



4.5  
5.0  
5.6  
6.3  
7.1  
8.0  
9.0  
10



MICROCOPY RESOLUTION TEST CHART  
NATIONAL BUREAU OF STANDARDS  
STANDARD REFERENCE MATERIAL 1010a  
(ANSI and ISO TEST CHART No 2)

IT8700547

INFN/BE - 84/8  
10 settembre 1984

C. Tuniz:

SPETTROMETRIA DI MASSA MEDIANTE ACCELERATORI TANDEM:  
STATO ATTUALE E PROSPETTIVE

**SPETTROMETRIA DI MASSA MEDIANTE ACCELERATORI TANDEM:  
STATO ATTUALE E PROSPETTIVE\***

**Claudio TUNIZ**

**Istituto di Fisica, Università degli Studi, Trieste**

**INFN, Sezione di Trieste**

\***) Relazione su invito al Congresso della Società Italiana  
di Fisica, Genova, ottobre 1984**

**Stampato presso il Servizio di Riproduzione dell'I.N.F.N.  
Sezione di Trieste**

## RIASSUNTO

La spettrometria di massa basata su un acceleratore permette di misurare isotopi cosmogenici rari presenti in campioni naturali con abbondanze isotopiche fino a  $10E-15$ . Il Tandem XTU dei Laboratori Nazionali di Legnaro e' adatto per misurare isotopi medio-pesanti ( $^{36}Cl$ ,  $^{41}Ca$ ,  $^{129}I$ ) in applicazioni di interesse della Cosmocronologia e della Medicina. Il Tandem TTT-3 dell'Universita' di Napoli e' stato invece modificato per misure di precisione del  $^{14}C$  in studi di Archeologia, Paleontologia e Geologia. Nella presente relazione viene svolta una rassegna sui principi e le metodologie della tecnica e su alcune applicazioni interdisciplinari nell'ambito del "Programma Nazionale per ricerche di spettrometria di massa con acceleratore".

### 1.0 PREMESSA

Si e' assistito in questi ultimi anni allo sviluppo di una nuova tecnica analitica in cui acceleratori Tandem Van de Graaff e ciclotroni vengono usati come elementi di spettrometri di massa ultrasensibili.

La tecnica consiste nel contare singoli atomi che sono stati ionizzati, accelerati ad energie di MeV/nucleone ed infine identificati con metodologie derivate dalla fisica nucleare. La sensibilita' ottenuta e' di alcuni ordini di grandezza superiore rispetto a quella degli spettrometri di massa convenzionali dove gli ioni sono accelerati ad energie dell'ordine dei keV.

La spettrometria di massa basata su un acceleratore Tandem (TAMS) ha avuto un notevole successo nell'analisi di radioisotopi cosmogenici a lunga vita, presenti nella materia del sistema solare con rapporti isotopici  $10E(-9) - 10E(-15)$ . Nella Tabella 1 vengono confrontati i limiti di rivelazione di TAMS con le concentrazioni terrestri di alcuni importanti isotopi cosmogenici.

Numerosi laboratori stanno impiegando questo tipo di spettrometri ad alta energia in programmi di ricerca interdisciplinare relativi a scienze quali geologia, archeologia, cosmocronologia, paleontologia e idrologia [1].

In questa relazione viene presentato il Programma Nazionale per ricerche di spettrometria di massa con l'acceleratore Tandem XTU dei Laboratori Nazionali di Legnaro (INFN - Università di Padova) e l'acceleratore Tandem TTT-3 dell'Università di Napoli.

Il Tandem XTU è adatto, grazie all'elevata tensione di terminale ed al sistema di trasporto del fascio con alta rigidità magnetica, all'analisi di isotopi rari medio-pesanti (es.:  $^{41}\text{Ca}$ ,  $^{129}\text{I}$ ). L'acceleratore di Napoli verrà invece utilizzato per misure di precisione del  $^{14}\text{C}$  (ed eventualmente del  $^{10}\text{Be}$ ).

Nel paragrafo 2 è illustrata la metodologia sperimentale, gli acceleratori e gli apparati disponibili per lo svolgimento del programma. Nel paragrafo 3 sono descritte le linee di ricerca che motivano lo sviluppo della tecnica della spettrometria di massa ad alte energie in Italia. Il paragrafo 4 presenta la discussione finale e le conclusioni. In

Appendice e' riportato un sommario delle linee di ricerca e delle collaborazioni facenti capo al Programma Nazionale.

## 2.0 METODI SPERIMENTALI

### 2.1 Vantaggi Della Spettrometria Di Massa Ad Alte Energie

Il conteggio dei radioisotopi presenti in un campione con le tecniche radiometriche e' inefficiente quando la loro vita media e' molto lunga ( vedi i nuclidi cosmogenici della Tabella 1). D'altra parte la misura diretta degli atomi con la spettrometria di massa convenzionale ha una bassa sensibilita' (nel migliore dei casi si possono misurare abbondanze isotopiche di circa 1 parte su un miliardo). In questi spettrometri fasci di ioni con energie dell'ordine del KeV sono prodotti da sorgenti specializzate e separati in massa con combinazioni di campi elettrici e magnetici. La loro sensibilita' e' limitata da molteplici fattori, i piu' importanti dei quali sono le interferenze molecolari ed isobariche.

Le suddette limitazioni sono minimizzate quando un Tandem e' utilizzato come elemento del sistema spettrometrico di massa.

L'interferenza molecolare e' eliminata con lo stripping di 3 o piu' elettroni al terminale ad alta tensione. Senza elettroni di legame le molecole diventano instabili e si rompono in meno di un microsecondo.

Il problema della interferenza isobarica viene risolto caso per caso. Per la misura del  $^{14}\text{C}$  l'eliminazione dell'isobaro avviene alla sorgente:  $^{14}\text{N}$  non forma infatti ioni negativi stabili. Per la coppia  $^{10}\text{Be} - ^{10}\text{B}$  viene utilizzato il vantaggio offerto dal fatto che lo ione interferente ha un percorso più breve nella materia. In generale l'alta energia degli ioni (alcuni MeV per nucleone) permette la discriminazione finale delle interferenze isotopiche ed isobariche con la misura della perdita di energia specifica e dell'energia totale in rivelatori a stato solido o a gas.

## 2.2 Spettrometria Di Massa Basata Sul Tandem XTU

In Fig. 1 è riportato lo schema dell'acceleratore Tandem XTU da 16 MV dei Laboratori Nazionali di Legnaro. Questo sistema è stato recentemente utilizzato come spettrometro di massa ad alta sensibilità per l'analisi del  $^{10}\text{Be}$  in campioni standard con rapporti isotopici noti.

Gli ioni negativi ( $\text{BeO}^-$ ) sono prodotti da un campione solido nella sorgente a sputtering (Ionex 834) ed iniettati nel sistema di accelerazione dopo una deflessione magnetica di 90 gradi.

La tensione usata durante le misure è di 10.7 MV. Poiché la corrente di ioni rari è troppo bassa per il sistema a feedback delle slitte del magnete analizzatore, l'acceleratore è stabilizzato con il controllo a GVM.

Il  $\text{BeO}^-$  e' dissociato al terminale ad alta tensione da uno stripper solido e massoso.

Dopo il secondo stadio di accelerazione, l'isotopo abbondante ( $^9\text{Be}$ ) e quello raro ( $^{10}\text{Be}$ ) sono entrambi analizzati nello stato di carica  $3+$ . Poiche' le intensita' dei due fasci differiscono di un fattore  $10^9$  o piu', si usano metodi diversi per la loro rivelazione. Il fascio di  $^9\text{Be}$  e' trasmesso solamente fino all'imagine del magnete analizzatore ed e' misurato integrando la corrente di una Faraday cup. Si predispongono poi il magnete di inflessione, quello analizzatore e la lente magnetica QD1 per il trasporto di  $^{10}\text{Be}$ . L'isotopo raro viene inviato al sistema finale di rivelazione (Fig. 2) dopo un'ulteriore deflessione magnetica (50 gradi). La misura dei rapporti isotopici  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  viene ottenuta cambiando solamente i tre elementi magnetici menzionati.

Nella parte preliminare dell'esperimento si ottimizza la trasmissione per l'isotopo raro utilizzando il fascio  $^9\text{Be}^{+++}$  (con una corrente superiore alla decina di nanoampere) ad una tensione di terminale superiore (12 MV). A tale tensione la massa 9 ha la stessa rigidita' magnetica della massa 10 a 10.7 MV e tutti gli elementi di trasporto del fascio possono essere accordati massimizzando la corrente nella Faraday cup disposta immediatamente dopo il sistema di rivelazione.

I fasci interferenti trasmessi durante le misure del  $^{10}\text{Be}$  sono  $^9\text{Be}$  e  $^{10}\text{B}$ . Il Boro segue il  $^{10}\text{Be}$  in tutte le fasi di accelerazione e di analisi magnetica. Fortunatamente questi ioni possono essere fermati da un assorbitore adatto disposto prima del sistema di rivelazione. Il  $^9\text{Be}$ , iniettato



nell'acceleratore come  $\text{BeOH}^-$  (massa 26), puo' simulare la rigidita' magnetica della massa 10 in seguito a scambi di carica nei tubi dell'acceleratore.

La separazione finale del  $^{10}\text{Be}$  dal fondo e' ottenuta con un telescopio  $E - dE$  di silici montati su un braccio della camera di scattering. Tale braccio e' mobile (con controllo remoto) ed e' disposto a zero gradi rispetto al fascio durante le misure di  $^{10}\text{Be}$ .

In Fig. 3 e 4 sono riportati gli spettri  $E - dE$  ottenuti, rispettivamente, con un assorbitore di alluminio e di zirconio. Il rapporto isotopico del campione usato e'  $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be} = 7.27 \times 10^{-11}$ . Si noti come l'assorbitore povero di idrogeno (zirconio) riduca il fondo prodotto dalla reazione  $^1\text{H}(^{10}\text{B}, ^4\text{He})^7\text{Be}$ . In Fig. 5 e' mostrato lo spettro  $E - dE$  di un campione privo di  $^{10}\text{Be}$  (blank).

Durante le misure di  $^{10}\text{Be}$  la stabilita' della trasmissione viene seguita misurando con un silicio il  $^{10}\text{B}$  diffuso prima dell'assorbimento da un foglio d'oro di 200 microgrammi/cm<sup>2</sup>.

Sono state effettuate misure di campioni standard (tarati) con rapporti isotopici  $1.21 \times 10^{-9}$ ,  $8.8 \times 10^{-9}$ ,  $7.27 \times 10^{-11}$  per verificare la linearita' del sistema spettrometrico di massa nell'intervallo di abbondanze isotopiche di interesse della geologia terrestre e planetaria: i risultati sono riportati in Fig. 6.

La metodologia descritta e' valida in generale, ma bisogna scegliere caso per caso il metodo specifico di separazione del fondo isobarico.

Nel caso del  $^{36}\text{Cl}$ , per esempio, il fondo isobarico deve essere ridotto con metodi chimici, poiché  $^{36}\text{S}$  ha un percorso più lungo nella materia e non si può usare la tecnica dell'assorbimento. Recentemente è stato applicato un metodo alternativo che utilizza lo stripping totale degli elettroni seguito da deflessione magnetica. Sfortunatamente la tensione al terminale del Tandem XTU non è sufficiente per superare l'energia di Bohr nel caso degli atomi di cloro e zolfo.

Per le misure di  $^{36}\text{Cl}$  con TAMS, c'è anche il problema degli isotopi abbondanti,  $^{35}\text{Cl}$  e  $^{37}\text{Cl}$ . Tali fasci non vengono completamente soppressi dall'analisi magnetica per i problemi di scambio di carica discussi in precedenza.

