?evalid=14963&mf=3&mt=103&nsb=10>.
32. Taylor, J. R. Introduzione all'analisi degli errori. Lo studio delle incertezze nelle misure fisiche. s.l. : Zanichelli, 1999.
33. National Nuclear Data Center. [Online] [Riportato: 1 Ottobre 2018.] <https://www.nndc.bnl.gov/sigma/getPlot.jsp?evalid=15123&mf=3&mt=102&nsb=10>.
34. Valkovic, Vladivoj. 14 MeV Neutrons: Physics and Applications. s.l. : CRC Press, 2015.
35. AN INTRODUCTION TO THE 14MeV NEUTRON GENERATOR AND A STUDY ON ENERGIES OF THE NEUTRONS PRODUCED THROUGH D-T REACTION. [Online] [Riportato: 1 10 2018.] [http://shodhganga.inflibnet.ac.in/bitstream/10603/142532/7/05\\_chapter%201.pdf](http://shodhganga.inflibnet.ac.in/bitstream/10603/142532/7/05_chapter%201.pdf).
36. Csikai, J. Nuclear Theory for Applications. Trieste : ICTP, 1961.
37. Moak, CD. Nucleonics 9. 18(1951).
38. Gilardoni. [Online] [Riportato: 1 10 2018.] <https://www.gilardoni.it/sicurezza/raggi-x-2/soluzioni-cargo/fep-me-cargo/>.
39. Berthold Technologies. [Online] [Riportato: 1 10 2018.] <https://www.berthold.com/en/neutron-probe-lb-6411>.
40. Galbiati, A. CVD Diamond Neutron Detectors. [Online] [Riportato: 1 10 2018.] [http://www.npl.co.uk/upload/pdf/091104\\_nuc\\_galbiati.pdf](http://www.npl.co.uk/upload/pdf/091104_nuc_galbiati.pdf).

41. 14 MeV neutron spectra measurements with 4% energy resolution using a type IIa diamond detector. M. Pillon, M. Angelone, A.V. Krasilnikov. 1995, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, Vol. 101, p. 473-483.
42. Center, National Nuclear Data. [Online] [Riportato: 1 10 2018.] <https://www.nndc.bnl.gov/exfor/servlet/E4sMakeE4>.
43. National Nuclear Data Center. [Online] [Riportato: 20 09 2018.] <https://www.nndc.bnl.gov/sigma/getPlot.jsp?evalid=14963&mf=3&mt=103&nsb=10>.
44. Knoll, Glenn F. Radiation Detection and Measurement. s.l. : John Wiley & Sons, 2000.
45. PIDIE, PLUTONIUM ISOTOPIC DETERMINATION INTER-COMPARISON EXERCISE. HARRY, R.J.S. LOS ANGELES : s.n., 1990. ESARDA CONTRIBUTION TO BE PRESENTED AT THE 31ST ANNUAL MEETING OF THE INSTITUTE OF NUCLEAR MATERIALS MANAGEMENT .
46. Precision Data Technology. [Online] [Riportato: 1 10 2018.] <http://www.pdt-inc.com/products/10series/10a-hn.htm>.
47. GuideTech. [Online] [Riportato: 1 10 2018.] <http://www.guidetech.com/>.

