



## SOMMARIO

### MEZZO SECOLO DI VITA DEL REATTORE TRIGA MARK II E DI ATTIVITÀ SCIENTIFICA E DIDATTICA DEL LABORATORIO ENERGIA NUCLEARE APPLICATA (LENA) DELL'UNIVERSITÀ DEGLI STUDI DI PAVIA

*D. Alloni, M. Prata, G. Magrotti, A. Salvini*

### CARATTERIZZAZIONE DELLA COMPONENTE GAMMA NELLA FACILITY DI TRATTAMENTO CON TERAPIA NEUTRONICA E DOSIMETRIA PER ESPERIMENTI *IN VITRO* PRESSO IL REATTORE TRIGA DELL'UNIVERSITÀ DI PAVIA

*M. Ferrari*

### PREMIO PER LE MIGLIORI COMUNICAZIONI AL XVI CONVEGNO SIRR (PAVIA, 7-8 NOVEMBRE 2014)

### ASSEGNAZIONE DI QUATTRO 'TRAVEL AWARD' PER LA PARTECIPAZIONE DI GIOVANI SOCI AL 15TH ICRR (KYOTO, 25-29 MAGGIO 2015)

### MEZZO secolo di vita del reattore TRIGA Mark II e di attività scientifica e didattica del Laboratorio Energia Nucleare Applicata (LENA) DELL'Università degli studi di pavia

*D. Alloni\*, M. Prata, G. Magrotti, A. Salvini*

L.E.N.A. - Laboratorio Energia Nucleare Applicata, Università degli Studi di Pavia,  
Via Aselli 41, I 27100 Pavia, Italia -  
<http://www.unipv-lena.it>  
\*e-mail: [daniele.alloni@unipv.it](mailto:daniele.alloni@unipv.it)

### Introduzione

Il prossimo anno si celebrerà il 50° anniversario della prima criticità del Reattore di Ricerca TRIGA® Mark II del Laboratorio Energia Nucleare Applicata (LENA) dell'Università degli Studi di Pavia, raggiunta il 15 novembre 1965. Nei decenni passati, il Centro Servizi LENA, che gestisce il reattore di ricerca, ha contribuito, sia dal punto di vista tecnico che scientifico, ad innumerevoli attività che hanno toccato diversi campi della ricerca, con collaborazioni nazionali ed internazionali. Parte della bibliografia scientifica è stata presentata in occasione del 40° anno di

funzionamento del reattore e già allora raccoglieva più di 650 pubblicazioni. Negli anni successivi fino ad oggi l'attività del Centro è ancora largamente presente nel panorama delle facility di irraggiamento nazionali ed internazionali come supporto alla ricerca scientifica in svariati settori. Dopo un'introduzione storica, verranno di seguito presentate le principali attività scientifiche e didattiche svolte nel corso di questi decenni insieme ad una panoramica dei progetti e delle attività per i prossimi anni.

### I reattori di ricerca TRIGA: un percorso per l'impiego pacifico dell'energia nucleare

Meno di cinque anni dopo il dicembre del 1953, data a cui risale il discorso *Atoms for Peace* del presidente degli Stati Uniti Dwight D. Eisenhower presentato all'assemblea generale delle Nazioni Unite, fu concepito, costruito e messo in condizioni operative, presso la Divisione della General Atomic a San Diego, il TRIGA® (acronimo di *Training, Research, Isotope production, General Atomic*), un nuovo tipo di reattore intrinsecamente sicuro sviluppato per la ricerca nucleare, il training e la produzione di isotopi. Nel corso degli anni, la filiera TRIGA si è evoluta diventando in breve tempo il reattore di ricerca più diffuso al mondo, con livelli di potenza di esercizio fino a 14 MW, e progetti fino a 25 MW, e con una rete di circa 100 reattori in 24 paesi dei cinque continenti [1].

In un lasso di tempo praticamente impensabile per gli standard odierni, i primi tre reattori TRIGA furono messi in funzione nel 1958, appena due anni dopo che l'idea di un tale reattore fu originariamente concepita. Il brevetto TRIGA originale, "Reattore con coefficiente di temperatura pronto negativo", fu depositato il 9 maggio 1958, da Theodore Taylor, Andrew Mc Reynolds e

Freeman Dyson ed assegnato alla General Atomic il 31 marzo del 1964.

L'idea di un tale reattore di ricerca intrinsecamente sicuro risale all'estate del 1956, quando un gruppo di scienziati si riunì a San Diego alla divisione General Atomic della General Dynamics per aiutare la nuova società a definire i suoi primi prodotti. La storia di quella estate è descritta da Freeman Dyson nel suo libro del 1979, *Disturbing the Universe* [2]. Il mandato di questo gruppo di scienziati, lavorando sotto la supervisione di Edward Teller, era quello di progettare un reattore così sicuro che se fosse partito dalla sua condizione di arresto e tutte le sue barre di controllo fossero state istantaneamente rimosse, esso si sarebbe stabilito ad un livello costante di funzionamento (potenza) senza alcuna fusione del combustibile o il rilascio di prodotti di fissione. All'epoca la prevenzione di incidenti nei progetti di controllo dei reattori e dei relativi sistemi di sicurezza, era ancora in piena fase di studio e sviluppo, e la sfida era quella di progettare un reattore con sicurezza intrinseca garantita "dalle leggi della Natura" (per maggiori dettagli, si rimanda alla sezione Caratteristiche del Reattore) piuttosto che da sistemi elettromeccanici. Dai primi anni sessanta in poi, la diffusione dei TRIGA ha avuto riscontri favorevoli in molti paesi anche oltre oceano. I primi reattori di ricerca TRIGA furono ordinati per i centri nazionali di ricerca o Università in Austria, Brasile, Finlandia, Germania, Indonesia, Corea, Giappone, Jugoslavia, e un secondo reattore in Italia, nei primi anni sessanta, presso l'Università degli Studi di Pavia.

### **La nascita del Laboratorio Energia Nucleare applicata (LENA)**

Sul finire degli anni '50 l'Università degli Studi di Pavia poteva contare su un gruppo di ricerca di radiochimica fra i più preparati e all'avanguardia nel panorama nazionale e internazionale. Questo gruppo, guidato dal prof. Mario Rollier, installò presso l'Area di Radiochimica del Dipartimento di Chimica Generale, un complesso nucleare sottocritico (SM1), corredato da una serie di celle calde di manipolazione di radioisotopi alfa-emettitori di bassa e media attività. Con questa strumentazione condussero ricerche di interesse internazionale, ma ben presto ci si rese conto che i flussi del campo neutronico di SM1 erano troppo

bassi ( $10^4 - 10^5$  n/cm<sup>2</sup> s) per consentire l'ulteriore passo in avanti delle attività di ricerca. Nacque allora l'esigenza e l'idea di dotare l'Ateneo Pavese di una macchina capace di flussi neutronici più elevati, di interesse nel settore non solo della radiochimica, ma anche della fisica nucleare, produzione di radioisotopi e test dei materiali.



*Figura 1: Edificio del reattore nel 1966.*

Nel dicembre del 1962, l'allora Rettore prof. Luigi de Caro, firmò il contratto di acquisto di un reattore di ricerca TRIGA Mark II della potenza nominale in regime stazionario di 250 kW con la ditta fornitrice General Atomic di San Diego, California. In seguito alla stipulazione del contratto di acquisto, il Rettore propose la creazione del Laboratorio Energia Nucleare Applicata. L'istituzione del LENA fu resa possibile dalla stretta collaborazione dei professori delle Facoltà di Scienze, dal quale dipenderà sotto il profilo scientifico, pur mantenendo il carattere indipendente di Centro Servizi. Il laboratorio sorse sui terreni limitrofi ai Dipartimenti di Fisica, Chimica e Chimica-Fisica, i principali interessati all'impiego del reattore. Un sistema di posta pneumatica sotterranea collegava i laboratori di radiochimica del LENA con le celle calde di manipolazione dell'Area di Radiochimica SM1, un cordone ombelicale che sottolineò da subito la stretta sinergia fra il centro e i dipartimenti. Fin dalla sua nascita, caratteristica peculiare del LENA fu quella di gestire le apparecchiature che ne costituivano la dotazione, in particolar modo il reattore di ricerca TRIGA, organizzando il funzionamento in modo che esso potesse costituire uno strumento di ricerche, di studio e di

applicazione a richiesta degli istituti dell'Ateneo Pavese, ma anche di altri enti di ricerca pubblici e privati.

Nel luglio del 1963 venne completato il primo rapporto, contenente un'attenta analisi dei fattori ambientali del luogo in cui sarebbe stato poi installato il reattore, che venne inviato all'ente di controllo CNEN (Comitato Nazionale per l'Energia Nucleare). Nell'ottobre 1963 la General Atomic propose che il TRIGA di Pavia potesse essere utilizzato anche in modo pulsato. Il sovrapprezzo necessario per avere questa modalità di funzionamento fu ottenuto dal CAMEN (Centro Applicazioni Militari dell'Energia Nucleare), un istituto dipendente dal Ministero della Difesa, interessato all'utilizzo del reattore in questa modalità di funzionamento. Nello stesso mese venne redatto il programma dettagliato delle prove nucleari, approvato successivamente da CNEN.

Nel novembre del 1963 iniziarono i lavori per la costruzione dell'edificio (Figura 1) e nei primi mesi del 1964 la stesura del Rapporto Finale di Sicurezza, contenente una descrizione dettagliata degli impianti ausiliari ed una analisi dei rischi derivanti dall'esercizio del reattore. Nella sua forma finale il rapporto fu inviato a CNEN nel luglio 1964. Nel novembre 1964 iniziarono i lavori per la costruzione dello schermo biologico e il montaggio delle parti meccaniche. Nei giorni 20 e 28 ottobre 1965 arrivò a Pavia, in due carichi separati, il combustibile nucleare. Nei primi giorni di novembre il CNEN autorizzò a caricare il combustibile nucleare nel nocciolo.