In Fig. 7 è riportato uno spettro  $E - dE$  ottenuto con lo stesso telescopio di silici utilizzato per le misure di  $^{10}\text{Be}$ , trasmettendo la massa 36 per un campione di Cl non contenente l'isotopo  $^{36}\text{Cl}$ .

Nel sistema in funzione presso i Laboratori Nazionali di Legnaro l'eliminazione del fondo isotopico verrà ottenuta con un filtro elettrostatico (analisi  $E/Q$ , dove  $E$  è l'energia totale degli ioni e  $Q$  è la loro carica) che defletterà il fascio di 20 gradi verso il basso (Fig. 8). Tale filtro è stato progettato e costruito presso l'università di Rochester ed i Laboratori Nazionali di Legnaro e sarà completato entro alcuni mesi. Esso servirà a migliorare il blank per tutti i nuclidi cosmogenici misurati nell'ambito del programma nazionale.

Inoltre, nel prossimo futuro, i telescopi E - dE di silici verranno sostituiti con: a) rivelatori a gas per la misura multipla di dE ( in Fig. 9 e' riportato lo schema della camera progettata e costruita presso la Rutgers University, il cui prototipo e' disponibile presso i Laboratori di Legnaro), b) camera di Brass (progettata e costruita dal gruppo della Prof. Colli dell'Istituto di Fisica Applicata di Milano).

Per isotopi piu' pesanti ( $^{41}\text{Ca}$ ,  $^{129}\text{I}$ ), i parametri forniti da camere di ionizzazione standard o camere di Brass non sono sufficienti. Prevediamo, in tali casi, di completare l'analisi delle masse con un sistema a tempi di volo. La temporizzazione verra' ottenuta con una coppia di microchannel plates che rivelano gli elettroni secondari prodotti in sottili fogli di carbonio (5 - 10 microgrammi/cm<sup>2</sup>) disposti perpendicolarmente al fascio.

Il sistema basato sul Tandem XTU completo per la misura di isotopi rari medio-pesanti e' indicato nella Fig. 10.

Riassumiamo le caratteristiche che fanno di questo acceleratore una macchina adatta per la spettrometria di massa ultrasensibile: a) Sistema di trasporto del fascio con alta rigidita' magnetica (il prodotto massa - energia e' circa 500); b) magneti di inflessione a 90 gradi con doppia focalizzazione e risoluzione in massa di 1/100; c) alta tensione al terminale; d) disponibilita' di una sorgente ad alta intensita' ( modello GIC 860 ), indispensabile per la misura di  $^{26}\text{Al}$  e  $^{41}\text{Ca}$  in campioni terrestri.

Misure precise di rapporti isotopici richiedono la correzione delle variazioni di trasmissione durante la misura dell'isotopo raro. A tal fine e' stata progettata una modifica della camicia del magnete di inflessione per l'installazione di una Faraday cup ausiliaria (fuori asse) che controlli la resa della sorgente.

### 2.3 Spettrometria Di Massa Basata Sul Tandem TTT-3

Il Tandem TTT-3 da 3 MV dell'Universita' di Napoli e' in corso di trasformazione per essere adoperato come spettrometro di massa ultrasensibile in misure precise di  $^{14}\text{C}$ .

Questo sistema e' stato dotato di una sorgente a sputtering, di un magnete di inflessione a 35 gradi con risoluzione  $dM/M = 1/30$  e di un magnete di switching a 45 gradi. L'apparato per l'identificazione finale e' costituito da una camera di ionizzazione per la misura della perdita di energia specifica  $dE/dx$  e dell'energia totale. L'andamento del  $dE/dx$  in funzione dell'energia per gli ioni di interesse mostra che l'energia ottimale e' al di sopra di circa 8 MeV. Un'energia di 10 MeV per ioni  $^{14}\text{C}$  e' ottenibile con una tensione al terminale di 2.5 MV, che cade nell'intervallo di prestazioni con buona stabilita' del Tandem di Napoli. In tali condizioni, inoltre, si ottiene un fascio di intensita' massima poiche' lo stato di carica  $3+$  e' il piu' probabile a 2.5 MV.

Mentre il fondo isobarico di  $^{14}\text{N}$  e' eliminato alla sorgente (vedi paragrafo 2.1), i fasci interferenti di  $^{12}\text{C}$  e  $^{13}\text{C}$  sono trasmessi con la massa 14 per le ragioni spiegate al

paragrafo 2.2 . L'installazione di un filtro di velocità prima del sistema di rivelazione o di un sistema a tempi di volo risolverà questo problema.

Faraday cup ausiliarie (fuori asse) verranno installate immediatamente dopo il magnete di inflessione per controllare variazioni nella resa della sorgente durante l'iniezione dell'isotopo raro.

La tensione al terminale sarà stabilizzata con l'uso di un fascio secondario che fornisca contemporaneamente la possibilità di controllare eventuali variazioni di trasmissione. Infatti, se vengono iniettati nell'acceleratore ioni di massa 14 selezionati al magnete di inflessione, le specie molecolari  $^{12}\text{CH}_2$  e  $^{13}\text{CH}$  vengono dissociate nello stripper formando due fasci di  $^{12}\text{C}$  e  $^{13}\text{C}$  di rigidità magnetica non lontana da quella del  $^{14}\text{C}$ . La intensità di questi fasci secondari, rivelati contemporaneamente al  $^{14}\text{C}$  ad angoli diversi all'uscita del magnete analizzatore, dovrebbe essere sufficiente per assicurare una buona stabilizzazione. È in corso a tal fine la modifica della camicia del magnete di analisi.

#### 2.4 Preparazione Campioni

Il campione da analizzare con TAMS deve essere sottoposto ad un opportuno pretrattamento chimico prima del suo inserimento nella sorgente a sputtering. Essendo questo un aspetto importante della tecnica riportero' nel seguito alcune considerazioni di interesse più immediato per i nostri

programmi di ricerca.

#### 2.4.1 Carbonio -

La sensibilita' della spettrometria di massa con acceleratore per la datazione con  $^{14}\text{C}$  raggiunge il suo valore massimo se il campione viene caricato nella sorgente sotto la forma di grafite. Questa sostanza permette, infatti, la produzione di un fascio  $\text{C}^-$  di intensita' molto elevata ( 20 - 30 microampere). Nel programma nazionale sono state proposte diverse metodologie per la grafitizzazione dei campioni.

Una prima soluzione consiste nella modifica dell'apparato esistente presso il C.R.A.D. di Udine con l'aggiunta di una linea per la produzione di grafite dall'acetilene. Questo composto ( $\text{C}_2\text{H}_2$ ) e' attualmente prodotto nel pretrattamento per la sintesi del benzene (usato per la radiodatazione con il metodo convenzionale). La grafite verra' ottenuta immettendo l'acetilene in un contenitore di Pyrex ad una pressione di 10 - 20 torr. All'interno del contenitore, un sottile filo di tantalio e' riscaldato resistivamente a 2000 gradi C. La grafite si raccoglie nella parte centrale del filo con un yield del 50 - 60 % (metodo usato presso il Laboratorio  $^{14}\text{C}$  di Oxford). Il vantaggio di questa tecnica consiste nella possibilita' di sfruttare apparecchiature gia' esistenti. C'e' lo svantaggio di possibili frazionamenti isotopici introdotti dal processo di crackings.

Presso il Dipartimento di Fisica di Roma verrà utilizzato un metodo alternativo che dovrebbe ovviare al problema del frazionamento isotopico. Il CO<sub>2</sub> estratto dal reperto viene trasformato in carbonio elementare per riduzione con magnesio metallico a 600 gradi C. Si può ottenere la grafite con un sistema che è già stato utilizzato presso l'università di Seattle. Il campione carbonizzato è mescolato con 20 % di legante e disposto in stampi di molibdeno. Tali stampi sono riscaldati gradualmente a 1000 gradi C in atmosfera di azoto, mentre alte pressioni sono applicate alla miscela in modo da dare alla grafite forma e dimensioni adatte per la disposizione nella sorgente dell'acceleratore. I wafers prodotti sono rimossi poi dagli stampi e scaldati sotto vuoto a 2500 gradi C in una fornace.

È stato anche proposto [2] di usare direttamente il gas CO<sub>2</sub> estratto dal campione in una sorgente simile alla GIC 860 disponibile presso i Laboratori di Legnaro (con opportune modifiche per il passaggio del gas). Ciò creerebbe notevoli semplificazioni nella procedura di trasformazione dei reperti.

#### 2.4.2 Berillio -

Ricapitoliamo brevemente la procedura per preparare i campioni di berillio.

La sensibilità di TAMS permette di usare una minima quantità di materiale. Tale quantità è determinata dalla concentrazione di <sup>10</sup>Be: meno di 10 mg per condriti in saturazione, più di 10 g per lave vulcaniche.

I campioni sono macinati e digeriti in HF - HClO<sub>4</sub>. L'estrazione del Berillio e' ottenuta seguendo il metodo di Korkisch e Sorio [3]. Dopo l'estrazione dei solventi si usa lo scambio ionico per separare il Be da contaminanti quali Al e Fe. Il recupero (in genere superiore a 95% ) e' monitorato assaiusendo inizialmente 5 microgrammi di <sup>9</sup>Be come carrier ed analizzando il prodotto recuperato con la spettrometria ad assorbimento atomico.

Tale metodo presenta lievi modifiche a secondo del campione in studio. Le difficolta' maggiori si presentano per il materiale terrestre con basso contenuto di <sup>10</sup>Be dove si deve trattare una elevata quantita' di materiale. Particolari precauzioni devono essere adottate per limitare la contaminazione con Boro.

### 3.0 APPLICAZIONI

#### 3.1 Cosmocronologia

Questi studi riguardano l'interazione della radiazione cosmica con la materia del sistema solare. Uno degli effetti di tale interazione e' la produzione dei radionuclidi a lunga vita ( Tabella 1 ).

##### 3.1.1 Meteoriti -

La spettrometria di massa ad alte energie e' risultata molto utile nella analisi di certi isotopi cosmogenici ( <sup>10</sup>Be, <sup>26</sup>Al, <sup>36</sup>Cl, <sup>129</sup>I ) in materiale meteoritico e lunare. Questi



nuclidi sono prodotti nelle meteoriti principalmente da protoni di alta energia interagenti con gli opportuni atomi bersaglio. Nel caso del  $^{10}\text{Be}$ , per esempio, gli atomi bersaglio sono Ossigeno, Magnesio, Alluminio.

Le meteoriti sono state usate come sonde per lo studio di possibili variazioni a lungo termine nel flusso della radiazione cosmica. L'ablazione della superficie meteoritica nel passaggio attraverso l'atmosfera terrestre rimuove gli effetti della radiazione solare (a basse energie), lasciando soltanto i prodotti delle particelle provenienti dalla galassia (con energie che superano i 10 GeV).

Dagli studi sistematici su decine di condriti effettuati presso il Laboratorio di Fisica Nucleare della Rutgers University non risulta che il flusso della radiazione cosmica abbia subito variazioni superiori al 20 % negli ultimi 10 milioni di anni [4].

Queste ricerche richiedono la comprensione dei meccanismi di irradiazione delle meteoriti. Ciò implica, per esempio, la conoscenza di possibili collisioni multiple nello spazio [5]. Per confrontare diverse meteoriti si introducono correzioni dovute alla diversa composizione chimica [6], ed alle diverse condizioni di schermatura nello spazio [7].