## Appendice A: Input MCNPX di una possibile configurazione del dispositivo NAI

CONFIGURAZIONE DISPOSITIVO NAI

C CELL CARD

C LASTRE DI POLIETILENE CONTENENTI I RIVELATORI

1 1 -0.98 -1 30 31 32 33 34 IMP:N=1 IMP:P=1

2 1 -0.98 -2 35 36 37 38 39 IMP:N=1 IMP:P=1

C RIVESTIMENTO DELLE LASTRE IN ALLUMINIO

10 2 -2.81 -10 1 IMP:N=1 IMP:P=1

20 2 -2.81 -20 2 IMP:N=1 IMP:P=1

C FORI PER ALLOGGIAMENTO RIVELATORI

30 3 -0.001288 -30 40 IMP:N=1 IMP:P=1

31 3 -0.001288 -31 41 IMP:N=1 IMP:P=1

32 3 -0.001288 -32 42 IMP:N=1 IMP:P=1

33 3 -0.001288 -33 43 IMP:N=1 IMP:P=1

34 3 -0.001288 -34 44 IMP:N=1 IMP:P=1

35 3 -0.001288 -35 45 IMP:N=1 IMP:P=1

36 3 -0.001288 -36 46 IMP:N=1 IMP:P=1

37 3 -0.001288 -37 47 IMP:N=1 IMP:P=1

38 3 -0.001288 -38 48 IMP:N=1 IMP:P=1

39 3 -0.001288 -39 49 IMP:N=1 IMP:P=1

C RIVESTIMENTO DEI RIVELATORI IN ACCIAIO

40 4 -7.85 -40 50 IMP:N=1 IMP:P=1

41 4 -7.85 -41 51 IMP:N=1 IMP:P=1

42 4 -7.85 -42 52 IMP:N=1 IMP:P=1

43 4 -7.85 -43 53 IMP:N=1 IMP:P=1

44 4 -7.85 -44 54 IMP:N=1 IMP:P=1

45 4 -7.85 -45 55 IMP:N=1 IMP:P=1

46 4 -7.85 -46 56 IMP:N=1 IMP:P=1

47 4 -7.85 -47 57 IMP:N=1 IMP:P=1

48 4 -7.85 -48 58 IMP:N=1 IMP:P=1

49 4 -7.85 -49 59 IMP:N=1 IMP:P=1

C ZONA ATTIVA DEI RIVELATORI IN ELIO

50 5 -0.0005 -50 IMP:N=1 IMP:P=1

51 5 -0.0005 -51 IMP:N=1 IMP:P=1

52 5 -0.0005 -52 IMP:N=1 IMP:P=1

53 5 -0.0005 -53 IMP:N=1 IMP:P=1

54 5 -0.0005 -54 IMP:N=1 IMP:P=1

55 5 -0.0005 -55 IMP:N=1 IMP:P=1

56 5 -0.0005 -56 IMP:N=1 IMP:P=1

57 5 -0.0005 -57 IMP:N=1 IMP:P=1

58 5 -0.0005 -58 IMP:N=1 IMP:P=1

59 5 -0.0005 -59 IMP:N=1 IMP:P=1

C CAMPIONE DI URANIO DEPLETO

6 6 -1.005 -6 IMP:N=1 IMP:P=1

C STRUTTURA MODERANTE DI CARTA

7 7 -0.65 (-70):(-71):(-72):(-73):(-74):(-75):(-76):