Figura 2: Installazione del tank in alluminio del reattore che ospiterà il nocciolo.

Il caricamento del combustibile iniziò la mattina di lunedì 15 novembre 1965 e la prima criticità venne raggiunta alle ore 19:32, alla potenza di 0.75 W (Figura 3). Solo alcuni giorni dopo, il 20 novembre 1965 il reattore raggiunse la massima potenza di 250 kW in regime stazionario.

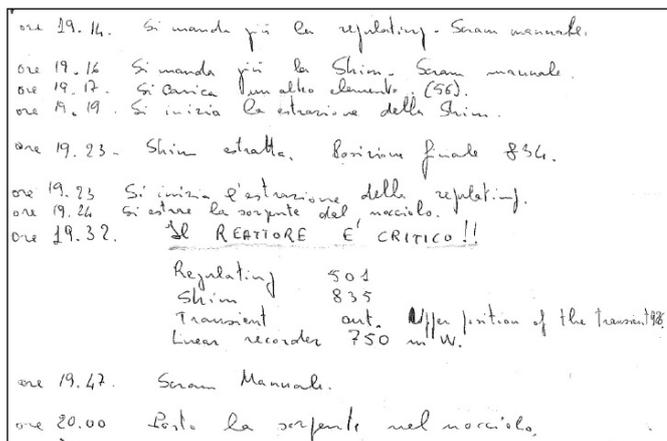


Figura 3: Pagina del Registro di Operazione del reattore del 15 novembre 1965.

A Pavia si era appena accesa la fiaccola della luce Cherenkov (Figura 4) che a tutt'oggi, a distanza di quasi 50 anni, illumina il nocciolo del TRIGA ad ogni criticità superiore ai 100 kW, e, nel suo piccolo il nucleare italiano.

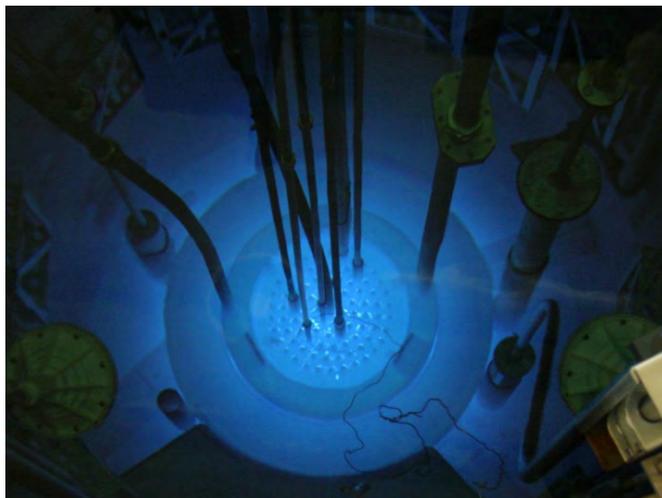


Figura 4. Luce Cherenkov che avvolge il nocciolo a 250 kW visibile attraverso i cinque metri di acqua dal top del reattore.

Vi è ancora oggi all'ingresso del LENA una foto (Figura 5) che ricorda quei momenti. Secondo la migliore tradizione inaugurata da Enrico Fermi si brinda con un bicchiere di vino.



Figura 5: Foto di gruppo con brindisi in occasione della prima criticità del reattore (1965).

Quella foto riporta alla memoria quelli che sono stati i personaggi chiave nel conseguimento di quel importante traguardo: portare a Pavia, presso l'Università, un reattore nucleare di ricerca sicuro, versatile, flessibile, per promuovere e sviluppare a Pavia le discipline nucleari.

Il 16 dicembre 1966 (Figura 6), ad un anno dalla prima criticità, il LENA venne ufficialmente inaugurato alla presenza del Ministro della Pubblica Istruzione, prof. Luigi Gui, del presidente del CNR, prof. Vincenzo Caglioti, del vicepresidente del CNEN, prof. Carlo Salvetti, e del Rettore, prof. Mario Rolla.



Figura 6: Inaugurazione del LENA (16 dicembre 1966) presso l'Università Centrale di Pavia.

### Due esperimenti storici

Negli anni '70 venne modificata la colonna termica del reattore per l'installazione dell'impianto Euracos II [3,4]. Esso era un impianto di irraggiamento appositamente costruito con una sorgente di neutroni di fissione alta intensità ( $6.1 \times 10^{11}$  n/s). Il sistema irraggiamento consisteva in un disco avente un diametro di 80 cm e realizzato in una lega di alluminio altamente arricchito in  $^{235}\text{U}$  posto davanti alla colonna termica del reattore TRIGA. E' stata una ricerca congiunta tra il CCR (Centro Comune di Ricerca) di Ispra (Va) e l'Università degli Studi di Pavia. La sorgente aveva una geometria ben definita e uno spettro di neutroni molto vicino a quello di fissione. Euracos II è stato progettato per gli studi di penetrazione di neutroni e  $\gamma$  nei materiali, fornendo sia una validazione sperimentale delle caratteristiche del materiale, ad esempio sezioni d'urto, e anche di codici computazionali. Negli anni '80, NADIR (Neutron Antineutron Detector Indirect Revelation), un esperimento di ricerca fondamentale, fu realizzato utilizzando il reattore del LENA per lo studio delle oscillazioni libere neutrone-antineutrone [5]. Questo esperimento è stato caratterizzato da una grande collaborazione tra diverse Università (Pavia, Roma "Tor Vergata", Sassari, Politecnico di Milano) e l'INFN.



Figura 7: Vista del reattore oggi.

### Caratteristiche del Reattore TRIGA del LENA

Il reattore in esercizio presso il LENA (Figura 7) ha una potenza nominale in regime stazionario di 250 kW e un flusso totale massimo di circa  $2 \times 10^{13}$  neutroni  $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ .

Dal punto di vista della sicurezza nucleare, i reattori TRIGA possiedono un'importante peculiarità legata al particolare tipo di combustibile nucleare impiegato, che è costituito da una lega metallica di uranio (arricchito al 19.95 % in  $^{235}\text{U}$ ) e zirconio, all'interno della quale viene fatto diffondere dell'idrogeno.

La presenza dell'idrogeno conferisce al combustibile nucleare anche la proprietà di moderatore (ossia la proprietà di ridurre la velocità dei neutroni prodotti dalla fissione nucleare) aumentando così la probabilità di autosostentamento della catena di fissione. Tale proprietà risulta dipendere in modo inversamente proporzionale dalla temperatura del combustibile e, di conseguenza, dalla potenza del reattore. Le elevate caratteristiche di sicurezza del reattore nascono proprio dalle proprietà fisiche del combustibile-moderatore, che dipendono a loro volta dalla particolare struttura reticolare (Figura 8) a base tetraedrica composta da quattro atomi di zirconio ai vertici e da un atomo di idrogeno al centro.

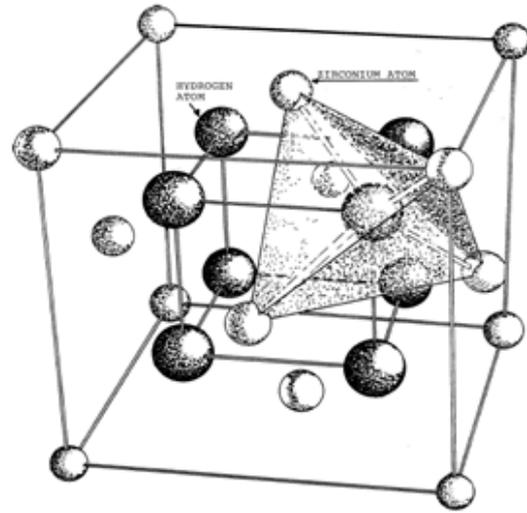


Figura 8: Struttura reticolare dell'Idruro di Zirconio (HZr). La presenza dell'idrogeno (nero) è visibile nella struttura tetraedrica insieme allo Zirconio.

Poiché, secondo il modello di Einstein, l'idrogeno nel reticolo cristallino dell'HZr possiede livelli energetici discreti con energia  $E=h\nu$  o multipli di tale valore (con  $h\nu$  dello stato fondamentale pari a 0.13 eV), se un neutrone possiede energia  $E_n > h\nu$  può cedere all'idrogeno del reticolo (struttura tetraedrica) uno o più quanti di energia ed essere termalizzato; viceversa, per energie del neutrone  $E_n < h\nu$ , il neutrone non può essere ulteriormente termalizzato ma ha una probabilità proporzionale a  $e^{-h\nu/kT}$  di ricevere uno o più quanti di energia dall'idrogeno del reticolo e quindi di essere accelerato [6]. L'effetto di questo comportamento è che un aumento di temperatura nel combustibile, anche repentino, induce automaticamente un aumento dell'energia dell'idrogeno nel reticolo, la riduzione dell'effetto di moderazione e conseguentemente della popolazione neutronica termica e della potenza del reattore. In altri termini, globalmente, l'aumento di temperatura induce una diminuzione della sezione d'urto di fissione per il neutrone sull' $^{235}\text{U}$ . Per questo motivo il reattore è considerato intrinsecamente sicuro relativamente agli incidenti di inserzione incontrollata di reattività, ad esempio un errore di manovra combinato ad un contemporaneo guasto del sistema di controllo.

Altre caratteristiche costruttive lo rendono intrinsecamente sicuro anche rispetto alle altre tipologie di incidenti nucleari quali la perdita di refrigerante (LOCA—Loss Of Coolant Accident) e il mancato raffreddamento. Per questi elevati gradi di sicurezza i reattori nucleari di ricerca TRIGA sono impianti "urbani", spesso costruiti nel centro delle città (come a Pavia, Vienna, Hannover e

Mainz) o nelle immediate periferie (come a Lubiana e a Pitesti).