Studi di una meteorite artificiale irradiata al CERN con protoni da 800 MeV ha permesso di studiare il comportamento di singoli elementi bersaglio (Al e Mg) nella produzione del  $^{10}\text{Be}$  [8].

Dall'analisi delle concentrazioni dei diversi radioisotopi si riesce a determinare l'età di esposizione nello spazio. Questa età è definita come il periodo tra la separazione del meteoroido dal corpo originario, dove era schermato dalla radiazione cosmica, e la sua caduta sul nostro pianeta, dove è nuovamente schermato.

L'analisi degli isotopi cosmogenici fornisce quindi utili informazioni sull'origine stessa delle meteoriti. Ricordo a tal proposito le recenti misure di  $^{10}\text{Be}$  nella meteorite di origine lunare ALHA 81005 [9] e sul gruppo di meteoriti SNC [10], di possibile origine marziana. D'altra parte, la scoperta del  $^{10}\text{Be}$  nelle tectiti ha permesso di confermare la loro origine terrestre [11].

Il  $^{36}\text{Cl}$  è stato adoperato per studiare l'età terrestre delle meteoriti, ovvero il periodo di tempo trascorso tra la loro caduta sulla terra ed il loro ritrovamento [12].

### 3.1.2 Riserve Terrestri -

Alcuni dei radioisotopi della Tabella 1 sono di origine terrestre e vengono prodotti dalle reazioni nucleari della radiazione cosmica con gli opportuni nuclei bersaglio della stratosfera.

Il  $^{10}\text{Be}$  è il nuclide che presenta maggior interesse per questo tipo di studi. Esso è prodotto principalmente dalle reazioni di spallazione dei protoni di alta energia con l'Ossigeno e l'Azoto stratosferici. Il  $^{10}\text{Be}$  ha un tempo di permanenza nell'atmosfera molto breve (circa un anno), ed il

sue rate di deposizione dovrebbe essere sensibile a variazioni anche di breve periodo nel flusso della radiazione galattica (indotto, per esempio, da variazioni nell'attività solare). Nel caso del  $^{14}\text{C}$  questi effetti sono mascherati dai lenti rate di scambio del  $\text{CO}_2$  atmosferico. Il  $^{10}\text{Be}$  prodotto si accumula, dopo un tragitto abbastanza complicato, in riserve terrestri permanenti (per es.: sedimenti lacustri o marini e ghiaccio antartico) che possono essere datate in modo indipendente. La misura del  $^{10}\text{Be}$  in tali riserve ha permesso di confermare il noto fenomeno di bassa attività solare tra il 1645 ed il 1715 (minimo di Maunder) [13,14,15]. Il decremento nella intensità del campo magnetico solare durante tale periodo, testimoniato dall'assenza di macchie solari, ha indotto un aumento nella produzione di  $^{10}\text{Be}$ .

L'effetto del ciclo solare di 11 anni sulla produzione di  $^{10}\text{Be}$  è stato osservato in misure su campioni prelevati nel ghiaccio antartico [16].

Presso il Laboratorio di Fisica Nucleare della Rutgers University sono stati analizzati i sedimenti di Mono Lake (California) in un periodo da 20000 a 30000 anni fa per cercare la modulazione indotta da una inversione del campo magnetico terrestre [17]. Tale inversione, avvenuta circa 29000 anni fa, era stata individuata con studi di paleomagnetismo. L'età dei sedimenti era stata dedotta con misure di  $^{14}\text{C}$ .

Purtroppo gli effetti cercati sono oscurati da variazioni del rate di sedimentazione e di precipitazione, o da complicati fenomeni geochimici.

Lal ha recentemente suggerito un metodo alternativo che dovrebbe risolvere le complicazioni delle misure di isotopi introdotti nelle riserve terrestri in seguito a fallout. Egli propone di studiare le variazioni nella intensita' della radiazione cosmica analizzando i radionuclidi prodotti in-situ in campioni documentati (es.: pietre delle piramidi, anelli degli alberi) [18].

Presso la Rutgers University sono stati eseguiti esperimenti per comprendere come i fattori fisici e chimici influenzano il comportamento del  $^{10}\text{Be}$  sulla superficie della terra. Abbiamo misurato la concentrazione di  $^{10}\text{Be}$  in diversi tipi di grani e riscontrato che i silicati di grandezza dell'ordine del  $\mu\text{m}$  hanno poco  $^{10}\text{Be}$  (circa  $10^7$  atomi/g). Ancora piu' interessante fu la scoperta di altissime concentrazioni di  $^{10}\text{Be}$  nella materia organica dei sedimenti ( $10^{10}$  atomi/g) [19].

Si potranno capire meglio i molteplici effetti che influenzano la concentrazione di radioisotopi cosmogenici nella materia terrestre analizzando altri fenomeni prodotti dalla modulazione della radiazione cosmica nel passato. Sono importanti a tal riguardo i recenti esperimenti del gruppo di G. Cini Castagnoli in cui vengono utilizzati i profili di termoluminescenza in sedimenti marini per studiare le esplosioni di supernovae [20] ed il ciclo solare di 11 anni [21].

### 3.2 Archeologia E Paleontologia

L'elevata sensibilità di TAMS nella misura diretta degli atomi di  $^{14}\text{C}$  permette di estendere le datazioni oltre i 50000 anni e di misurare campioni con massa inferiore al milligrammo.

Si presenta quindi la possibilità di nuove applicazioni in paleontologia. La datazione di antiche ossa umane diventa più affidabile se applicata a certi aminoacidi del collagene. Uno di questi è l'idrossiprolina (costituente il 10 % del collagene) che è specifica dell'osso. La datazione con questo materiale dovrebbe garantire l'immunità da possibili contaminazioni dopo la sepoltura e discriminare dal  $^{14}\text{C}$  prodotto in-situ dai neutroni.

Recenti misure di questo tipo hanno recentemente portato al riesame dell'età dell'Homo Sapiens nell'emisfero occidentale. Datazioni precedenti davano a questi resti fossili un'età di 20000 - 70000 anni. Precise misure con TAMS dimostrano invece la loro appartenenza al periodo dell'Olocene[22].

Nel Programma Nazionale c'è la proposta del Dipartimento di Fisica di Roma di datare il collagene dell' "Uomo di Crotona", i cui resti sono stati ritrovati in una sepoltura priva di qualsiasi suppellettile da una équipe di archeologi facenti capo alla Soprintendenza del Museo Pirorini di Roma.

La possibilità di utilizzare minime quantità di materiale organico estende enormemente anche il campo delle applicazioni archeologiche. Si consideri, ad esempio, il vasellame contenente carbone organico derivante dalle fibre di

piante usate per temperare l'arsilla. La maggior parte di questo carbone è stato bruciato, ma la piccola quantità rimasta è sufficiente per la datazione con l'uso di TAMS. Analoga è la situazione per i manufatti dell'età del ferro che hanno assorbito carbonio durante la lavorazione. Un'altra possibilità riguarda la datazione di campioni rari e preziosi (antichi manoscritti, vesti, etc.) con un metodo che è praticamente non distruttivo. È stata suggerita la datazione diretta di famosi dipinti preistorici nelle caverne del paleolitico. Pochi mg di carbone possono essere facilmente ottenuti dalle pitture che contengono grassi animali come lesanti.

Le datazioni di interesse paleontologico potrebbero essere estese alla scala del milione di anni con l'uso di un altro isotopo cosmogenico, il  $^{41}\text{Ca}$  ( $t_{1/2} = 130000$  anni) [23].

Questo nuclide è prodotto sulla superficie della terra dalle reazioni di cattura dei neutroni cosmici secondari sul  $^{40}\text{Ca}$ .

Una applicazione interessante potrebbe essere lo studio dei fossili di ominide del pleistocene trovati ad Hadar in Etiopia [24]. Tali resti suggeriscono che Homo ed Australopithecus coesistevano oltre due milioni di anni fa. Le datazioni sono state effettuate indirettamente con il metodo K - Ar sui basalti e non sono molto precise. Un metodo alternativo per la datazione diretta delle ossa sarebbe di fondamentale importanza per confermare quei risultati.

Dai calcoli risulta che la concentrazione all'equilibrio  $^{41}\text{Ca}/\text{Ca}$  in campioni naturali è  $10\text{E}-14 - 10\text{E}-15$ . I limiti più bassi di rivelazione ottenuti con TAMS sono  $10\text{E}-12 - 10\text{E}-13$  [25,26,27]. Le difficoltà principali nella misura del  $^{41}\text{Ca}$  derivano dal fondo isobarico  $^{41}\text{K}$  e dalla bassa corrente ionica di Calcio ottenibile con le normali sorgenti a sputtering. È stato suggerito l'uso di ioni  $\text{CaH}_3^-$  [28] per eliminare  $^{41}\text{K}$ , poiché  $\text{KH}_3$  non forma ioni negativi. Sfortunatamente, le usuali sorgenti a sputtering forniscono una corrente molto bassa di ioni  $\text{CaH}_3$ .

Presso i Laboratori Nazionali di Legnaro è disponibile una sorgente a sputtering di alta intensità (GIC 860), e si può sperare di raggiungere la sensibilità necessaria. La alta risoluzione dei nostri filtri magnetici ed elettrostatici e la camera a ionizzazione ad anodi multipli possono risolvere  $^{41}\text{Ca}$  dalla interferenza isotopica ed isobarica.

### 3.3 Geologia

La misura dei radionuclidi cosmogenici (Tabella 1) può contribuire alla soluzione di una varietà di problemi geofisici [29]. Come abbiamo già accennato, questi isotopi si accumulano in riserve più o meno permanenti del nostro pianeta. In Tabella 2 riportiamo una stima dei rate di produzione globale di alcuni atomi rari, mentre in Tabella 3 sono riportate le concentrazioni naturali osservate in alcuni campioni selezionati.

Per riserve relativamente semplici come il ghiaccio antartico ed i sedimenti marini, le misure possono gettare luce sulla variazione dei rate di produzione e quindi sulla storia della radiazione cosmica (vedi paragrafo 3.1.2). In altri casi (lave vulcaniche, noduli oceanici, acque sotterranee) si ottengono piu' informazioni sulla riserva che sulla radiazione cosmica ed i radioisotopi vengono usati come traccianti e cronometri geologici.

Riporto alcuni esempi di studi che seguono quest'ultimo orientamento.

### 3.3.1 $^{36}\text{Cl}$ , Tracciante E Cronometro In Idrologia -

La relativa inerzia del  $\text{Cl}^-$  nelle acque rende questo elemento particolarmente adatto come tracciante idrologico.

Le principali sorgenti di  $^{36}\text{Cl}$  nelle acque sotterranee sono le seguenti: bombardamento di aria e rocce da parte della radiazione cosmica, attivazione delle rocce con i neutroni di fissione e test di ordigni nucleari. I contenuti di  $^{36}\text{Cl}$  e l'uso di opportuni modelli forniscono informazioni cronologiche ed idrodinamiche sui sistemi di acque. La spettrometria di massa con acceleratore rende possibile la misura dei bassi livelli di  $^{36}\text{Cl}$  incontrati.

Tale metodo e' stato applicato, per esempio, allo studio del Gran Bacino Artesiano in Australia [26]. In tale sistema il rapporto  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  decresce sistematicamente dalla sorgente alla regione di scarico. Le isocrone ottenute dalle eta' basate sul  $^{36}\text{Cl}$  sono in accordo con quelle calcolate



indipendentemente dai parametri idraulici noti del sistema.