(-77):(-78):(-79) IMP:N=1 IMP:P=1

C FOGLI DI CADMIO

8 8 -8.65 -80:-81:-82:-83 IMP:N=1 IMP:P=1

C RIVESTIMENTO IN ALLUMINIO DEI FOGLI DI CADMIO

9 2 -2.81 (-90 80):(-91 81):(-92 82):(-93 83) IMP:N=1 IMP:P=1

C SFERA CHE DEFINISCE AMBIENTE INTERNO

100 3 -0.001288 (-100 6 70 71 72 73 74 75 76

77 78 79 90 91 92 93 10 20) IMP:N=1 IMP:P=1

C AMBIENTE ESTERNO

110 0 100 IMP:N=0 IMP:P=0

C SURFACE CARD

C PARALLELEPIPEDI LASTRE DI POLIETILENE

1 3 RPP -5 5 -18 18 -54.5 54.5

2 4 RPP -5 5 -18 18 -54.5 54.5

C PARALLELEPIPEDI RIVESTIMENTO LASTRE

10 3 RPP -5.4 5.4 -19 19 -54.5 54.5

20 4 RPP -5.4 5.4 -19 19 -54.5 54.5

C CILINDRI FORI ALLOGGIAMENTO RIVELATORI

30 1 RCC 0 12 -49.5 0 0 104 1.3

31 1 RCC 0 6 -49.5 0 0 104 1.3

32 1 RCC 0 0 -49.5 0 0 104 1.3

33 1 RCC 0 -6 -49.5 0 0 104 1.3

34 1 RCC 0 -12 -49.5 0 0 104 1.3

35 2 RCC 0 12 -49.5 0 0 104 1.3

36 2 RCC 0 6 -49.5 0 0 104 1.3

37 2 RCC 0 0 -49.5 0 0 104 1.3

38 2 RCC 0 -6 -49.5 0 0 104 1.3

39 2 RCC 0 -12 -49.5 0 0 104 1.3

C CILINDRI RIVESTIMENTO RIVELATORI

40 1 RCC 0 12 -49.5 0 0 104 1.27

41 1 RCC 0 6 -49.5 0 0 104 1.27

42 1 RCC 0 0 -49.5 0 0 104 1.27

43 1 RCC 0 -6 -49.5 0 0 104 1.27

44 1 RCC 0 -12 -49.5 0 0 104 1.27

45 2 RCC 0 12 -49.5 0 0 104 1.27

46 2 RCC 0 6 -49.5 0 0 104 1.27

47 2 RCC 0 0 -49.5 0 0 104 1.27

48 2 RCC 0 -6 -49.5 0 0 104 1.27

49 2 RCC 0 -12 -49.5 0 0 104 1.27

C CILINDRI ZONA ATTIVA RIVELATORI

50 1 RCC 0 12 -40.8 0 0 91.7 1.25

51 1 RCC 0 6 -40.8 0 0 91.7 1.25

52 1 RCC 0 0 -40.8 0 0 91.7 1.25

53 1 RCC 0 -6 -40.8 0 0 91.7 1.25

54 1 RCC 0 -12 -40.8 0 0 91.7 1.25

55 2 RCC 0 12 -40.8 0 0 91.7 1.25

56 2 RCC 0 6 -40.8 0 0 91.7 1.25

57 2 RCC 0 0 -40.8 0 0 91.7 1.25

58 2 RCC 0 -6 -40.8 0 0 91.7 1.25

59 2 RCC 0 -12 -40.8 0 0 91.7 1.25

C PARALLELEPIPEDO CAMPIONE DI URANIO

6 RPP 31.5 41.5 -6.5 6.5 -1.5 1.5

C PARALLELEPIPEDI STRUTTURA MODERANTE DI CARTA

70 5 RPP -15 15 -10.5 10.5 -10 10

71 6 RPP -15 15 -10.5 10.5 -10 10

72 7 RPP -5 5 -15.5 15.5 -12 9

73 8 RPP -5 5 -15.5 15.5 -12 9

74 9 RPP -10.5 10.5 -15.5 15.5 -7.5 7.5

75 10 RPP -10.5 10.5 -2.5 2.5 -7 7

76 11 RPP -10.5 10.5 -2.5 2.5 -7 7

77 12 RPP -10.5 10.5 -15.5 15.5 -5 5

78 13 RPP -5 5 -15.5 15.5 -2.5 2.5

79 14 RPP -5 5 -15.5 15.5 -2.5 2.5

C PARALLELEPIPEDI FOGLI DI CADMIO

80 RPP 67.29 67.49 -38 38 -54.5 54.5

81 RPP 78.61 78.81 -38 38 -54.5 54.5

82 RPP 67.3 78.8 38.3 38.5 -54.5 54.5

83 RPP 67.3 78.8 -38.5 -38.3 -54.5 54.5

C PARALLELEPIEDI RIVESTIMENTO FOGLI DI CADMIO

90 RPP 67.19 67.59 -38.1 38.1 -54.6 54.6

91 RPP 78.51 78.91 -38.1 38.1 -54.6 54.6

92 RPP 67.2 78.9 38.2 38.6 -54.5 54.5

93 RPP 67.2 78.9 -38.6 -38.2 -54.5 54.5

C SFERA CHE DEFINISCE L'AMBIENTE

100 SPH 50 0 0 150

C MATERIAL CARD

M1 1001.62c -0.14371 6012.50c -0.85629 \$polietilene

MT1 poly.01t

M2 13027.62c 1. \$alluminio

M3 7014.62c -0.767 8016.62c -0.233 \$aria

M4 26000.55C -0.6892 6012.50C -0.0008 25055.62C -0.02

14000.60C -0.01 24000.50C -0.19 28058.62C -0.09 \$acciaio

M5 2003.66c 1 \$ elio

M6 92235 -0.005 92238 -0.995 \$uranio

M7 6012 6 1001 10 8016 5 \$carta

M8 48000 -1 \$cadmio

C DATA CARD

C COORDINATE TRANSFORMATION CARDS

\*TR1 71.8 19.01 0 0 -90 90 90 0 90 90 90 0

\*TR2 71.8 -19.01 0 0 -90 90 90 0 90 90 90 0  
\*TR3 73 19.01 0 0 -90 90 90 0 90 90 90 0  
\*TR4 73 -19.01 0 0 -90 90 90 0 90 90 90 0  
\*TR5 36.5 26.1 0 0 -90 90 90 0 90 90 90 0  
\*TR6 36.5 -26.1 0 0 -90 90 90 0 90 90 90 0  
\*TR7 21 0 0 0 -90 90 90 0 90 90 90 0  
\*TR8 52 0 0 0 -90 90 90 0 90 90 90 0  
\*TR9 36.5 0 16.5 0 -90 90 90 0 90 90 90 0  
\*TR10 36.5 13 5 0 -90 90 90 0 90 90 90 0  
\*TR11 36.5 -13 5 0 -90 90 90 0 90 90 90 0  
\*TR12 36.5 0 -7 0 -90 90 90 0 90 90 90 0  
\*TR13 52 0 11.5 0 -90 90 90 0 90 90 90 0  
\*TR14 21 0 11.5 0 -90 90 90 0 90 90 90 0

C

MODE N

totnu

C TALLY CARD

F4:N (50 51 52 53 54 55 56 57 58 59)

SD4 4501.3132

FM4 9.9834E-5 5 103

T4 0 299i 3e5 0.1e8 5e8

PRDMP 1000000000 1000000000 -1

PRINT

NPS 20000000000

C SOURCE CARD

SDEF

## Appendice B: Script realizzato in ambiente Matlab per l'elaborazione dei dati sperimentali

```
tic;
clear all;
close all;
filename=input('inserisci il nome del primo file: ');
filename2=input('inserisci il nome del secondo file: ');