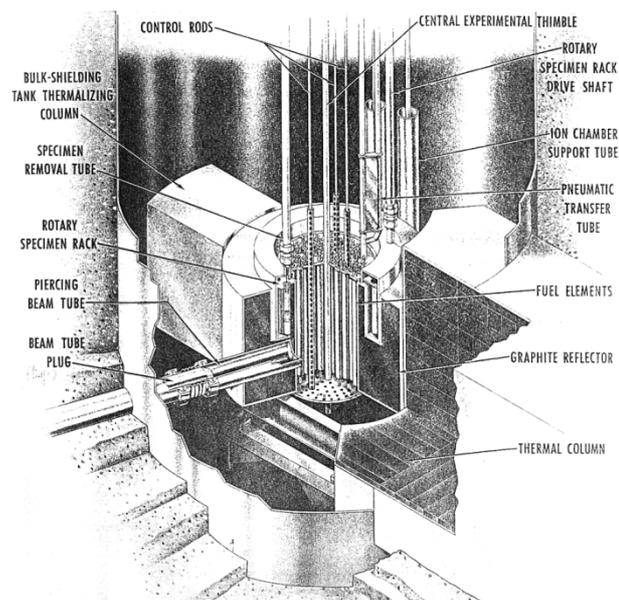


Figura 9: Disegno a sezione del nocciolo TRIGA Mark II (preso dalla documentazione tecnica General Atomic). Sono visibili gli elementi di combustibile, il riflettore, il portacampioni rotante e la grafite della colonna termica e uno dei canali orizzontali.

Il nocciolo del reattore (Figure 9 e 10) è posizionato a circa 60 cm dal fondo di un contenitore (tank) di forma cilindrica avente diametro di dimensioni pari a circa 2 m e altezza di 6 m e riempito con acqua demineralizzata, che svolge la funzione di fluido termovettore, moderatore e schermo verticale per le radiazioni.

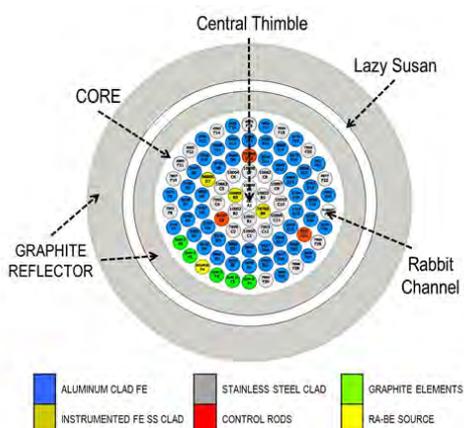


Figura 10: Mappa del nocciolo e legenda.

Potenza massima (stato stazionario)	250 kW
Flusso massimo (Canale Centrale)	$1.8 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$
Massa* di Fissile (235-U)	2.2 kg
* massa di $^{235}\text{U}$ nel combustibile per avere un coefficiente di moltiplicazione effettivo $k$ uguale a 1 (reattore critico)	corrispondenti a 62 elementi nuovi (prima carica di combustibile)
Coefficiente di temperatura (negativo) del combustibile-moderatore	$-1.2 \cdot 10^{-4} \Delta k/k \text{ C}^\circ \text{ a } 50^\circ \text{ C}$
Moderatore	HZr, H <sub>2</sub> O
Riflettore	Grafite
Termovettore	H <sub>2</sub> O
n° di barre di controllo	3
Temperatura del combustibile a 250 kW	230° C
Temperatura del termovettore a 250 kW	35-40° C

Tabella 1: Caratteristiche del reattore TRIGA di Pavia.

Il nocciolo del reattore TRIGA è interamente circondato da un riflettore radiale di grafite, a forma di anello e dello spessore di circa 30 cm, che ha il compito di ridurre le fughe di neutroni dal nocciolo. La geometria del nocciolo è caratterizzata da simmetria cilindrica e consiste in un reticolo di elementi (90 tra elementi di combustibile, elementi di grafite, barre di controllo e canali di irraggiamento) disposti su cinque anelli concentrici, intorno al canale centrale. Il controllo del reattore viene assicurato tramite l'inserimento e l'estrazione di tre barre di controllo costituite da materiali (carburo di boro o grafite borata) ad elevata sezione d'urto di cattura per neutroni termici. L'inserimento rapido (SCRAM) delle barre di controllo nel nocciolo provoca una drastica diminuzione della popolazione neutronica, rallentando la reazione a catena fino allo spegnimento del reattore. Il raffreddamento del nocciolo avviene per convezione naturale.

L'asportazione dal tank del reattore del calore prodotto avviene mediante tre circuiti di raffreddamento separati e due scambiatori di calore. Il circuito primario (sorgente calda) è alimentato dall'acqua del tank, mentre il terziario (sorgente fredda) dall'acqua della rete idraulica cittadina. Per maggiore sicurezza, un circuito intermedio chiuso previene qualsiasi possibile

contatto tra la sorgente calda e fredda. La temperatura dell'acqua del tank del reattore è mantenuta ad un valore costante mediante un sistema automatico di controllo (35-40 °C a 250 kW di potenza dopo qualche ora di funzionamento).

### **Posizioni di irraggiamento**

Il reattore è dotato di diversi canali d'irraggiamento in-core e out-core. I canali di irraggiamento in-core penetrano verticalmente nel nocciolo e sono il Canale Centrale e il Canale Rabbit.

Il Canale Centrale è posizionato rispettivamente al centro della griglia spaziatrice del nocciolo ed è utilizzato quasi esclusivamente per la realizzazione di analisi per attivazione neutronica e per la produzione di radioisotopi. Il Canale Rabbit è collegato con il Laboratorio di Radiochimica del LENA mediante un sistema di trasferimento pneumatico ad alta velocità che permette di analizzare anche campioni irraggiati contenenti radioisotopi con vita media piuttosto breve, tipicamente dell'ordine delle decine di secondi. Le postazioni di irraggiamento out-core sono il porta campioni rotante (Lazy Susan), i Canali Orizzontali (A, B, C e D), la Colonna Termica e la Colonna Termalizzante. La postazione "Lazy Susan" è costituita da un porta-campioni rotante posizionato nella parte superiore del riflettore di grafite e incapsulato in alluminio. Essa può accogliere contemporaneamente 80 campioni, viene utilizzata principalmente per la realizzazione di analisi per attivazione neutronica e per la produzione di radioisotopi, garantendo un irraggiamento uniforme dei campioni. I quattro Canali Orizzontali (A,B,C, e D) si estendono dal riflettore fino all'esterno dello schermo biologico. Tre sono canali radiali (Canale D "Penetrante", Canale A e Canale B), il quarto è un canale tangenziale (Canale C "Tangenziale") e vengono utilizzati principalmente per esperimenti di fisica di base e applicata.

La Colonna Termica consiste essenzialmente in una cavità di dimensioni circa di 2.5 m<sup>3</sup> (1.22x1.68x1.22 m) riempita di grafite, nella quale il flusso neutronico risulta isotropo e prevalentemente termico (rapporto sotto cadmio  $R_{Cd}>200$ ); recentemente essa è stata modificata ricavando, al suo interno, una cavità di

irraggiamento (dimensioni 20.5x40x103.5 cm<sup>3</sup>) con basso fondo gamma. La Colonna Termica comunica con una camera di irraggiamento che consente di alloggiare apparati di grandi dimensioni; due porte scorrevoli di calcestruzzo borato (shutter) permettono di isolarne una porzione. La Colonna Termica è utilizzata prevalentemente per attività di ricerca nell'ambito della BNCT (Boron Neutron Capture Therapy), terapia sperimentale per particolari tipologie di tumori. La Colonna Termalizzante è anch'essa costituita da una cavità riempita di grafite posizionata a 180° rispetto alla Colonna Termica e termina in una vasca riempita di acqua (Piscina) nella quale è possibile irraggiare anche campioni di notevoli dimensioni.

### **Dati operativi del Reattore**

Il reattore ha operato alla massima potenza di 250 kW per un totale di circa 35.000 ore nel periodo dal 1965 a oggi (con un totale di 686 impulsi a 250 MW effettuati fino a metà degli anni 80) ed il consumo calcolato di <sup>235</sup>U è stato nei 49 anni di esercizio pari a circa 370 grammi. Sono stati eseguiti complessivamente più di 11000 irraggiamenti.

In Tabella 2 sono riportati, a titolo di esempio, i principali dati operativi del TRIGA di Pavia negli ultimi tre anni (2011-2013). E' importante sottolineare che il minor numero di giorni di operazione del reattore in alcuni anni è dovuto a manutenzioni programmate o particolari operazioni legate alla costruzione di facility sperimentali che richiedono che il reattore resti in condizioni di arresto per giorni o addirittura alcune settimane. Al contrario, anni con un maggior numero di ore operative coincidono con l'inizio di nuovi esperimenti che richiedono ad esempio lunghi periodi di irraggiamento oppure misure di campi neutronici. A quasi 50 anni dalla prima criticità, tali dati rappresentano un eccellente risultato in termini di utilizzo se rapportato ad impianti simili installati a livello internazionale (fonte IAEA RR database,

<http://nucleus.iaea.org/RRDB/RR/ReactorSearch.aspx?rf=1>).

	Anno 2011	Anno 2012	Anno 2013
Giorni di funzionamento	72	107	107
Ore a 250 kW	376.4	324.9	337.7
MWD	3.92	3.38	3.52
Burn-up ( <sup>235</sup> U, gr)	4.13	3.56	3.70

Tabella 2: Dati operativi del TRIGA di Pavia nel periodo 2011-2013.