Studi di questo tipo sono stati proposti dalle universita' di Milano e Torino. In particolare, tali gruppi hanno proposto la datazione di serbatoi idrici per lo studio dei problemi relativi allo stoccaggio di rifiuti radioattivi ed alle circolazioni idriche sotterranee in zone acide.

### 3.3.2 $^{10}\text{Be}$ Nelle Lave Vulcaniche -

Una interessante applicazione del  $^{10}\text{Be}$  come tracciante geologico e' stata fatta all'universita' di Pennsylvania nello studio dell'attivita' tettonica [30]. Il proposito di questa ricerca era di dimostrare che le lave dei vulcani dell'arco delle isole contengono tracce misurabili di sedimenti pelagici subdotti dal fondo oceanico. Il  $^{10}\text{Be}$  si comporta come un buon tracciante per la materia sedimentaria. Infatti i sedimenti oceanici possono contenere fino a  $10^{10}$  atomi di  $^{10}\text{Be}$  per grammo, mentre le rocce ignee di eta' superiore ad alcuni milioni di anni non dovrebbero contenere tale isotopo.

Il contenuto di  $^{10}\text{Be}$  nelle lave dei vulcani dell'arco delle isole risulta essere circa  $5 \times 10^6$  atomi/g, molto alto se confrontato con quello di altri vulcani.

L'esperimento presenta notevoli difficolta' per il problema della contaminazione da parte del suolo e della pioggia.

Lo stesso tipo di misure e' stato ripetuto presso la Rutgers University ed ha confermato i risultati menzionati [31].

E' stata quindi trovata l'evidenza che alcuni vulcani del Centro America emettono, entro pochi milioni di anni, materiale sedimentario che era stato sul fondo oceanico. Sono pero' necessari ulteriori studi sistematici per confermare queste conclusioni ed ottenere informazioni sulla dinamica delle placche tettoniche.

Il gruppo della Rutgers in collaborazione con l'universita' di Trieste propone di estendere tale studio ai vulcani mediterranei dell'arco delle isole.

### 3.3.3 14C, Tracciante E Cronometro Geofisico -

#### a) Geocronologia di eventi morfodinamici

Il gruppo di Napoli propone un programma di ricerca sull'uso del 14C nella geocronologia di eventi morfodinamici endogeni nell'Italia centro - meridionale.

"La ricostruzione cronologica di eventi geologici avvenuti negli ultimi 50000 anni e' di estrema importanza per talune aree campane e sud-italiane in cui la morfoevoluzione e' stata caratterizzata da una dinamica molto accelerata. Al proposito si possono citare le aree flegree nelle quali gran parte delle vulcaniti affioranti sono state messe in posto negli ultimi 50000 anni attraverso una serie di eventi che hanno completamente modificato piu' volte l'assetto morfologico esistente. La ricostruzione, peraltro, di questi eventi riveste particolare significato per lo studio dell'evoluzione del sistema magmatico flegreo nel tempo, per la modellizzazione della camera magmatica flegrea e per la previsione del futuro

comportamento del sistema.

Analogamente la possibilità di quantizzare processi geologici e geomorfologici riveste grande importanza nei problemi concernenti l'evoluzione dei versanti e delle pianure costiere, nei quali ancora una volta i ritmi morfodinamici ricadono nei tempi di utilizzo del  $^{14}\text{C}$ .

Pertanto il metodo del  $^{14}\text{C}$  assume per la ricerca geologica nell'area centro-meridionale una importanza fondamentale rispetto ad altre metodologie geocronologiche; in particolare l'utilizzo incrociato del metodo  $^{14}\text{C}$  e del metodo K - Ar (sia' utilizzato presso il Dipartimento di Geofisica e Vulcanologia dell'Università di Napoli) permetterà anche un confronto fra le due metodologie soprattutto nel range tra 40-50 mila anni, che attualmente rappresenta il limite di applicabilità superiore del  $^{14}\text{C}$  ed il limite inferiore del laboratorio K - Ar di Napoli." (Progetto di Ricerca dell'Università di Napoli, M.P.I. 40 % ).

b) Datazione di terrazzamenti Wuermiani e di stalasmiti

Ulteriori applicazioni di TAMS nella misura del  $^{14}\text{C}$  vengono proposte dall'Università di Roma.

" 1) Datazione di reperti trovati in alcuni terrazzamenti Wuermiani situati nell'Italia centrale la cui formazione si fa risalire al periodo compreso fra 40000 e 70000 anni dal presente. Tali datazioni sono di grande importanza per lo studio della geologia del Pleistocene. 2) Datazione di alcune stalasmiti, prelevate dalla grotta di Pastena (Monti Ausoni ed Ernici), i cui assi di accrescimento presentano deviazioni

causate presumibilmente da due terremoti che hanno interessato la zona." (Progetto di Ricerca dell'Università di Roma, M.P.I. 40 %).

#### c) Datazioni di trasgressioni marine

Il gruppo dell'Università di Trieste propone di usare l'alta sensibilità di TAMS per la misura del  $^{14}\text{C}$  in certi ambienti sedimentari non conservativi contenenti soltanto materia organica in traccia per risolvere importanti problemi relativi ai periodi ed ai rate di sedimentazione. In particolare ci si propone di datare con precisione la trasgressione marina post-Wuermiana nell'Alto Adriatico e gli episodi di sedimentazione (ed erosione) successivamente intervenuti.

### 3.4 Biologia E Medicina

L'Università di Padova ed i Laboratori Nazionali di Legnaro propongono di applicare la sensibilità e specificità di TAMS alla misura di elementi in traccia in campioni di interesse biologico e medico. Presso i Laboratori Nazionali di Legnaro esiste sia una notevole esperienza nella misura del Selenio in siero umano con l'uso di PIXE (Particle Induced X-ray Emission). Si propone di applicare la spettrometria di massa con acceleratore ai casi in cui le tecniche nucleari convenzionali non sono abbastanza sensibili.

TAMS puo' essere utilizzata nella misura del  $^{14}\text{C}$  in studi del metabolismo umano. E' stato proposto, per esempio, l'uso di questo radioisotopo per l'analisi della conversione glucosio-alanina. Una soluzione di glucosio marcato con  $^{14}\text{C}$  viene iniettata in vena ed analizzata in funzione del tempo.

Questo tipo di esperimenti presenta limitazioni dovute alla dose massima ammissibile di  $^{14}\text{C}$ , alla frequenza con cui i campioni di sangue possono essere prelevati ed alla quantita' di campione necessaria. La spettrometria di massa ultrasensibile permetterebbe di ridurre la quantita' di composto iniettato e la quantita' di campione necessaria per ogni analisi.

### 3.5 Fisica Nucleare

Il gruppo dell'Istituto di Fisica dell'Universita' di Trieste ha in preparazione una serie di proposte per applicazioni di TAMS in misure di interesse della Fisica Nucleare.

#### 3.5.1 Vite Medie Nucleari -

La vita media di un nucleo radioattivo viene generalmente dedotta dalle misure della attivita' in funzione del tempo. Tale metodo non e' applicabile se la vita media e' molto piu' lunga del tempo di osservazione. In questo caso la costante di decadimento e' determinata da  $dN/dt/M = -\lambda N/M$  dove  $dN/dt/M$  e' l'attivita' specifica ed  $N/M$  e' la concentrazione del radionuclide. Per certi radio-isotopi rari la concentrazione

e' troppo bassa per potere essere misurata con la spettrometria di massa convenzionale. Si deve utilizzare un acceleratore Tandem come spettrometro ultrasensibile. Tale tecnica e' stata applicata ai Laboratori Nazionali di Arsonne per la misura del tempo di dimezzamento del  $^{32}\text{Si}$ ,  $^{44}\text{Ti}$ ,  $^{60}\text{Fe}$ .

Ci sono numerosi radioisotopi le cui vite medie non sono conosciute con sicurezza:  $^{41}\text{Ca}$ ,  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{93}\text{Mo}$ ,  $^{126}\text{Sn}$ ,  $^{202}\text{Pb}$ .

### 3.5.2 Piccole Sezioni D'urto -

La misura di piccole sezioni d'urto totali di reazione (inferiori al nanobarn) puo' essere effettuata collezionando il prodotto della reazione su un foil sottile di materiale adatto (Au o C) e misurando la sua concentrazione con la spettrometria di massa basata sull'acceleratore Tandem. Questa tecnica e' stato applicato ad Arsonne per la misura della sezione d'urto della reazione  $^{26}\text{Mg}(p,n)^{26}\text{Al}$ , che e' anche di interesse dell'astrofisica. Recenti misure con il Tandem di Israele hanno dimostrato che con questa tecnica possono essere misurate sezioni d'urto fino a 2 microbarn nel caso della reazione  $^{23}\text{Na}(^{19}\text{F},\alpha p n)^{36}\text{Cl}$ .

Un altro esempio di reazioni che puo' essere studiata con questo metodo e' la cattura radiativa con produzione di isotopi a lunga vita media. Riporto alcuni esempi:  $^{14}\text{N}(^{12}\text{C},\gamma)^{26}\text{Al}$ ,  $^7\text{Li}(^7\text{Li},\gamma)^{14}\text{C}$ ,  $^7\text{Li}(^3\text{H},\gamma)^{10}\text{Be}$ .

### 3.5.3 Doppio Decadimento Beta -

Il Doppio Decadimento Beta (DDB),  $(A,Z) \rightarrow (A,Z+2)$ , può essere osservato in certi nuclei pari-pari, dove il decadimento competitivo  $(A,Z) \rightarrow (A,Z+1)$  è proibito dalle regole di selezione o dalla conservazione dell'energia. Lo studio di questo processo è importante perché può fornire informazioni, tra l'altro, sulla conservazione del numero leptonico. L'analisi diretta del DDB usando tecniche di coincidenza o emulsioni nucleari presenta notevoli difficoltà. Un metodo alternativo è la rivelazione del prodotto del decadimento, avvenuto durante periodi geologici (10E9 anni), in depositi di minerali ricchi dell'isotopo beta-beta-attivo.

Fino ad ora sono stati considerati decadimenti in depositi geologici di età nota, con prodotti finali costituiti da gas nobili, misurabili con la spettrometria di massa convenzionale:  $130\text{Te} \rightarrow 130\text{Xe}$ ,  $128\text{Te} \rightarrow 128\text{Xe}$ ,  $82\text{Se} \rightarrow 82\text{Kr}$ .

Si può usare TAMS per i casi in cui il prodotto finale del DDB non è un gas nobile.

Sono state individuate tre transizioni DDB che si prestano favorevolmente a misure con il metodo geochimico basato sulla spettrometria di massa con acceleratore:  $46\text{Ca} \rightarrow 46\text{Ti}$ ,  $48\text{Ca} \rightarrow 48\text{Ti}$ ,  $70\text{Zn} \rightarrow 70\text{Ge}$ . L'esperimento è fattibile per depositi geologici con il genitore come elemento predominante e la figlia presente a livelli di ultratraccia. L'identificazione dei nuclidi finali richiede che la figlia endosena (primordiale) non ecceda concentrazioni di circa 10E11 atomi per grammo. In alcuni dei casi considerati questa

dovrebbe essere una conseguenza della diversa temperatura di fusione o volatilizzazione della coppia di elementi considerati. Inoltre, l'uso del Tandem e' conveniente quando l'isotopo finale prodotto nel DDB forma ioni negativi piu' facilmente di quello iniziale.

Ricordiamo alcuni tra i problemi irrisolti nello studio del DDB: a) il limite superiore posto sul rate di decadimento dagli esperimenti geochimici e' molto piu' piccolo di quello previsto dalla teoria; b) ci sono disaccordi tra i risultati ottenuti con le misure dirette e quelli ottenuti con il metodo geochimico sulla stessa transizione beta-beta.