tm=input('inserisci il tempo di misura della prova 1 in secondi: ');
tm2=input('inserisci il tempo di misura della prova 2 in secondi: ');
freq=input('inserisci la frequenza del generatore nella prova 1 in Hz: ');
freq2=input('inserisci la frequenza del generatore nella prova 2 in Hz: ');
% bin deve essere un multiplo di 10
bin=input('inserisci ampiezza bin temporali di analisi della prova 1 in us: ');
bin2=input('inserisci ampiezza bin temporali di analisi della prova 2 in us: ');
y=input('frazione della somma dei conteggi relativa al primo impulso di interrogazione al di sotto della quale non considerare gli altri impulsi (prova 1): ');
y2=input('frazione della somma dei conteggi relativa al primo impulso di interrogazione al di sotto della quale non considerare gli altri impulsi (prova 2): ');
% apro il file con le date di arrivo dei neutroni
fileID=fopen(filename,'r');
A=textscan(fileID, '%s %s %f', 'headerlines', 5);
A=A{1,3};
A=A';
% scrivo le date in decine di us
A=A*10^5;
A=sort(A);
fclose(fileID);
%scrivo il tempo di misura in decine di us
tmd=tm*10^5;
%scrivo l'ampiezza del bin in decine di us
bind=bin/10;
%dato che la funzione histcounts che userò dopo può essere utilizzata solo
%per numeri interi, devo approssimare le date a numeri interi.
%La funzione histcounts funziona come nell'esempio seguente:
%se ho una serie di date comprese tra 0 e 100 e voglio inserirle in bin
%di ampiezza 1, definirò come edges 0:100
%se la data generica x è tale che 0<=x<1 allora sarà inserita nel primo bin
%se 1<=x<2 allora sarà inserita nel secondo bin ...
%se 99<=x<=100 allora sarà inserita nell'ultimo bin.
%se la mia data è 1.025 io voglio che cada nel bin 1<=x<2
%affinchè ciò accada devo approssimarla per DIFETTO a 1,
%se approssimassi per eccesso diventerebbe 2 e cadrebbe nel bin successivo.
B=floor(A);
% se i bin sono di ampiezza 1 (espressi in decine di us, quindi 10us)
% C che definisce gli edges della funzione histcounts avrà passo 1,
% se i bin sono di ampiezza 2 (espressi in decine di us, quindi 20us)
% C avrà passo 2, quindi se per esempio tm=60s tmd=60*10^5 bind=2
% C=0:2:60*10^5 ecc.
C=0:bind:tmd;
```

```

D=histcounts(B,C);
figure
plot(D);
perd=10^5/freq;
% la funzione find restituisce le posizioni del vettore D in cui la
% componente è diversa da zero
I=find(D);
[m,n]=size(I);
N=1;
N21=1;
% stabilisco un criterio per trovare l'inizio di ciascun impulso. In
% corrispondenza di un impulso avrò che la funzione find ha creato una
% serie di numeri in successione. Esempio: se avessi due conteggi spuri e
% poi un impulso potrei avere una I del tipo (3,8,20,21,22,23,24,25...).
% Poichè conosco la durata dell'impulso d'interrogazione (perd/bin), trovo
% tutti i casi in cui si verifica che I si popola per (perd/bin) volte
% consecutive.
for i=2:n-floor(perd/bin);
    if I(i+floor(perd/bin))-I(i)==floor(perd/bin)&&I(i-1+floor(perd/bin))-I(i-
1)~=floor(perd/bin);
        k(N)=I(i);
        N=N+1;
    else w(N21)=I(i);
        N21=N21+1;
    end;
end;
% Calcolo la distanza tra l'inizio di impulsi successivi e la plotto.
% Poichè i neutroni vengono registrati anche dopo l'impulso
% d'interrogazione, può verificarsi in alcuni casi che un unico impulso
% venga visto come due, ma naturalmente la prima porzione registrerà un
% numero di conteggi elevato perchè relativo alla fase d'interrogazione
% mentre la seconda porzione registrerà un numero di conteggi nettamente
% inferiore perchè il generatore è ormai spento. Se si verifica tale
% condizione nel plot della distanza z vedrò delle distanze ben al di sotto
% della grandezza (perd/bind)
[km,kn]=size(k);
for j=1:kn-1;
    z(j)=k(j+1)-k(j);
end;
figure(2)
plot(1:kn-1,z);
% valuto la somma dei conteggi relativa a ciascuno 'sparo'
for t=1:kn-1;
    for q=0:floor(perd/bin)-1;
        P(t,q+1)=D(k(t)+q);
    end;
    S(t)=sum(P(t,:));
end;
%escludo tutti gli impulsi la cui somma è inferiore a una certa frazione
%della somma del primo impulso (y è la frazione, in genere basta impostare
%0.5)
h=find(S<(S(1)*y));
k(h)=[];
% calcolo di nuovo la distanza tra l'inizio di impulsi successivi e la
% plotto. Non dovrebbe più verificarsi ciò che accadeva e z2 dovrebbe
% oscillare attorno al valore (perd/bind)
[kkm,kkn]=size(k);