### Altre facilities di irraggiamento disponibili al LENA

Il reattore del LENA, è attualmente l'apparecchiatura di irraggiamento più importante e la più utilizzata per lo svolgimento delle attività di ricerca e di servizio; tuttavia il Centro dispone anche di altre sorgenti di radiazioni ed apparecchiature, tra le quali: un generatore RX industriale Gilardoni® da 350 kV/6 mA e 250 kV/12 mA, una sorgente di Cobalto-60 da 180Gy/h (attività  $5.6 \times 10^{12}$  Bq in data 31 dicembre 2013) e un ciclotrone da 18 MeV-80  $\mu$ A di protoni per la produzione di radioisotopi per uso medicale.

### Implementazione di un sistema di gestione integrato

Al fine di migliorare continuamente la sicurezza del reattore e la qualità della gestione dei processi e dei servizi erogati, il LENA ha deciso di implementare un sistema di gestione integrato in conformità sia con lo standard di sicurezza IAEA GS-R-3 (Safety Standard - The management system for facilities and activities, 2006) che con il sistema ISO 9001 (certificato dal 2010), per la fornitura di servizi di irraggiamento e di misure nucleari. L'implementazione del sistema di gestione integrato è stata inoltre scelta, come caso di studio, dalla IAEA, e presentata nel documento IAEA SAFETY REPORTS SERIES No. 75 "Implementation of a management system for operating organizations of research reactors", 2013.

### Attività di Servizio, Ricerca e collaborazioni del centro.

L'utilizzo del reattore consiste principalmente nella fornitura di servizi di irraggiamento e di misure nucleari, e nel supporto ad attività di ricerca di base e applicata, nonché nel campo dell'education & training specialistico.

Le tipologie di utenti del LENA possono essere raggruppati nelle seguenti categorie: Dipartimenti dell'Università degli Studi di Pavia, altre Università ed istituzioni nazionali ed internazionali, soggetti privati. Nelle sezioni seguenti vengono presentati i principali campi di Ricerca nei quali è coinvolto il reattore di Pavia, sia direttamente che come supporto tecnico a queste attività.

### Analisi per Attivazione Neutronica (NAA)

Sin dalla sua nascita, il LENA esegue Analisi per Attivazione Neutronica (NAA) [7]. Le analisi vengono eseguite con il metodo NAA, che permette il raggiungimento di una elevata sensibilità strumentale relativa con tempo di irraggiamento rapido. La tecnica è utilizzata come strumento in vari settori di ricerca e sviluppo, per esempio come prova e la caratterizzazione dei materiali [8], lo studio dei processi industriali nel settore siderurgico [9] e altri settori. Presso il LENA, la tecnica NAA ha trovato anche applicazioni in scienza forense (analisi dei guanti di paraffina), in campo alimentare (analisi del Grana Padano e del Brunello di Montalcino) e storico, quale la ricerca di tracce di veleno nei capelli di Napoleone.

### Radiochimica

L'Area Radiochimica del Dipartimento di Chimica di Pavia, svolge diverse attività di ricerca come lo sviluppo e l'applicazione di tecniche di analisi NAA, sia strumentali che distruttive. Nuovi metodi di separazione per la determinazione di elementi in traccia in matrici geologiche, cosmologiche e ambientali sono solo alcuni esempi delle attività in corso [10,11,12]. Un altro campo è l'applicazione dell'NAA in indagini archeologiche come ad esempio gli studi di provenienza. I materiali più comunemente studiati sono marmi, graniti, ossidiane, ceramica, bronzo e monete. L'NAA per attivazione neutronica è utilizzata anche per la

determinazione dello spettro di neutroni nel reattore TRIGA Mark II, per i metodi di datazione in archeologia e geologia.

### **Boron neutron capture therapy (BNCT)**

Da diversi anni la struttura è coinvolta nella ricerca per le applicazioni mediche di irraggiamento neutronico utilizzando diverse tecniche di analisi; in particolare, la BNCT, occupa una quota sostanziale del tempo di funzionamento del reattore. Per la prima volta nel mondo, la BNCT è stata applicata con un protocollo di auto-trapianto presso il reattore TRIGA in Pavia. L'idea era quella di trattare un intero organo affetto da metastasi multiple non operabili. La terapia è basata sulla reazione di cattura di neutroni da parte del boro mediante la reazione  $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ . Gli irraggiamenti con neutroni termici per la BNCT vengono effettuati in una piccola camera alloggiata nella colonna termica modificata del reattore, la quale è stata utilizzata per eseguire la terapia sul fegato espantato di pazienti affetti da metastasi multiple. L'idea era di sfruttare questo meccanismo irradiando tutto il fegato affetto da metastasi da carcinoma del colon, una patologia che causa la morte dei pazienti in pochi mesi a causa di insufficienza epatica, anche se il tumore primario viene facilmente rimosso e altre metastasi sono presenti. Dopo somministrazione boro, il fegato è stato espantato e irradiato per circa 10 minuti nella colonna termica del reattore in modo da garantire la migliore uniformità di flusso neutronico possibile all'interno dell'organo. Dopo l'irraggiamento il fegato è stato nuovamente impiantato nel paziente. Due trattamenti sono stati eseguiti nel 2001 e nel 2003. Questo protocollo ha ispirato altri gruppi di ricerca internazionali, al fine di applicare la BNCT in altre strutture e ad altri organi espantabili. Per ulteriori dettagli si vedano ad esempio le pubblicazioni [13,14,15].

### **Ricerca Metrologica**

L' Area di Radiochimica di Pavia (Dipartimento di Chimica) e di Spettroscopia dell'INRIM (Istituto Nazionale di Ricerca Metrologica) si occupa dello studio, lo sviluppo e l'applicazione di metodi radioanalitici, nucleari e spettroscopici per la misurazione di quantità di sostanze per interconfronto, certificazione e ricerca applicata in

vari campi come ad esempio, sanità, ambiente, l'energia e materiali [16,17,18,19]. Le attività di ricerca dell'INRIM sono di frequente svolte con il reattore di Pavia. In particolare, è stato sviluppato un metodo mediante NAA per la determinazione degli elementi maggiori e in traccia in diversi tipi di matrice. In metrologia, la procedura di attivazione viene utilizzata per la certificazione dei materiali di riferimento distribuiti da istituzioni come NIST (National Institute of Standards and Technology, USA), IAEA (International Atomic Energy Agency), IRMM (Istituto Italiano dei Materiali e Misure di riferimento). Tutte le attività di misurazione e ricerche effettuate da INRIM includono una fase di irraggiamento di uno o più campioni al LENA.

### **Geoscienze**

L'attività di ricerca nel campo del metodo di datazione mediante tracce di fissione [20,21] dell'Istituto di Geoscienze e Georisorse (IGG-CNR) viene effettuata attraverso irraggiamento neutronico del campione in canali sperimentali del reattore. Le attività di ricerca del Laboratorio di Geocronologia (Università di Pisa) riguardano anche la determinazione dell'età dei minerali attraverso irraggiamento neutronico, la misurazione del flusso e le concentrazioni isotopiche ( $^{40}\text{Ar}$ ,  $^{39}\text{Ar}$ ,  $^{38}\text{Ar}$ ,  $^{37}\text{Ar}$ ,  $^{36}\text{Ar}$ ) per spettrometria di massa [22,23,24,25,26].

### **Produzione di radioisotopi**

Il Tecnezio-99 metastabile ( $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ) è il marcatore radioattivo più importante e ampiamente utilizzato in medicina nucleare. Dal 2009 la comunità scientifica internazionale ha messo in evidenza il problema critico sulla possibile carenza nel prossimo futuro di fornitura di  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ . In questo contesto si cercano di scoprire metodi di produzione del radioisotopo diversi da quelli tipici mediante reattori nucleari. Una delle possibilità è quella di sostituire il metodo basato sul reattore con sistemi basati su acceleratori. In questo contesto, il LENA, nel triennio 2012-2014, ha partecipato al progetto di ricerca APOTEMA (Accelerator-driven Production Of Technetium Molybdenum for Medical Applications) di CSN5 INFN (Istituto Nazionale di Fisica Nucleare) con il supporto tecnico, al fine di scoprire itinerari alternativi di

produzione  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  mediante acceleratore, in particolare per le fasi di separazione radiochimica del  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  dal Mo attivato utilizzando la tecnica MEK in collaborazione con l'Unità di Radiochimica del Dipartimento di Chimica Pavia. Il progetto APOTEMA ha coinvolto anche le sezioni INFN di Legnaro, Padova, Milano e Ferrara. Accanto al progetto sopracitato, il LENA prepara anche alcuni radionuclidi usati come traccianti per esperienze di ricerca nel campo del trattamento dei rifiuti. I principali radionuclidi prodotti sono  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ,  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{60}\text{Co}$ .

### Fisica del Reattore ed Ingegneria Nucleare

Il LENA in ambito INFN, ha offerto supporto tecnico e dato contributo scientifico a diversi progetti di ricerca. Attualmente partecipa alle attività di due progetti svolti in collaborazione con altre Università (Università degli Studi di Milano Bicocca, Politecnico di Milano), relative alla fisica del reattore e all'ingegneria nucleare, nelle quali l'utilizzo del reattore gioca un ruolo sostanziale. I progetti ARCO (CSN5, Analysis of Reactor Core, chiuso nel 2013) e Nuc-Smile (Nuclear Subcritical Multiplication Installation for Lead Experiment, anch'esso chiuso nel 2013) hanno seguito linee di ricerca riguardanti questioni chiave per la progettazione delle centrali nucleari di nuova generazione e cicli del combustibile per lo sviluppo di metodi computazionali flessibili per la determinazione dei parametri fondamentali quali la criticità, la distribuzione di flussi di neutroni, l'evoluzione temporale della composizione combustibile nucleare (cinetica di veleni, burn-up, produzione e trasmutazione degli attinidi e dei frammenti di fissione, isotopi di decadimento). L'obiettivo di questi progetti è la validazione di specifici codici di calcolo per confronto con misure dirette effettuate presso il reattore TRIGA [27] e il complesso nucleare sottocritico SM1 dell'Università degli Studi di Pavia [28].