#### 3.5.4 Neutrini Solari -

E' stato suggerito l'uso della spettrometria di massa ultrasensibile con il Tandem per rivelare i radioisotopi a lunga vita media prodotti nelle reazioni dei neutrini solari con gli opportuni nuclei bersaglio.

Negli esperimenti proposti tali reazioni sono integrate su scale temporali di tipo geologico, con bersagli naturali in depositi collocati a grande profondita' nel sottosuolo.

L'uso del metodo di rivelazione basato sul rapporto  $^{37}\text{Ar}/^{37}\text{Cl}$  ha indicato un flusso di neutrini solari molto piu' basso di quanto aspettato. Tenuto conto della complessita' dello spettro dei neutrini solari, sarebbe interessante continuarne lo studio usando una varieta' di nuclei.



Altri rivelatori dei neutrini solari potrebbero essere basati sulle seguenti reazioni:  $41\text{K} \rightarrow 41\text{Ca}$ ,  $98\text{Mo} \rightarrow 98\text{Tc}$ ,  $137\text{Ba} \rightarrow 137\text{La}$ .

I principali fattori che devono essere considerati nello scegliere il rivelatore di neutrini solari sono: 1) rapporto nucleo prodotto - nucleo target in equilibrio, 2) abbondanza isotopica del nucleo target, 3) fondo prodotto dalle reazioni competitive (transizioni indotte da muoni e da neutroni), 4) facilità ed efficienza nella rivelazione dell'isotopo prodotto.

#### 4.0 CONCLUSIONI

E' stato illustrato l'uso degli acceleratori Tandem XTU dei Laboratori Nazionali di Legnaro e TTT-3 dell'Universita' di Napoli in sistemi spettrometrici di massa per misure di abbondanze isotopiche comprese nell'intervallo  $10E-9$  -  $10E-15$ .

Una collaborazione delle Universita' di Milano, Napoli, Padova, Roma, Torino e Trieste propone di utilizzare questa tecnica per la misura di isotopi cosmogenici a lunga vita media in applicazioni di interesse interdisciplinare. Il programma e' stato illustrato nella presente relazione con riferimento a studi analoghi effettuati con successo presso altri laboratori stranieri.

Il Tandem di Napoli e' stato modificato per effettuare misure di  $^{14}C$  in campioni naturali. I rapporti isotopici devono essere determinati con una precisione di almeno 1 %, corrispondente ad una incertezza sull'eta' di 83 anni. A tal fine, si deve assicurare la stabilita' di tutti gli elementi di trasporto del fascio, il controllo della tensione di terminale ed il monitoraggio della trasmissione. L'alta sensibilita' permettera' di estendere enormemente il campo di applicazioni in Geologia, Paleontologia ed Archeologia.

Le capacita' del sistema spettrometrico di massa basato sul tandem XTU sono state recentemente dimostrate con misure preliminari di  $^{10}Be$  in campioni standard con rapporti isotopici  $1.21 \times 10E-9$ ,  $8.8 \times 10E-9$ ,  $7.27 \times 10E-11$ . La sensibilita', accuratezza e linearita' nella misura di rapporti isotopici  $^{10}Be/^{9}Be$  sono soddisfacenti.

Le necessarie modifiche del sistema spettrometrico di massa di Lennard sono in corso e permetteranno la rivelazione di una varietà di nuclidi rari stabili e radioattivi, per applicazioni di interesse della Geologia, Cosmocronologia, Medicina, etc. La richiesta di precisione per la misura del  $^{10}\text{Be}$  e degli altri nuclidi cosmogenici non è stringente come per il caso del  $^{14}\text{C}$ . Ciò è evidente se si considera la Tabella 3 che elenca le concentrazioni isotopiche del  $^{10}\text{Be}$  e di altri isotopi rari per alcuni materiali selezionati, dove si notano variazioni di parecchi ordini di grandezza.

Sono stati promettati ulteriori miglioramenti che renderanno possibili anche misure di interesse della Fisica Nucleare ( doppio decadimento beta, reazioni dei neutrini solari, piccole sezioni d'urto, vite medie nucleari).

## RIFERIMENTI BIBLIOGRAFICI

1. Proc. III International Symposium on Accelerator Mass Spectrometry, 1984, Zurich.
2. R. Middleton, Proc. III Int. Symp. on Acc. Mass Spec., 1984, Zurich.
3. J. Kerkisch and A. Sorio, *Analyt. Chim. Acta* 82 (1976) 311.
4. R. K. Moniot, T. H. Kruse, C. Tuniz, W. Savin, G. S. Hall, T. Milazzo, D. K. Pal e G. F. Herzog, *Geochim. Cosmochim. Acta* 47 (1983) 1887.
5. D. K. Pal, R. K. Moniot, T. H. Kruse, C. Tuniz, G. F. Herzog, *Earth Planet. Sci. Lett.* 1984, in corso di stampa.
6. D. K. Pal, C. Tuniz, R. K. Moniot, W. Savin, T. H. Kruse, G. F. Herzog, *Lunar and Planetary Science IV*, 1983, pag. 588.
7. C. Tuniz, C. M. Smith, R. K. Moniot, W. Savin, T. H. Kruse, D. K. Pal, G. F. Herzog, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 1984, in corso di stampa.
8. P. Englert, C. Theis, R. Michel, C. Tuniz, R. K. Moniot, S. Vajda, T.H. Kruse, D. K. Pal, G. F. Herzog, *Nucl. Instr. Meth.*, 1984, in press.

9. C. Tuniz, D. K. Pal, R. K. Moniot, W. Savin, T. H. Kruse, G. F. Herzog, *Geophys. Res. Lett.* 10 (1983) 804.
10. D. K. Pal, C. Tuniz, R. K. Moniot, W. Savin, S. Vajda, T.H. Kruse, G.F. Herzog, *Workshop on Cosmogenic Nuclides, Los Alamos National Laboratory, 1984.*
11. D. K. Pal, C. Tuniz, R. K. Moniot, T. H. Kruse, G. F. Herzog, *Science* 218 (1982) 787.
12. K. Nishiizumi, J. R. Arnold, D. Elmore, X. Ma, D. Newman, *Earth Planet. Sci. Lett.* 62 (1983) 407.
13. G. m. Raisbeck, F. You, M. Lieuvir, J. C. Ravel, M. Fruneau, et al. , *Proc. Symp. Acc. Mass Spec., Arsonne, Ill. ANL/PHY-81-1 (1981).*
14. J. Beer, M. Andree, H. Oeschner, G. Bonani, H. J. Hofman, E. Morenzoni, M. Nessi, M. Suter, W. Hoelfli, R. Finkel, C. Lansway, *Proc. III Int. Symp. Acc. Mass Spec., 1984, Zurich.*
15. D. Elmore, *Proc. V Int. Conf. on Geochron. Cosmochron. and Isotope Geol. p. 88, (1982).*
16. J. Beer, M. Andre, H. Oeschner, B. Stauffer, R. Balzer, et al., *Radiocarbon* 25 (1983) 269.

17. T. Ticich, L. Lundberg, D. K. Pal, C. M. Smith, G. F. Herzog, R. K. Moniot, C. Tuniz, H. Savin, T. H. Kruse, *Journ. of Geophys. Res.*, 1984, in corso di stampa.
18. D. Lal, *Workshop on Cosmogenic Nuclides*, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, NM, luglio 1984, *Proc.*
19. L. Lundberg, T. Ticich, G. F. Herzog, T. Hughes, G. Ashley, R. K. Moniot, C. Tuniz, T. H. Kruse, H. Savin, *Journ. of Geophys. Res.* 88 (1983) 4498.
20. G. Cini Castagnoli and G. Bonino, S. Miono, *Il Nuovo Cimento*, 5C (1982) 488.
21. G. Cini Castagnoli, G. Bonino, M. R. Attolini, M. Gallik, L. Russiero, *Il Nuovo Cimento*, in corso di stampa.
22. R. E. Taylor, *Proc. III Int. Symp. Acc. Mass Spec.*, Zurich, 1984, pag. 11.
23. G. M. Raisbeck and F. You, *Nature* 277 (1979) 42.
24. D. C. Johanson and M. Taieb, *Nature* 280 (1976) 293
25. D. Fink, O. Meirav, M. Paul, H. Ernst, W. Hennings, W. Kutschera, R. Kaim, A. Kaufman, M. Masarik, *Proc. III Int. Symp. Acc. Mass Spec.*, 1984, Zurich.

26. D. Elmore, P. Kubik, H. Gove, L. Tubbs, N. Conard,  
ibidem.
27. P. Hille, W. Hennings, G. Korscinek, H. J. Sheerer,  
W. Mayer, P. Kubik, H. Ernst, E. Nolte, ibidem.
28. G. M. Raisbeck, F. You, A. Pashaire, J. Guillot,  
J. Uzureau, Proc. Symp. Acc. Mass Spec., ANL,  
1981.
29. D. Lal, B. Peters, Handb. Physic, XLVI 2 (1967)  
551.
30. L. Brown, J. Klein, R. Middleton, J. S. Sacks, F.  
Tera, Nature 299 (1982) 718.
31. C. Tuniz, R. K. Moniot, W. Savin, S. Vajda, T.  
H. Kruse, D. K. Pal, G. F. Herzos, M. J. Carr,  
Nucl. Instr. Meth., 1984, in corso di stampa.

**DESCRIZIONE DELLE TABELLE**

1. Isotopi cosmogenici rivelati con la spettrometria di massa con acceleratore. I limiti di rivelazione e le concentrazioni terrestri si riferiscono all'isotopo stabile dello stesso elemento.  $^{14}\text{N}$ ,  $^{26}\text{Mg}$ ,  $^{36}\text{Ar}$  e  $^{129}\text{I}$  non formano ioni negativi stabili.
2. Rate di produzione globale terrestre per alcuni radionuclidi cosmogenici.
3. Concentrazioni naturali di radioisotopi cosmogenici osservate in alcuni campioni selezionati.