```

```

for jj=1:kkn-1;
    zz(jj)=k(jj+1)-k(jj);
    kk(jj)=k(jj);
end;
figure (3)
plot(1:kkn-1,zz);
x=floor(perd/bind);
for g=0:x-1;
    L(g+1)=sum(D(kk+g));
end;
LL(1:floor(10/bind))=L(x-floor(10/bind)+1:x);
LL(floor(10/bind)+1:x)=L(1:x-floor(10/bind));
figure (4)
plot(bin:bin:perd*10,log10(L));
figure (5)
plot(bin:bin:perd*10,log10(LL));
% apro il file con le date di arrivo dei neutroni
fileID2=fopen(filename2,'r');
A2=textscan(fileID2, '%s %s %f', 'headerlines', 5);
A2=A2{1,3};
A2=A2';
% scrivo le date in decine di us
A2=A2*10^5;
A2=sort(A2);
fclose(fileID2);
%scrivo il tempo di misura in decine di us
tmd2=tm2*10^5;
%scrivo l'ampiezza del bin in decine di us
bind2=bin2/10;
%dato che la funzione histcounts che userò dopo può essere utilizzata solo
%per numeri interi, devo approssimare le date a numeri interi.
%La funzione histcounts funziona come nell'esempio seguente:
%se ho una serie di date comprese tra 0 e 100 e voglio inserirle in bin
%di ampiezza 1, definirò come edges 0:100
%se la data generica x è tale che 0<=x<1 allora sarà inserita nel primo bin
%se 1<=x<2 allora sarà inserita nel secondo bin ...
%se 99<=x<=100 allora sarà inserita nell'ultimo bin.
%se la mia data è 1.025 io voglio che cada nel bin 1<=x<2
%affinchè ciò accada devo approssimarlo per DIFETTO a 1,
%se approssimassi per eccesso diventerebbe 2 e cadrebbe nel bin successivo.
B2=floor(A2);
% se i bin sono di ampiezza 1 (espressi in decine di us, quindi 10us)
% C che definisce gli edges della funzione histcounts avrà passo 1,
% se i bin sono di ampiezza 2 (espressi in decine di us, quindi 20us)
% C avrà passo 2, quindi se per esempio tm=60s tmd=60*10^5 bind=2
% C=0:2:60*10^5 ecc.
C2=0:bind2:tmd2;
D2=histcounts(B2,C2);
figure (6)
plot (D2);
%scrivo il peri
perd2=10^5/freq2;
% la funzione find restituisce le posizioni del vettore D in cui la
% componente è diversa da zero
I2=find(D2);
[m2,n2]=size(I2);
N2=1;