Nell'ambito dell'evoluzione dell'esperimento ARCO si sono individuati tutta una serie di strumenti di analisi e tecniche di misura che hanno permesso la pressoché completa caratterizzazione del reattore di ricerca TRIGA Mark II del LENA. Al fine di utilizzare ed ottimizzare gli strumenti sviluppati anche per tematiche rivolte ad una nuova generazione di reattori veloci (Gen-IV) o a sistemi moltiplicanti sottocritici pilotati (o meno) da

acceleratori (ADS – Accelerator Driven Systems) risulta di sostanziale importanza analizzare ed utilizzare la componente veloce del reattore TRIGA per studi specifici sulle reazioni, sulle sezioni d'urto e sul burn-up che possa ricondurre alle condizioni operative che si sperimenteranno all'interno di queste nuove tipologie di macchine. Allo stesso tempo gli studi sul TRIGA hanno mostrato come l'integrazione dei modelli multi-fisici che inglobino al loro interno i vari aspetti quali la neutronica e la termo-idraulica (ad esempio) risulterà di cruciale importanza per meglio comprendere tutte le fasi di comportamento, sia statiche che dinamiche, che i reattori di nuova generazione avranno nel loro normale ciclo di funzionamento.

Partendo dai risultati ottenuti nell'esperimento ARCO che ha portato ad una caratterizzazione completa del reattore TRIGA di Pavia utilizzando diversi dispositivi di analisi, il nuovo progetto di ricerca INFN\_E ARCO\_FAST per i prossimi anni (2014-2016) trasferirà questi strumenti di calcolo su argomenti come i reattori veloci (GEN-IV) e ADS. Per le applicazioni sperimentali sarà caratterizzata ed utilizzata la componente veloce del flusso neutronico del TRIGA per lo studio di sezioni d'urto e del burn-up relativamente a questi nuovi tipi di reattore. Studi di neutronica e termoidraulica saranno adottati per prevedere il comportamento statico e dinamico di tali complessi. Al fine di raggiungere gli obiettivi del progetto una nuova struttura che utilizza il canale D del reattore (canale orizzontale) è in fase di caratterizzazione. In essa è maggiore la componente veloce del flusso di neutroni. Un'altra collaborazione scientifica è stata svolta con ENEA (Agenzia nazionale per le nuove tecnologie, l'energia e lo sviluppo economico sostenibile), nel quadro "Nuovo nucleare da fissione: collaborazione e sviluppo delle competenze nel settore nucleare internazionale". L'obiettivo principale è stato la misura di grandezze macroscopiche per la sperimentazione di modelli, codici e dati nucleari nei reattori di ricerca. Le attività svolte utilizzando il reattore TRIGA Mark II, hanno fornito una validazione di una metodologia per studiare l'evoluzione temporale della composizione di combustibile nucleare mediante le simulazioni Monte Carlo e misure dirette di grandezze macroscopiche (ad esempio valutazione dei tassi di produzione e trasmutazione

degli elementi transuranici e prodotti di fissione per irraggiamento di materiale fissile/fertile nel reattore). Recentemente il Politecnico di Milano ha effettuato uno studio sulla riproduzione del comportamento dinamico del TRIGA Mark II su tutta la gamma di potenza operativa (cioè 0 - 250 kW) utilizzando un approccio zero-dimensionale [29]. In questo lavoro è stato considerato l'accoppiamento tra neutronica e termoidraulica a circolazione naturale.

### **Risposta alle radiazioni di dispositivi elettronici**

Il gruppo CMS di Pavia (Dipartimento di Fisica e INFN) ha avviato una serie di misure presso il LENA sull'elettronica di front-end utilizzata dal rivelatore di muoni dell'esperimento CMS (Compact Muon Spectrometer) del CERN (Centro Europeo per la Ricerca Nucleare) [30]. Lo scopo è quello di comprendere la vita media e il comportamento del front-end dei rivelatori sottoposti a flusso elevato di radiazioni, in particolare in vista del futuro upgrade del rivelatore.

### **Analisi Ambientali**

Misurazioni ambientali, consulenza in radioprotezione e ricerche nel campo della radioattività naturale ed artificiale sono servizi forniti quotidianamente da LENA. I servizi sono eseguiti sia come monitoraggio di siti nucleari anche in affiancamento a istituzioni nazionali o aziende private [31]. Le principali aree di interesse sono: gestione dei rifiuti, inclusi i rifiuti radioattivi; bonifica e ripristino ambientale, prodotti agricoli e alimentari, certificazione dei materiali da costruzione, monitoraggio delle acque e percolato, radioattività in aria.

Il laboratorio LENA partecipa con successo ogni anno ad interconfronti in una rete di laboratori internazionali promossi dalla IAEA, con l'obiettivo di rafforzare la competenza e l'affidabilità dei laboratori partecipanti.

### **Il reattore di ricerca di Pavia in ambito internazionale**

L'IAEA promuove la creazione di reti, coalizioni e collaborazioni internazionali per migliorare l'utilizzo dei reattori di ricerca in termini di

efficienza e sostenibilità. Il concetto di coalizione/network consiste nel mettere in atto forme di cooperazione fra gli operatori dei reattori di ricerca, tra gli enti utilizzatori del reattore e altri soggetti interessati. In questo contesto, il LENA è presente nel Mediterranean Research Reactor Network (MRRN) creato dalla IAEA e nel Global Research Reactor TRIGA Network (GTRRN).

I Coordinate Research Projects (CRP) promossi dalla IAEA sono un altro aspetto importante nel campo della cooperazione internazionale e la condivisione delle conoscenze. Il LENA è attualmente coinvolto in due CRP. Ad esempio, nel progetto "Accelerator-based alternatives to Non-HEU Production of Mo-99/Tc-99m" con l'Area di Radiochimica di Pavia, il LENA svolge attività di ricerca basata sulla grande esperienza maturata negli anni nella tecnica di separazione e purificazione degli isotopi prodotti mediante reattore. L'obiettivo principale di questo progetto di ricerca è quello di indagare metodi efficaci e veloci per la separazione di  $^{99m}\text{Tc}$  da target di  $^{100}\text{Mo}$  e per recuperare il residuo altamente costoso di  $^{100}\text{Mo}$ . L'altro CRP, più incentrato sugli aspetti di gestione in sicurezza del reattore, verte sull'applicazione di tecniche di manutenzione avanzata sviluppate attraverso tecniche di monitoraggio online dei sistemi, con l'obiettivo dell'esercizio dell'impianto con sempre più elevati standard di affidabilità e sicurezza. Le attività coinvolgono in parte anche il dipartimento di ingegneria elettrica di Pavia, con il quale si stanno studiando particolari metodologie di diagnostica sui sistemi ausiliari del reattore.

A metà del 2013, il LENA ha ospitato la missione OMARR (Operation & Maintenance Assessment for Research Reactors) con esperti della IAEA e di altri impianti simili, per quanto riguarda attività di peer-review sugli aspetti di esercizio e manutenzione del reattore. È stata una missione "apripista" per un piccolo reattore di ricerca di dimensioni come LENA, offrendo la possibilità di valutare i processi operativi e di manutenzione e di condividere molteplici esperienze. Sulla base dei risultati positivi della missione di cui sopra, il LENA ha ricevuto una ulteriore missione IAEA (INSARR, Integrated Safety & Assessment for Research Reactors) sulla valutazione della sicurezza integrata per reattori di ricerca. Tale missione mirava a valutare l'impianto dal punto di vista della sicurezza nucleare, con l'obiettivo generale di migliorare continuamente l'efficienza e

l'efficacia di tutti i processi legati alla gestione della sicurezza della struttura.

### **Istruzione e formazione**

Il settore nucleare (industria, autorità governative, organizzazioni di Ricerca e Sviluppo e le istituzioni educative) ha la costante necessità di personale altamente qualificato. Elevati standard di prestazione sono attesi per la forza lavoro impiegata in questo settore e la loro specializzazione è una questione fondamentale per garantire e mantenere livelli di efficienza e di sicurezza elevata. L'Università di Pavia, grazie alla profonda esperienza maturata in quasi cinquanta anni di funzionamento del reattore e al contesto accademico in cui si è operato, è in grado di offrire una vasta gamma di programmi di istruzione e formazione, a livello nazionale ed internazionale, che coprono la maggior parte dei temi legati al settore nucleare: dalla cultura della sicurezza e radioprotezione alla manutenzione di un reattore di ricerca, alla gestione qualità. I corsi di formazione sono tenuti da tecnici altamente qualificati del LENA, o da docenti dell'Università di Pavia, o sono una parte del percorso formativo di altre Università o istituzioni che contribuiscono a corsi di Ingegneria Nucleare, Fisica, Master internazionali con tematiche quali fisica dei reattori, radiochimica, radioprotezione e strumentazione e misure nucleari. Nell'anno accademico 2012/2013, ad esempio, il laboratorio ha ospitato la parte pratica dei seguenti corsi:

- Tirocinio teorico-pratico sull' esercizio dell'impianto per rappresentanti dell'Ente di Controllo Giordano nell'ambito di un progetto finanziato EU svolto in cooperazione tra LENA e soggetti privati (NSC Project JO3.01/10-JO/RA/02) "Provision of assistance related to developing and strengthening the capabilities of Jordan Nuclear Regulatory Commission (JNRC)
- Radiochimica (Università di Pavia)
- Ingegneria Nucleare (Politecnico di Milano): esercitazioni pratiche di cinetica e controllo del reattore.
- Corso "Cellular Radiobiology" (Università di Pavia): panoramica sulla struttura e il suo utilizzo
- Master Internazionale (TNRI – Tecnologie Nucleari e Radiazioni Ionizzanti) per gli

studenti dell'Istituto di Studi Superiori di Pavia (IUSS)

- Lezioni di fisica dei neutroni per il corso di Radiobiologia (Dipartimento di Fisica)
- Master in Adroterapia (organizzato dalla Fondazione CNAO - Centro Nazionale di Adroterapia Oncologica): vari argomenti legati alla fisica dei neutroni e loro applicazioni.
- Corso di Radiobiologia DOREMI/Euratom/UniPV (Dipartimento di Fisica)

Nel campo della formazione è inclusa anche la preparazione (tirocinio) per i candidati all'esame per l'abilitazione professionale di Esperto Qualificato.