TABELLA 1

Isotopo	Vita media (anni)	Interferenze		Limite di Rivelazione TAMS	Concentrazioni in materiale terrestre	
		Isotopi	Isobari			
10Be	1.6x10E6	9Be	10B	7x10E-15	10E-8	10E-14
14C	5.7x10E3	12,13C	14N	.3x10E-15	10E-12	10E-16
26Al	7.2x10E5	27Al	26Mg	10x10E-15		10E-14
36Cl	3.1x10E5	35,36Cl	36S,36Ar	.2x10E-15	10E-12	10E-17
41Ca	1.3x10E5	40,42Ca	41K	500x10E-15	10E-15	10E-16
129I	15.9x10E6	127I	129Xe	100x10E-15		10E-16

TABELLA 2

Isotopo	Rate di produzione (atomi/cm <sup>2</sup> sec)
10Be	2.1x10E-2
14C	1.57
26Al	1.1x10E-4
36Cl	1.1x10E-3

TABELLA 3

Campione	Concentrazioni		
	(atomi/g)		
	10Be	26Al	36Cl
aria stratosferica	10E4	30	
fiocina	2x10E4		2000
superficie oceano	750		
profondita' oceano	4000		
sedimenti pelagici	5x10E9	4x10E7	
superficie noduli Mn	5x10E10	2x10E8	
ghiaccio Groenlandia (pres.)	10E4		4000
ghiaccio Antartide (pres.)	4x10E4		4000
sedimenti marini cont.	3x10E8		
fosforiti	10E9		
suolo terrestre	10E7-10E9		
sedimenti lacustri	10E8-10E10		
acque sotterranee			5000-5x10E4
legno	5x10E8		
petrolio pleistocene	5x10E8		
mat. org. sedimenti	2x10E10		
basalti arco isole	5x10E8		
basalti non arco isole	2x10E5		
meteoriti di pietra	3x10E10	3x10E10	7x10E9
superficie lunare	1.5x10E10	2.4x10E10	2.5x10E8
tectiti Australasia	10E8	< 2x10E7	

## DESCRIZIONE DELLE FIGURE

1. L'acceleratore Tandem XTU utilizzato come spettrometro di massa ultrasensibile per misure di  $^{10}\text{Be}$ .
2. Sistema per l'identificazione finale del  $^{10}\text{Be}$ .
3. Spettro  $E - dE$  ottenuto con lo standard avente  $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be} = 7.27 \times 10^{-11}$  (assorbitore di alluminio);  $dE$  e' l'energia specifica perduta dagli ioni ed  $E$  e' la loro energia residua.
4. Come la figura precedente, con assorbitore di zirconio.
5. Spettro  $E - dE$  ottenuto con un campione privo di  $^{10}\text{Be}$  (blank) in 20 minuti di misura.
6. Linearita' del sistema spettrometrico di massa. Sull'asse orizzontale e' riportato il rapporto isotopico del campione determinato con il conteggio della radioattivita' beta. Sull'asse verticale e' riportato il rapporto tra il rate di conteggio del  $^{10}\text{Be}$  misurato con il telescopio e la corrente del  $^{9}\text{Be}$  misurata con la Faraday cup posta nell'immagine del magnete analizzatore. La linearita' risulta buona. I campioni 1, 2 e 3 erano stati preparati alla Rutgers University con diluizioni successive di una soluzione di  $^{10}\text{Be}$  preparato artificialmente.

7. Spettro E - dE ottenuto con un campione blank di Cloro, trasmettendo massa 36 ed utilizzando il telescopio di silici.
8. Filtro elettrostatico con deflessione di 20 gradi progettato dalla Università di Rochester e parzialmente realizzato presso i Laboratori Nazionali di Legnaro.
9. Camera di ionizzazione con assorbitore sassoso, progettata alla Rutgers University e parzialmente realizzata presso i Laboratori Nazionali di Legnaro.
10. Sistema spettrometrico di massa basato sull'acceleratore Tandem XTU, completo per la misura di isotopi rari medio - pesanti.