```

```

N22=1;
% stabilisco un criterio per trovare l'inizio di ciascun impulso. In
% corrispondenza di un impulso avrò che la funzione find ha creato una
% serie di numeri in successione. Esempio: se avessi due conteggi spuri e
% poi un impulso potrei avere una I del tipo (3,8,20,21,22,23,24,25...).
% Poichè conosco la durata dell'impulso d'interrogazione (perd/bin), trovo
% tutti i casi in cui si verifica che I si popola per (perd/bin) volte
% consecutive.
for i2=2:n2-floor(perd2/bin2);
    if I2(i2+floor(perd2/bin2))-I2(i2)==floor(perd2/bin2)&&I2(i2-
1+floor(perd2/bin2))-I2(i2-1)~=floor(perd2/bin2);
        k2(N2)=I2(i2);
        N2=N2+1;
    else w2(N22)=I2(i2);
        N22=N22+1;
    end;
end;
% Calcolo la distanza tra l'inizio di impulsi successivi e la plotto.
% Poichè i neutroni vengono registrati anche dopo l'impulso
% d'interrogazione, può verificarsi in alcuni casi che un unico impulso
% venga visto come due, ma naturalmente la prima porzione registrerà un
% numero di conteggi elevato perchè relativo alla fase d'interrogazione
% mentre la seconda porzione registrerà un numero di conteggi nettamente
% inferiore perchè il generatore è ormai spento. Se si verifica tale
% condizione nel plot della distanza z vedrò delle distanze ben al di sotto
% della grandezza (perd/bind)
[km2, kn2]=size(k2);
for j2=1:kn2-1;
    z2(j2)=k2(j2+1)-k2(j2);
end;
figure (7)
plot(1:kn2-1, z2);
% valuto la somma dei conteggi relativa a ciascuno 'sparo'
for t2=1:kn2-1;
    for q2=0:floor(perd2/bin2)-1;
        P2(t2, q2+1)=D2(k2(t2)+q2);
    end;
    S2(t2)=sum(P2(t2, :));
end;
%escludo tutti gli impulsi la cui somma è inferiore a una certa frazione
%della somma del primo impulso (y è la frazione, in genere basta impostare
%0.5)
h2=find(S2<(S2(1)*y2));
k2(h2)=[];
% calcolo di nuovo la distanza tra l'inizio di impulsi successivi e la
% plotto. Non dovrebbe più verificarsi ciò che accadeva e z2 dovrebbe
% oscillare attorno al valore (perd/bind)
[kkm2, kkn2]=size(k2);
for jj2=1:kkn2-1;
    zz2(jj2)=k2(jj2+1)-k2(jj2);
    kk2(jj2)=k2(jj2);
end;
figure (8)
plot(1:kkn2-1, zz2);
x2=floor(perd2/bind2);
for g2=0:x2-1;
    L2(g2+1)=sum(D2(kk2+g2));

```

```
end;
LL2(1:floor(10/bin2))=L2(x2-floor(10/bin2)+1:x2);
LL2(floor(10/bin2)+1:x2)=L2(1:x2-floor(10/bin2));
figure (9)
plot(bin2:bin2:perd2*10,log10(L2));
figure (10)
plot(bin2:bin2:perd2*10,log10(LL2));
figure (11)
plot(bin:bin:perd*10,log10(L),bin2:bin2:perd2*10,log10(L2));
figure (12)
plot(bin:bin:perd*10,log10(LL),bin2:bin2:perd2*10,log10(LL2));
toc;
```

## **Appendice C: Pubblicazioni relative alla ricerca presentata**