Oltre alle attività sopra descritte rivolte a studenti universitari e professionisti, da molti anni il LENA offre visite guidate al reattore. Questa attività si rivolge in particolare agli studenti delle scuole superiori, al fine di promuovere la cultura nucleare e di fornire informazioni tecnico-scientifiche a coloro che andranno a scegliere una istruzione superiore nel settore nucleare. Il numero medio di visitatori all'anno è di circa 1500 studenti, con attività didattiche per circa 200 ore/anno.

### **Alcuni sviluppi futuri: utilizzo dei canali orizzontali del reattore**

Recentemente, è stato eseguito uno studio di fattibilità dal Dipartimento di Fisica Pavia su un fascio collimato di neutroni monocromatico (proveniente dal canale penetrante del reattore) per la diffrattometria neutronica. Le simulazioni sono state eseguite mediante codici Monte Carlo per testare i diversi elementi necessari per ottenere un flusso di neutroni sufficiente nella posizione di posizionamento del campione. La migliore configurazione (guide di neutroni, geometrie e materiali) permette di ottenere un flusso di neutroni di  $8 \times 10^5 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  in campioni di dimensioni tipiche in esperimenti di diffrattometria su polveri [32].

Nel 2011 è stato effettuato uno studio preliminare per la realizzazione di una facility per la prompt-gamma [33]: tra i canali orizzontali del reattore, il più adatto per questa attività è risultato il canale B radiale, in cui il riflettore di grafite termalizza i neutroni, rendendo le componenti epitermica e veloce inferiori rispetto al flusso dei termici negli altri canali. Il flusso termico alla bocca del canale, nella configurazione originale del canale, è pari a

$10^8$  neutroni  $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ . E' stato studiato anche l'inserimento di appositi filtri in modo da ottenere un fascio di neutroni adatto agli scopi della PGNAA (Prompt Gamma Neutron Activation Analysis). La costruzione della struttura è prevista per il prossimo futuro. Alcuni aspetti pratici della costruzione sono ancora in fase di studio.

Nel 2015, il LENA entrerà a far parte del progetto INFN SPES (Selective Production of Exotic Species, sezione di Pavia), come facility di irraggiamento ove poter testare alcuni dei materiali destinati al progetto.

Anche in ambito aerospaziale, il LENA ha recentemente firmato con una azienda del settore, un contratto di ricerca al fine di stimare il danno da radiazione (in termini di dose) su alcuni tipi di propellenti plastici per nuovi sistemi innovativi di de-orbiting satellitare. Sebbene l'ambiente spaziale sia molto particolare, in termini di radiazione (sia per tipo di componente che per spettro energetico), il LENA offre una serie di strutture sperimentali e competenze con le quali è possibile effettuare studi preliminari per progetti all'avanguardia.

## Conclusioni

Visitando il LENA ci si accorge come l'impianto ha mantenuto inalterate, se non migliorate, le caratteristiche originarie di sicurezza e versatilità che lo rendono ancora oggi quanto mai al passo con i tempi e idoneo per lo svolgimento di programmi di ricerca di base o applicata.

Le attività in corso e quelle programmate a breve o medio periodo fanno intravedere ancora un lungo periodo di utilizzo del reattore TRIGA Mark II, quale strumento insostituibile, per lo meno attualmente, per lo svolgimento di attività di ricerca e didattica in molti campi del sapere scientifico e/o tecnologico.

Per il 50° compleanno del LENA e del suo reattore, è in fase di organizzazione un convegno che raccoglierà contributi tecnico-scientifici da molti degli utilizzatori del reattore e da enti nazionali ed internazionali con i quali il LENA da sempre collabora. Per ulteriori informazioni si invita a visitare il sito <http://www.unipv-lena.it/>, nel quale verranno pubblicate le principali informazioni sul convegno.

## Referenze

1. D. M. Fouquet, J. Razvi, W. L. Whittemore (2003), *TRIGA research reactors: A pathway to the peaceful applications of nuclear energy*, *Atoms for Peace Special Section*. Nuclear News, 46-96.
2. F. Dyson (1979), *Little Red Schoolhouse, Disturbing the Universe*. Basic Books.
3. R. Nicks, G. Perlini, H. Rief (1988), *Fission neutron penetration in iron and sodium I. activation measurements*. Ann. Nucl. Energy, **15**(9), 457-469.
4. G. Perlini, H. Rief (1989), *Fission Neutron Penetration in iron and sodium II. Neutron Spectrometry*. Ann. Nucl. Energy **16**(4),189-201.
5. G. Bressi, E. Calligarich, M. Cambiaghi, R. Dolfini, M. Genoni, A. Gigli Berzolari, A. Lanza, G. Liguori, F. Mauri, A. Piazzoli, S.P. Ratti, P. Torre et al. (1989) *Search for free neutron-antineutron oscillations*. Z. Phys. C - Particles and Fields **43**, 175-179.
6. M.T. Simnad, F. C. Foushee, G. B.West (1976), *Fuel elements for pulsed TRIGA research reactors*. *Nuclear Technology*; **28** (1), 31-56.
7. Z.B. Alfassi (1990), *Activation Analysis, Volumes I and II*. CRC Press: Boca Raton, FL.
8. M. Clemenza et al. (2011), *Ultra-sensitive neutron activation measurements of  $^{232}\text{Th}$  in copper*. Topical Workshop on Low Radioactivity Techniques - LRT 2010, AIP Conference Proceedings 1338, 37-43, American Institute of Physics; ISBN 978-0-7354-0892-0.
9. B. Grassi et al. (2006), *Determination of trace elements in metallic materials by neutron activation analysis*. Journal of Physics: Conference Series **41**, 288-295.
10. G. Bigazzi et al. (2005), *The Italian obsidian sources*. *Archeometriai Műhely* **1**, 1-12.
11. M. Botto et al. (2005), *Caratterizzazione di anfore fenicie e puniche mediante analisi archeometriche Mediterranee*. Quaderni annuali dell'Istituto di Studi sulle Civiltà italiche e del Mediterraneo antico, **2**, 28-56.
12. A. Arias (2006), *New data for the characterisation of Milos obsidians*. J. Radioanal. and Nucl. Chem. **268**, 371-386.
13. A. Zonta et al. (2009), *Extra-corporeal liver BNCT for the treatment of diffuse metastases: What was learned and what is still to be learned*. Appl. Radiat. and Isot. **67**, 67-70.
14. S. Altieri et al. (2008), *Neutron autoradiography imaging of selective boron uptake in human metastatic tumours*. Appl. Radiat. and Isot. **66**, 1850-1855.
15. S. Geninatti-Crich et al. (2011), *Magnetic Resonance Imaging guided Neutron Capture Therapy by a dual Gd/B agent targeted to tumor cells via upregulated LDL transporters*. Chemistry-A European Journal, **17** (30), 8479-8486.
16. L. Bergamaschi, et al. (2005), *Determination of trace elements by INAA in urban air particulate matter and transplanted lichens*. J. Radioanal. Nucl. Chem., **263** (3), 745-750.
17. L. Giordani et al. (2005), *Neutron activation analysis in forensic investigations: trace elements characterization of cigarettes*, J. Radioanal. Nucl. Chem., **263** (3), 739-744.
18. G. D'Agostino et al. (2013), *Instrumental neutron activation analysis of an enriched  $^{28}\text{Si}$  single-crystal*. J. Radioanal. Nuc. Chem., *accepted* (25.07.13).
19. G. D'Agostino et al. (2012), *Elemental characterization of the Avogadro silicon crystal WASO 04 by neutron activation analysis*, Metrologia, **49**, 696-701.
20. V. Olivetti et al. (2013), *Tectonic and climatic signals from apatite detrital fission-track analysis of the Cape Robert Project core records, south Victoria Land, Antarctica*. Tectonophysics, **594**, 80-90.
21. M. L. Balestrieri et al. (2009), *Detrital fission-track-compositional signature of an orogenic chain-hinterland basin system: the case of the late Neogene Quaternary Valdelsa basin*