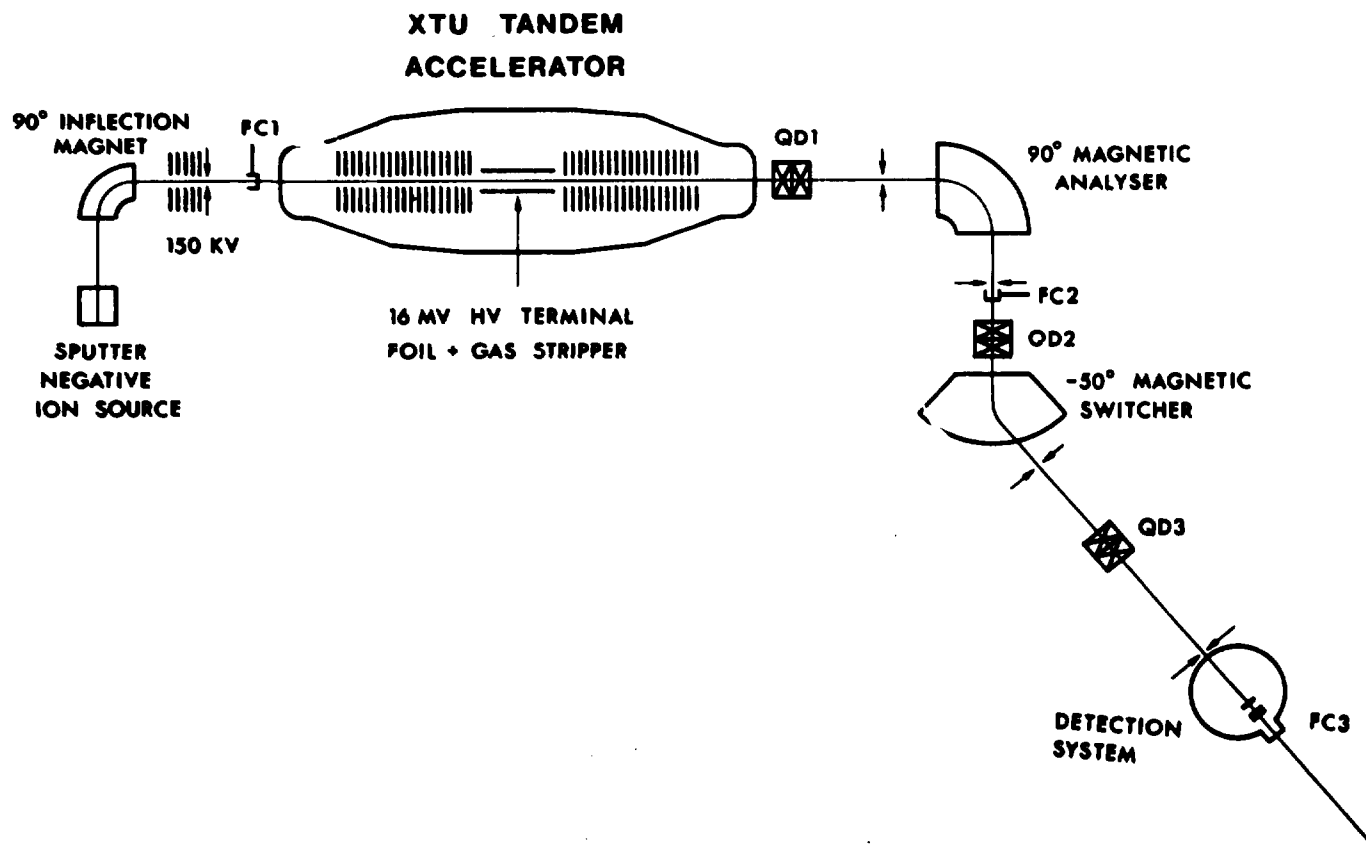


FIG. 1

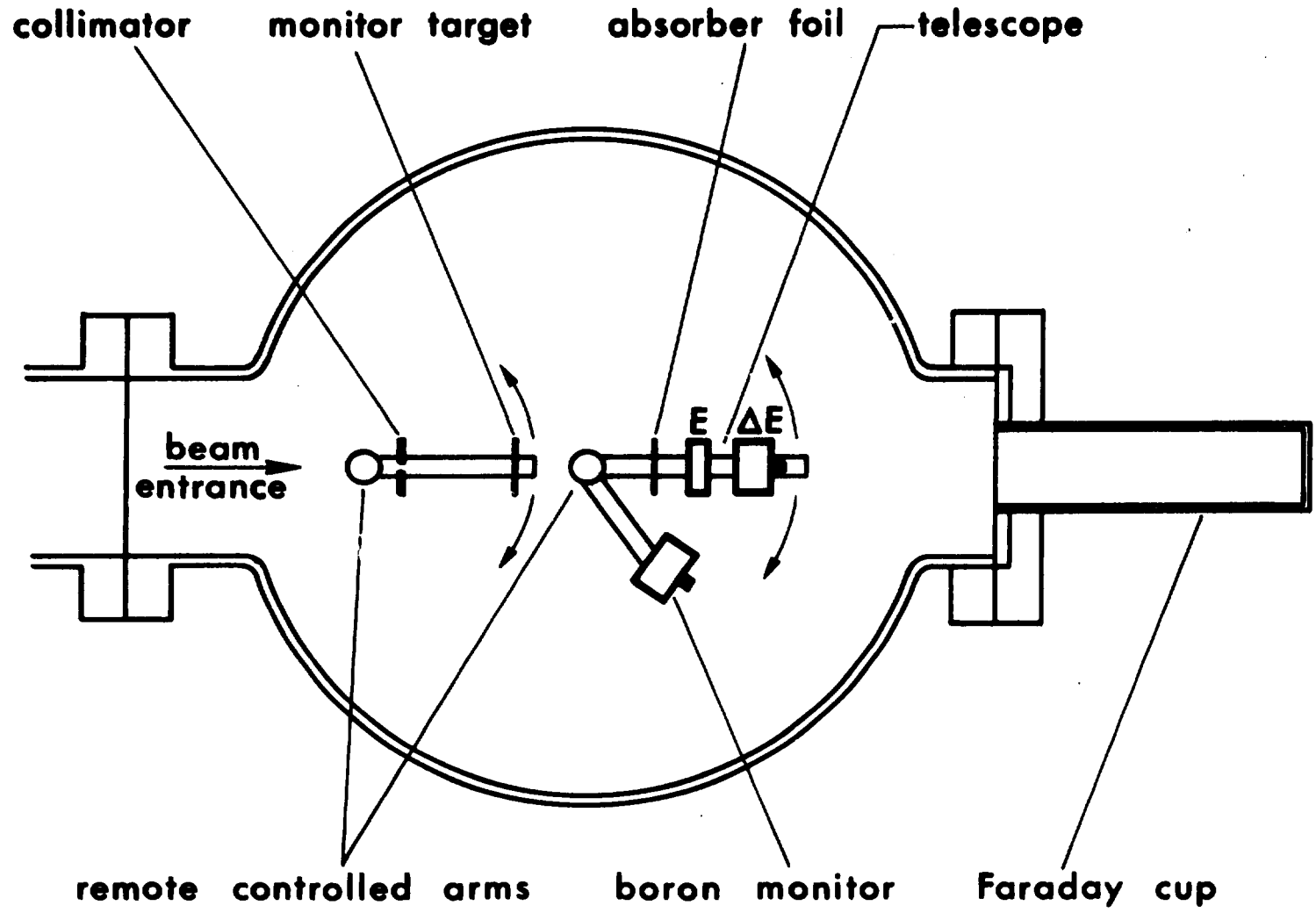


FIG. 2

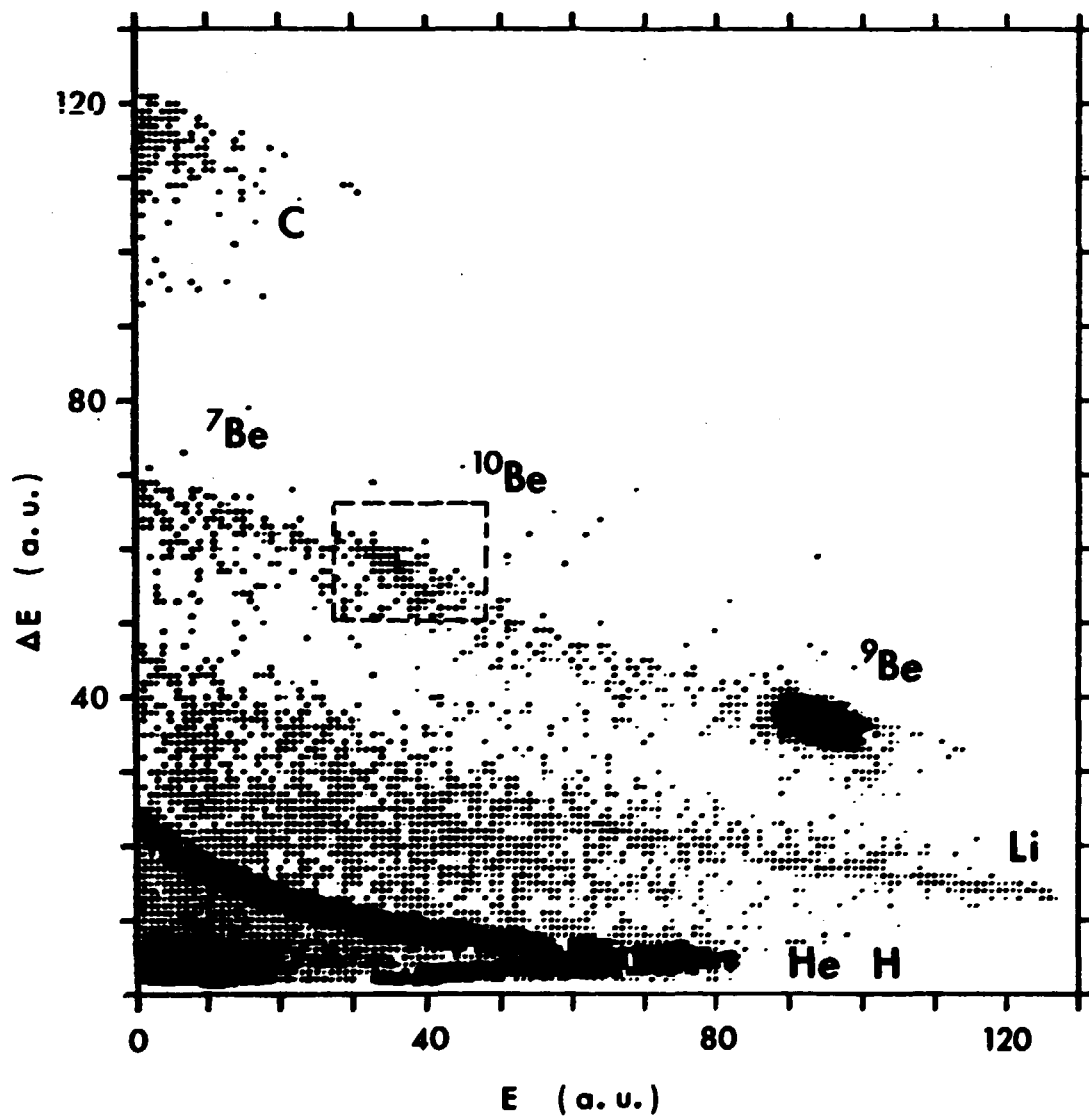


FIG. 3



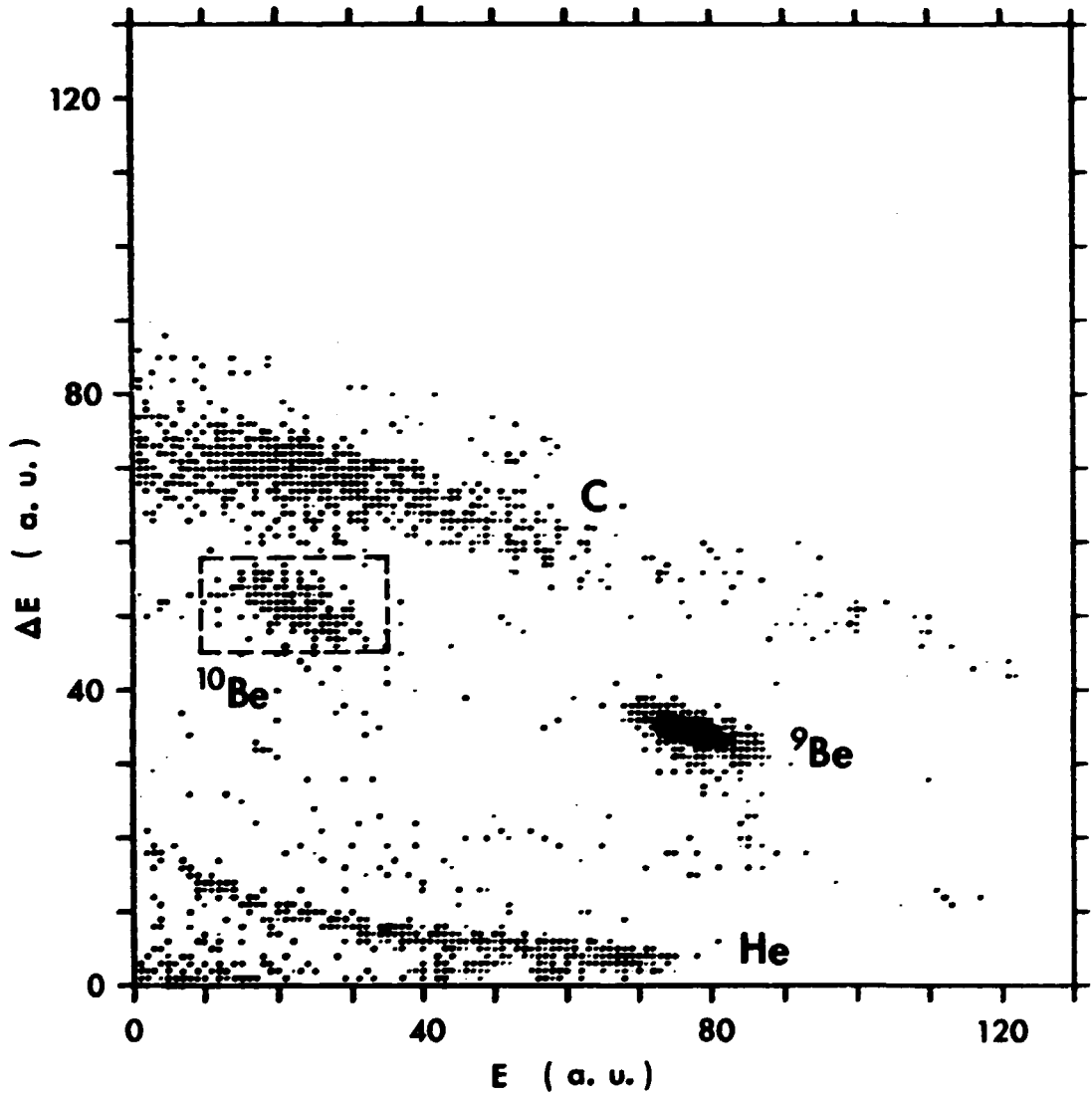


FIG. 4

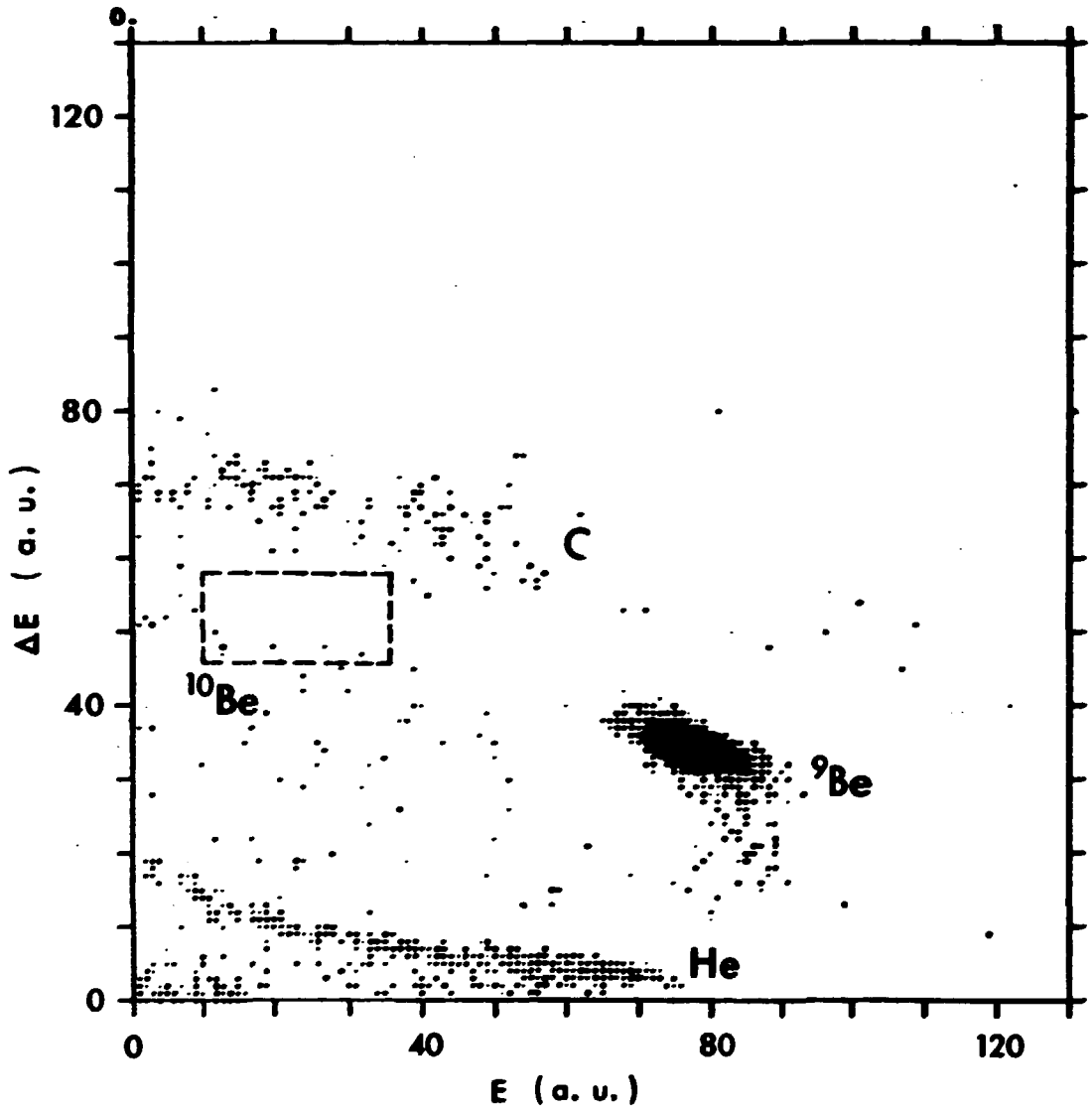


FIG. 5

