

Candidata: Caterina Magini

Titolo: Soppressione dell'isobaro ^{14}N nelle misure di radiocarbonio con spettrometria di massa con acceleratore.

Relatore: Dr.ssa M. Fedi (fedi@fi.infn.it) **Correlatore:** Prof. P.A. Mandò (mando@fi.infn.it)

Questo lavoro di tesi è stato svolto presso il Laboratorio di tecniche nucleari per i Beni Culturali (LABEC) di Firenze. Al LABEC è installato un acceleratore di tipo TANDEM con cui vengono effettuate sia misure di analisi con fasci di ioni (*Ion Beam Analysis, IBA*), sia misure di spettrometria di massa con acceleratore (*Accelerator Mass Spectrometry, AMS*). Quest'ultima è una tecnica ultra-sensibile di spettrometria di massa che, sfruttando proprio l'acceleratore, consente di misurare la concentrazione di isotopi rari presenti all'interno di un campione, riducendo al minimo eventuali interferenze di tipo isobarico.

Una delle applicazioni più note della tecnica AMS è la misura della concentrazione di ^{14}C in reperti di origine organica. Poiché l'abbondanza relativa del ^{14}C in atmosfera è molto bassa ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C} \sim 10^{-12}$) è fondamentale riuscire a sopprimere con successo i suoi isobari atomici (^{14}N) e molecolari ($^{12}\text{CH}_2$, ^{13}CH). Per quanto riguarda le molecole $^{12}\text{CH}_2$ e ^{13}CH , è l'acceleratore stesso a fungere da filtro; il contributo dell'azoto invece è soppresso in quanto in acceleratore sono iniettati ioni negativi. L'azoto-14 infatti non forma ioni negativi stabili, a causa della sua bassissima affinità elettronica. In linea di principio non si potrebbe escludere la possibilità che si formino ioni negativi in stati metastabili o che l'azoto sia iniettato sotto forma di ione molecolare, per esempio NH^- proveniente dal decadimento dello ione NH_2^- ; entrambe le ipotesi sono però altamente improbabili. Infatti, nel primo caso, gli stati metastabili dello ione $^{14}\text{N}^-$ dovrebbero possedere una vita media almeno dell'ordine del μs , per avere una probabilità non trascurabile di essere iniettati nel TANDEM: infatti abbiamo stimato che nel caso dell'acceleratore del LABEC, gli ioni impiegheranno circa $7 \mu\text{s}$ per percorrere la distanza tra la sorgente e l'ingresso del tubo di accelerazione. I dati presenti in letteratura forniscono vite medie di almeno 4 ordini di grandezza inferiori al μs per tutti e tre gli stati quantici in cui si formano ioni $^{14}\text{N}^-$. L'ipotesi che l'azoto provenga dall'iniezione della molecola NH^- è, se vogliamo, ancora più improbabile. Infatti, anche se gli ioni NH^- riuscissero a essere iniettati nell'acceleratore, l'energia con cui uscirebbero dal TANDEM non consentirebbe loro di superare l'analisi ad alta energia della linea AMS.

L'obiettivo che ci siamo proposti in questo lavoro di tesi è stato quello di verificare l'effettiva soppressione degli ioni ^{14}N in una misura di radiocarbonio con tecnica AMS, nell'ipotesi (seppur non realistica per quanto sopra scritto) che gli stessi possano essere iniettati nel TANDEM e accelerati ad alta energia. A questo scopo abbiamo effettuato delle misure che sfruttano la diversa perdita d'energia subita da ioni aventi uguale massa, ma diverso numero atomico Z , nell'attraversare un mezzo di spessore noto, in accordo con la nota formula di Bethe-Bloch.

Prima di procedere con le misure, abbiamo effettuato delle simulazioni con il programma SRIM, per valutare la perdita di energia di un fascio costituito sia da ioni ^{14}N che da ioni ^{14}C , attraverso un foglio di mylar alluminato dello spessore di $2 \mu\text{m}$ e lo strato morto del rivelatore al silicio, che è utilizzato sulla linea AMS per contare gli ioni. Lo spessore dello strato morto inserito nella simulazione è stato misurato facendo incidere sul rivelatore particelle α , emesse da una sorgente di ^{241}Am , a vari angoli d'incidenza e registrando, per ogni angolo, l'energia finale della radiazione.

Per la verifica della soppressione dell'isobaro ^{14}N , come primo passo, abbiamo calibrato il rivelatore, sfruttando l'accelerazione di fasci di ^{14}C di diverso stato di carica ad alta energia e quindi di diversa energia finale. Per le misure vere e proprie, abbiamo inserito in sorgente quattro campioni appositamente preparati: due campioni *standard* moderni (cioè aventi una concentrazione di ^{14}C nota e pari a $\sim 10^{-12}$) e due campioni volutamente "drogati" con azoto, ottenuti aggiungendo a due campioni *standard* moderni del nitrato di titanio (TiN). Per ogni campione, una volta estratto il fascio, è stato acquisito lo spettro in energia degli ioni dopo che avevano attraversato un foglio di mylar alluminato come quello usato nelle simulazioni. Gli spettri acquisiti sono stati confrontati con i risultati delle simulazioni, in modo da poter identificare eventuali conteggi dovuti alla presenza di azoto. I risultati sono stati soddisfacenti: né gli spettri dei campioni *standard*, né quelli dei campioni drogati hanno mostrato picchi evidenti nell'intervallo di energia nel quale ci saremmo potuti aspettare di trovare l'azoto. In questo stesso intervallo di energia tutti gli spettri hanno mostrato una piccola quantità di conteggi spuri; per valutare quanto potessero essere significativi, abbiamo stimato il rapporto R , valutato come il numero di questi conteggi diviso il numero di conteggi di ^{14}C . R per i campioni contenenti TiN non è risultato maggiore di quello stimato per i campioni *standard* ($\Delta R = 0.0001 \pm 0.0006$), quindi, anche contaminando di proposito i campioni con ^{14}N , il contributo di quest'ultimo sarebbe inferiore all'1‰. Inoltre, tutti i campioni hanno presentato $R \leq 0.004$, il che significa che, anche nell'ipotesi, irrealistica, in cui tutti i conteggi presenti nell'intervallo di energie considerato fossero dovuti alla presenza di ioni ^{14}N nel fascio, la concentrazione di azoto nelle misure di ^{14}C sarebbe inferiore o uguale al 4‰.