- (Northern Apennines, Italy). *Sedimentary Geology*, **289**, 159–168.
22. G. Di Vincenzo, R. Palmeri (2001),  *$^{40}\text{Ar}$ – $^{39}\text{Ar}$  investigation of high-pressure metamorphism and the retrogressive history of mafic eclogites from the Lanterman Range (Antarctica): evidence against a simple temperature control on argon transport in amphibole*. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, **141**, 15–35.
23. G. Di Vincenzo et al. (2001), *Evidence of a close link between petrology and isotope records: constraints from SEM, EMP, TEM and in situ  $^{40}\text{Ar}$ – $^{39}\text{Ar}$  laser analyses on multiple generations of white micas (Lanterman Range, Antarctica)*. *Earth and Planetary Science Letters*, **192**, 389–405.
24. G. Di Vincenzo, et al. (2003), *The effect of chlorite interlayering on  $^{40}\text{Ar}$ – $^{39}\text{Ar}$  biotite dating: an  $^{40}\text{Ar}$ – $^{39}\text{Ar}$  laserprobe and TEM investigation of variably chloritised biotites*. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, **145**, 643–658.
25. M. A. Laurenzi et al. (2007) *New constraints on ages of glasses proposed as reference materials for Fission-Track dating*. *Geostandards and Geoanalytical Research*, **31**, 105–124.
26. G. Bigazzi et al. (2008), *Multi-method approach to dating glass: the case of Basiluzzo Islet (Aeolian archipelago, Italy)*. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, **177**, 244–250.
27. A. Borio Di Tigliole et al. (2014), *TRIGA reactor absolute neutron flux measurement using activated isotopes*, *Prog. Nucl. Ener.* **70**, 249–255.
28. D. Alloni et al. (2013), *Neutron flux characterization of the SM1 sub-critical multiplying complex of the Pavia University*, *Prog. Nucl. Ener.*, **67**, 98–103.
29. A. Cammi et al. (2013), *A zero dimensional model for simulation of TRIGA Mark II dynamic response*, *Prog. Nucl. Ener.* **68**, 43–54.
30. M. Abbrescia et al. (2002), *Neutron-induced Single Event Upset on the RPC front-end chips for the CMS experiment*, *Nuc. Instr. Meth. A*, **484**, 494–502.
31. S. Manera et al. (2012), *Japanese Green Tea radioactivity measurements, radiochemical extraction yield determination and some radioprotection considerations*. NRC8 - International Conference on Nuclear and Radiochemistry - Session 13 - radioactive elements in the environmental (submitted to *Journal of Life Sciences and Biotechnology* (ISSN 2155-8019)).
32. L. Reversi (2012), *Studio computazionale per la realizzazione di un fascio di diffrazione neutronica presso il reattore TRIGA di Pavia*. MSc Thesis University of Pavia.
33. S. Stella (2011), *Design of a Prompt Gamma Neutron Activation Analysis (PGNAA) System for Boron Neutron Capture Therapy (BNCT) using Monte Carlo code*, PhD Thesis, Pavia.

# CARATTERIZZAZIONE DELLA COMPONENTE GAMMA NELLA FACILITY DI TRATTAMENTO CON TERAPIA NEUTRONICA E DOSIMETRIA PER ESPERIMENTI *IN VITRO* PRESSO IL REATTORE TRIGA DELL'UNIVERSITA' DI PAVIA

**Matteo Ferrari**  
email: m.ferrari@msn.com

## Introduzione

La caratterizzazione sperimentale del fondo gamma della facility del reattore Triga dell'Università di Pavia, obiettivo principale di questo lavoro, si colloca nell'ambito della ricerca sulla Boron Neutron Capture Therapy. La BNCT è una terapia binaria antitumorale basata sulla possibilità di arricchire selettivamente le cellule tumorali con atomi di  $^{10}\text{B}$ . Irraggiando quindi con un opportuno campo di neutroni viene indotta la reazione di cattura  $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$  in modo selettivo nelle cellule ricche di boro. Sfruttando l'elevata sezione d'urto del processo (3837 b per neutroni termici) e considerando che il *range* dei prodotti carichi nel tessuto è paragonabile al diametro cellulare, la dose viene depositata localmente nel tumore tramite componenti ad alto LET, risparmiando i tessuti sani circostanti. La BNCT risulta essere un'opzione terapeutica particolarmente utile nel trattamento di carcinomi a crescita infiltrativa e metastatica, per i quali le tecniche di trattamento convenzionali risultano inefficaci o inattuabili[1]. Gli studi condotti a Pavia in questo ambito sono focalizzati sui tumori del polmone, del fegato e sull'osteosarcoma[2]. In questo tipo di contesto, una caratterizzazione quanto più accurata possibile di tutte le componenti del campo di radiazione presenti nella facility di irraggiamento è di importanza centrale.

All'interno della colonna termica del reattore Triga, composta da grafite, è stato ricavato un canale di aria di dimensioni 20x40x101 cm, allo scopo di realizzare una facility di irraggiamento adatta alla BNCT. Due muri di bismuto di spessore 10 cm sono stati interposti tra il *core* e la cavità per sopprimere il fondo gamma spurio proveniente dal nocciolo stesso. I neutroni prodotti dalle reazioni di fissione vengono efficacemente termalizzati dagli strati di grafite: il campo di radiazioni presente nella cavità è pertanto dominato dalla componente dei neutroni termici, con un flusso dell'ordine di  $10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Sono presenti inoltre componenti secondarie di neutroni epitermici e veloci. La caratterizzazione del campo neutronico è stata oggetto di precedenti studi sperimentali. Questi sono stati affiancati da simulazioni Monte Carlo del reattore realizzate con

il codice MCNP. Una recente campagna di misurazioni, condotta in collaborazione con il DOE, USA, ha permesso di validare il codice relativamente al trasporto dei neutroni[3].

Per quanto riguarda la componente gamma della facility, tre processi di produzione dei fotoni sono stati considerati: le reazioni di fissione nucleare sono responsabili della produzione dei cosiddetti gamma pronti; i decadimenti radioattivi dei prodotti di fissione producono gamma ritardati; sono stati infine considerati i fotoni prodotti da reazioni di cattura neutronica su vari materiali che costituiscono l'edificio. Le prime due componenti provengono direttamente dal nocciolo del reattore e sono fortemente attenuate dai muri di bismuto e dagli strati di grafite che devono attraversare per raggiungere la cavità di irraggiamento. La terza componente è al contrario intrinsecamente ineliminabile, poiché proviene dai materiali stessi di cui la colonna termica è composta. Nel complesso, la componente gamma della facility costituisce un fondo e risulta dominata dall'intenso campo di neutroni termici. Questo tipo di campo misto ha reso la misura della componente gamma particolarmente complessa, richiedendo l'utilizzo di un set-up sperimentale progettato *ad hoc* e di uno studio di simulazioni Monte Carlo approfondito e dettagliato.

## Materiali e Metodi

Per effettuare le misure della componente gamma sono stati impiegati dosimetri di alanina. Questo tipo di rivelatore presenta composizione e densità in buona approssimazione tessuto-equivalenti, linearità della risposta in un *range* estremamente ampio di dose, elevata efficacia nella risposta ai fotoni e stabilità del segnale indotto. Interagendo con questo amminoacido, le radiazioni ionizzanti inducono la produzione di radicali in quantità proporzionale alla dose assorbita, i quali rimangono intrappolati stabilmente nella matrice cristallina. La lettura del segnale viene effettuata in modo non invasivo tramite tecniche di Electron Spin Resonance (ESR). Data la loro particolare sensibilità a questo tipo di radiazione, i dosimetri di alanina sono stati storicamente impiegati prevalentemente in dosimetria gamma, per la quale la risposta è stata caratterizzata in modo completo[4][5].

La campagna di misure è stata pianificata con l'ausilio di simulazioni che prevedevano il trasporto di neutroni, fotoni ed elettroni, con l'intento di dettagliare lo spettro del flusso gamma imperturbato in colonna termica e le diverse componenti di dose presenti nel campo misto della facility durante l'irraggiamento. Quattro principali

contribuiti alla dose totale sono stati presi in considerazione. Per quanto riguarda i fotoni, oltre al fondo presente nella colonna termica si è tenuto conto dei gamma da 2.2 MeV prodotti dalla reazione  $^1\text{H}(n,g)^2\text{H}$  di cattura radiativa dei neutroni termici sui nuclei di idrogeno che compongono l'alanina stessa. Riguardo alla dose dovuta ai neutroni veloci, è stato considerato il processo di scattering elastico  $\text{H}(n,n')\text{H}$  sui nuclei di idrogeno. In relazione all'interazione dei neutroni termici è stata considerata la reazione di cattura  $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$  da parte dei nuclei di azoto dell'alanina. Questa componente, di oltre un ordine di grandezza superiore alle altre, ha reso difficoltosa la misura del solo fondo gamma. Si noti che la dose relativa agli ultimi due processi considerati viene depositata da particelle cariche pesanti ad alto LET, per le quali la risposta dell'alanina non è stata ancora completamente caratterizzata e deve essere pesata su opportuni coefficienti di sensibilità.

Sulla base di un accurato studio dosimetrico di queste componenti della dose totale è stato possibile ideare un set-up sperimentale per isolare quanto più possibile la componente del fondo gamma dalle altre, obiettivo della campagna di misure. Allo scopo è stato impiegato uno schermo costituito da un contenitore di teflon riempito di carbonato di litio, arricchito dell'isotopo  $^6\text{Li}$  al 95%. Sfruttando la reazione dei neutroni termici sul litio  $^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$ , lo schermo è in grado di ridurre di 3 ordini di grandezza il flusso termico senza generare fotoni secondari che perturberebbero la misura. In questo modo le componenti di dose dovute all'interazione dei neutroni termici sono state abbattute. I dosimetri di alanina, di forma cilindrica ( $h=0.32$  cm,  $r=0.24$  cm) sono stati alloggiati a gruppi di tre all'interno di un contenitore cilindrico appositamente progettato per gli irraggiamenti. Il contenitore è stato realizzato in grafite, materiale privo di idrogeno e tessuto-equivalente per l'interazione dei fotoni. Le dimensioni del contenitore sono state stabilite in modo da garantire con la migliore approssimazione possibile le condizioni di CPE (Charged Particles Equilibrium) per lo spettro di fotoni presente in colonna termica. In questo modo, la dose gamma assorbita dai dosimetri è stata massimizzata. Per calibrare i dosimetri è stato impiegato un fascio di fotoni da 6 MV usato in radioterapia, il cui spettro approssima la situazione della facility meglio di una sorgente monocromatica standard. La calibrazione e la lettura dei dosimetri tramite ESR sono state realizzate in collaborazione con l'Università di Palermo. Tre diverse posizioni della colonna termica sono state investigate durante la campagna di misure, in due

diverse condizioni: i dosimetri sono stati irraggiati sotto schermo e non schermati. Per gli irraggiamenti, della durata di 1 ora, il reattore era in funzione alla potenza di 250 kW.

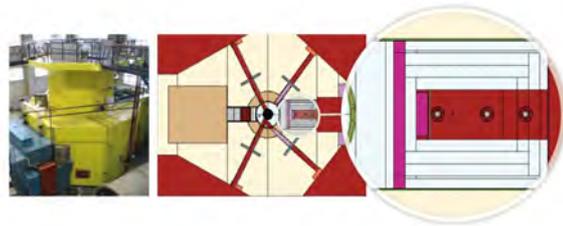


Figura 1. Da sinistra: una fotografia del reattore Triga; una sezione, vista dall'alto, dell'intero reattore realizzata con MCNP (il core si trova al centro) e un ingrandimento del core della colonna termica con il canale di irraggiamento. L'aria è rappresentata in rosso, il bismuto in viola e la grafite in bianco. Nella colonna sono evidenziate le tre posizioni investigate nello studio sperimentale.

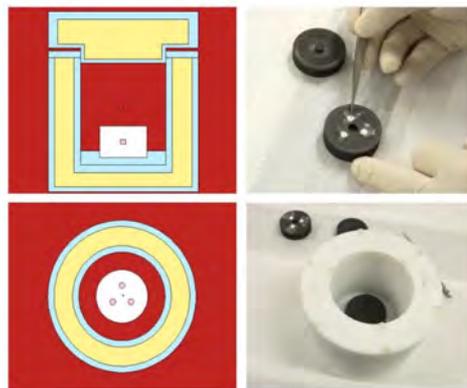


Figura 2. A sinistra, sezione laterale (sopra) e vista dall'alto (sotto) del set-up sperimentale con i dosimetri schermati simulati da MCNP. L'aria è rappresentata in rosso, l'alloggio di grafite in bianco, il teflon che costituisce il contenitore in azzurro, il carbonato di litio in giallo e l'alanina in rosa. A destra, fotografie del set-up con i dosimetri di alanina alloggiati nella grafite (sopra) e inseriti all'interno dello schermo (sotto).

## Risultati e Conclusioni

La campagna sperimentale, portata a termine con successo, ha permesso di ottenere per la prima volta una misura del fondo gamma della colonna termica, raggiungendo pienamente l'obiettivo del lavoro. La caratterizzazione ottenuta è stata impiegata per dettagliare le diverse componenti di dose in uno studio di fattibilità *in vitro* per la BNCT in due linee cellulari: DHD e UMR, rispettivamente di adenocarcinoma e osteosarcoma. I risultati hanno

confermato l'efficacia e il successo della terapia. Gli esperimenti di radiobiologia cellulare sono stati realizzati in collaborazione con il laboratorio di Chirurgia Sperimentale del Dipartimento di Chirurgia dell'Università di Pavia.

Considerato l'ottimo accordo tra i risultati sperimentali e quelli delle simulazioni, è stato inoltre possibile ottenere una validazione del codice per quanto riguarda il trasporto dei fotoni e il relativo calcolo della dose. In aggiunta, dal confronto fra le dosi ricevute dai dosimetri schermati e non schermati, è stato possibile stimare preliminarmente il coefficiente di sensibilità dell'alanina a protoni con energie inferiori al MeV, sfruttando la reazione di cattura  $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$  sull'azoto contenuto nel dosimetro stesso. Questo valore, non presente in letteratura ma coerente con le aspettative, basate su indagini effettuate con ioni carichi e protoni[6][7], apre la strada a un possibile studio dedicato a una caratterizzazione più precisa della risposta dell'alanina a radiazioni di alto LET, di grande utilità per applicazioni in campi misti come quello presente in colonna termica.

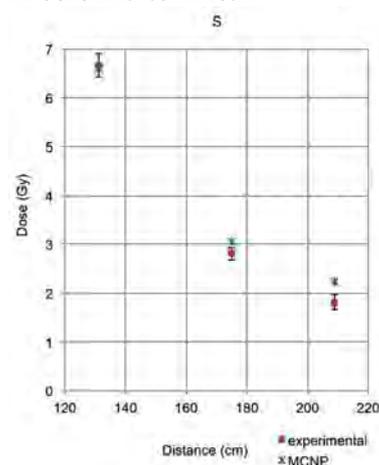


Figura 3: Confronto tra la misura sperimentale (in rosso) e i risultati simulati (in blu) della dose totale in dipendenza dalla distanza dal core del reattore per le tre posizioni della colonna termica investigate. I dosimetri sono stati irraggiati all'interno dello schermo.

## Acknowledgements

Questo lavoro è stato svolto nell'ambito di una tesi di Laurea Magistrale in Fisica presso il gruppo BNCT del Dipartimento di Fisica dell'Università di Pavia, guidato dal Prof. S. Altieri.

## Referenze

1. J.A.Coderre, G.M.Morris (1999), *The Radiation Biology of Boron Neutron Capture Therapy*, Rad. Res. **151**, 1-18.
2. S.Bortolussi (2010), *Boron Neutron Capture Therapy research in Pavia, Italy*, Il Nuovo Cimento DOI 10.1393/ncc/i2011-10818-9
3. D.W.Nigg (2012) *Physical Dosimetry and Spectral Characterization of Neutron Sources for Neutron Capture Therapy*, W.A.G. Sauerwein et al., Neutron Capture Therapy, DOI 10.1007/978-3-642-31334-9-13, Springer-Verlag Berlin Heidelberg.
4. J.W.Hansen, M.P.R.Waligòrski, E.Byrski (1989) *Intercomparison of Gamma Ray, X ray and Fast Neutron Dosimetry using Alanine detectors*, Rad. Prot. Dos. **27**, 85-92
5. E.Pawels, H.De Cooman, M.Waroquier, E.O.Hole, E.Sagstuen (2010) *On the identity of the radiation-induced stable alanine radical*, Phys. Chem. Chem. Phys. **12**, 8733-8736.
6. P.Fattibene, C.De Angelis, S.Onori, R.Cherubini (2002), *Alanine Response to Proton beams in the 1.6-6.1 MeV Energy range*, Rad. Prot. Dos. **101**, 465-468.

### Radiazioni Ricerca e Applicazioni

Periodico della Società Italiana per le Ricerche sulle Radiazioni  
Pubblicazione Periodica Quadrimestrale: Volume XVII n. 1-2 (Aprile/Agosto 2014)

#### Direttore Responsabile:

Francesca Ballarini

#### Informazioni e Corrispondenza

Francesca Ballarini

Tel. 0382 987949

e-mail: francesca.ballarini@pv.infn.it

Editrice: Società Italiana per le Ricerche sulle Radiazioni

Registrazione del Tribunale di Roma n. 406 del 6 Agosto 1998

#### Comitato di Redazione:

Antonio Antoccia

Alessandro Campa

Chryssostomos Chatgiliologlu

Marco Chianelli

Silvia Gerardi

Giorgio Leter

Maria Teresa Mancuso

Carmela Marino

## **PREMIO PER LE MIGLIORI COMUNICAZIONI AL XVI CONVEGNO SIRR**

**(PAVIA, 7-8 NOVEMBRE 2014)**

In occasione del XVI Convegno Nazionale della nostra Società, tenutosi a Pavia il 7 e 8 novembre 2014, l'INFN (Istituto Nazionale di Fisica Nucleare) ha messo a disposizione un premio da 500 euro da assegnare al/alla ricercatore/rice non strutturato/a autore/autrice della migliore comunicazione (senza distinzione tra comunicazioni orali e a poster).

Il premio è stato assegnato a Francesco Berardinelli, assegnista di ricerca presso l'Università "Roma Tre", autore di una comunicazione sul tema "The telomeric G-quadruplex-stabilizing agent RHPS4 induces telomeric dysfunction and enhances sensitivity to ionising radiation in glioblastoma cells". Tuttavia, essendoci anche un'altra comunicazione meritevole, seduta stante la Commissione giudicatrice, coincidente con il Comitato Scientifico del Convegno, ha deciso di istituire un secondo premio, consistente in 300 euro messi a disposizione direttamente dalla SIRR; il secondo premio è stato assegnato a Giorgio Baiocco, assegnista di ricerca presso l'Università degli Studi di Pavia, autore di una comunicazione su "Caratterizzazione dell'origine fisica dell'efficacia biologica dei neutroni".

## **ASSEGNAZIONE DI QUATTRO 'TRAVEL AWARD' PER LA PARTECIPAZIONE DI GIOVANI SOCI AL 15TH ICRR (KYOTO, 25-29 MAGGIO 2015)**

Come per la precedente edizione, la SIRR ha deciso di supportare la partecipazione – con presentazione di un contributo - di giovani Soci al 15th ICRR (International Congress of Radiation Research), che si terrà a Kyoto tra il 25 e il 29 maggio 2015. L'idea iniziale del Consiglio Direttivo era di assegnare tre "travel award" da 700 euro ciascuno (quindi di entità confrontabile, anzi leggermente superiore, agli award messi a disposizione dall'organizzazione dell'ICRR); essendo pervenute solo quattro applications, tutte di elevato valore scientifico, si è deciso di portare il numero di award da tre a quattro, sempre da 700 euro ciascuno. Gli award sono stati attribuiti a Gabriele Babini (Università di Pavia e INFN-Pavia), Mario Carante (Università di Pavia e INFN-Pavia), Paola Giardullo (Università Guglielmo Marconi di Roma e ENEA-Casaccia) e Nicoletta Protti (Università di Pavia e INFN-Pavia).