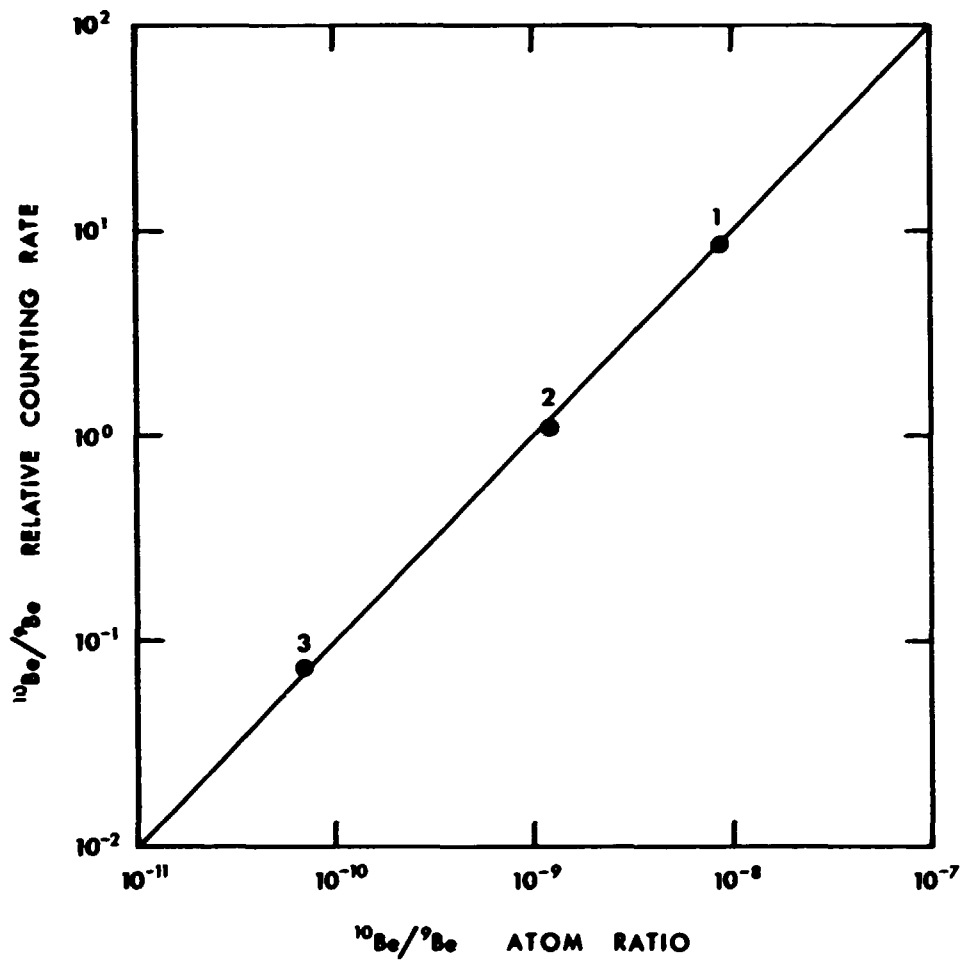


FIG. 6

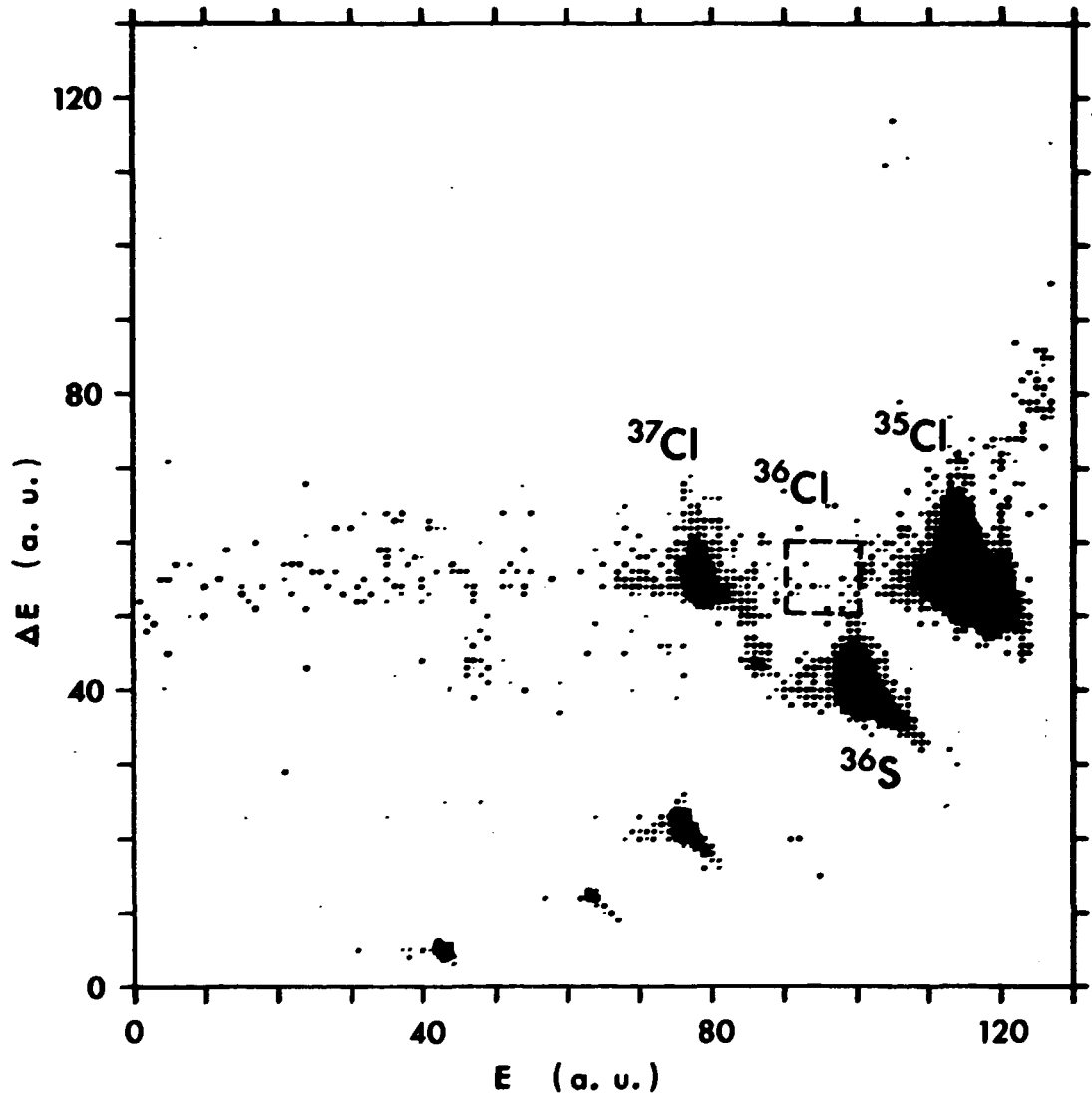


FIG. 7

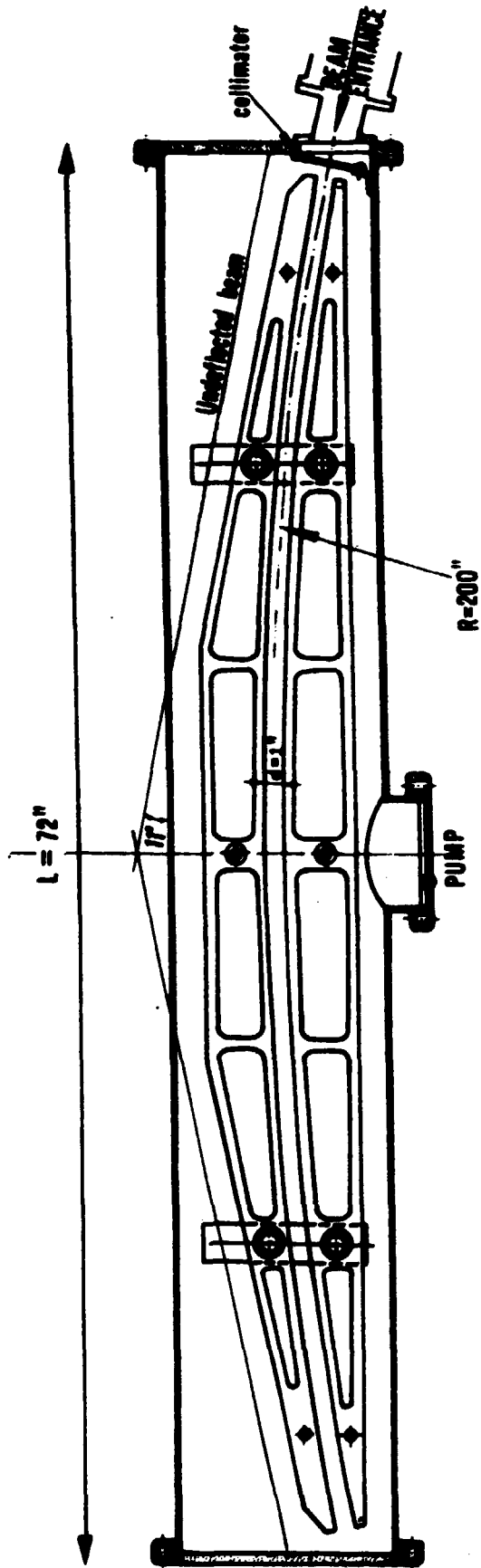
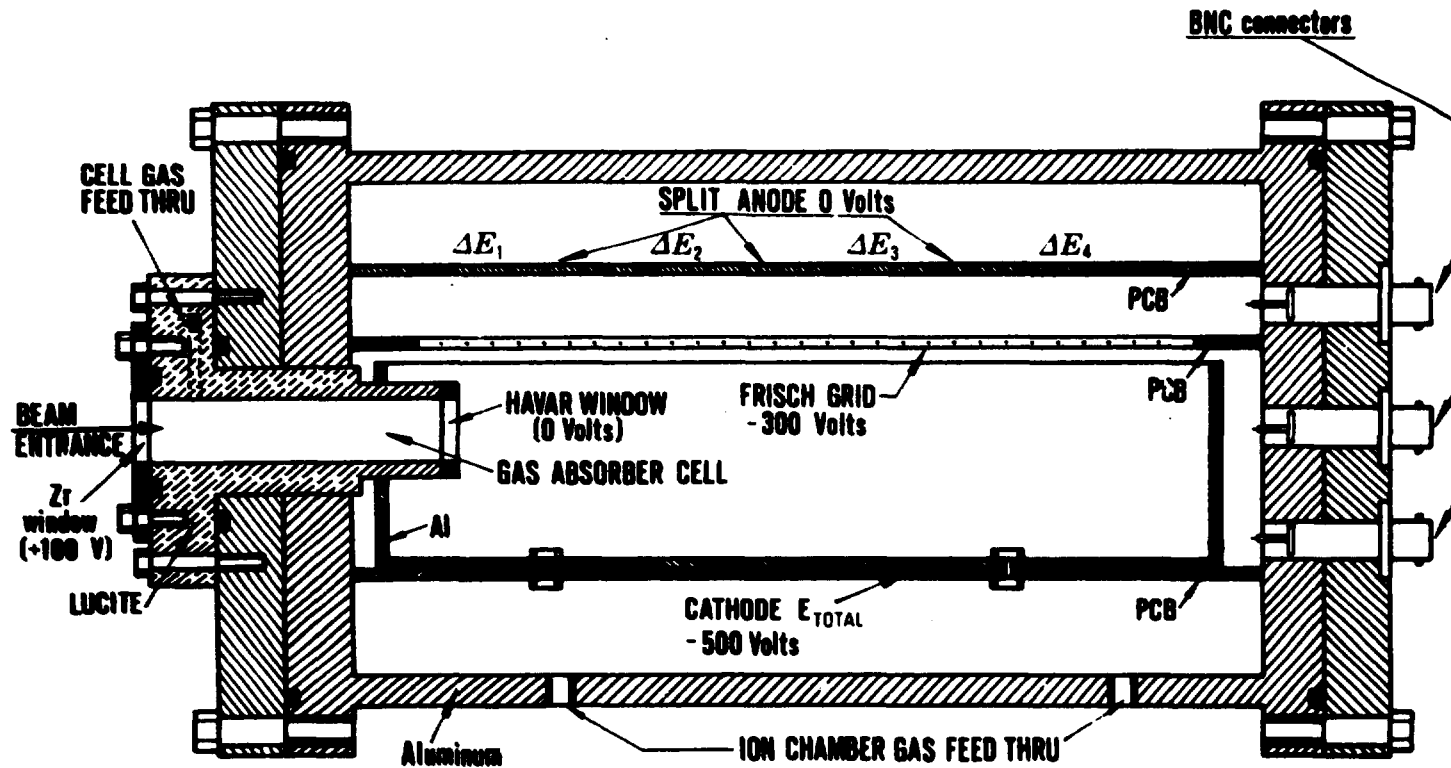


FIG. 8



PCB = Printed Circuit Board

HEAVY ION TELESCOPE WITH GAS ABSORBER CELL

FIG. 9

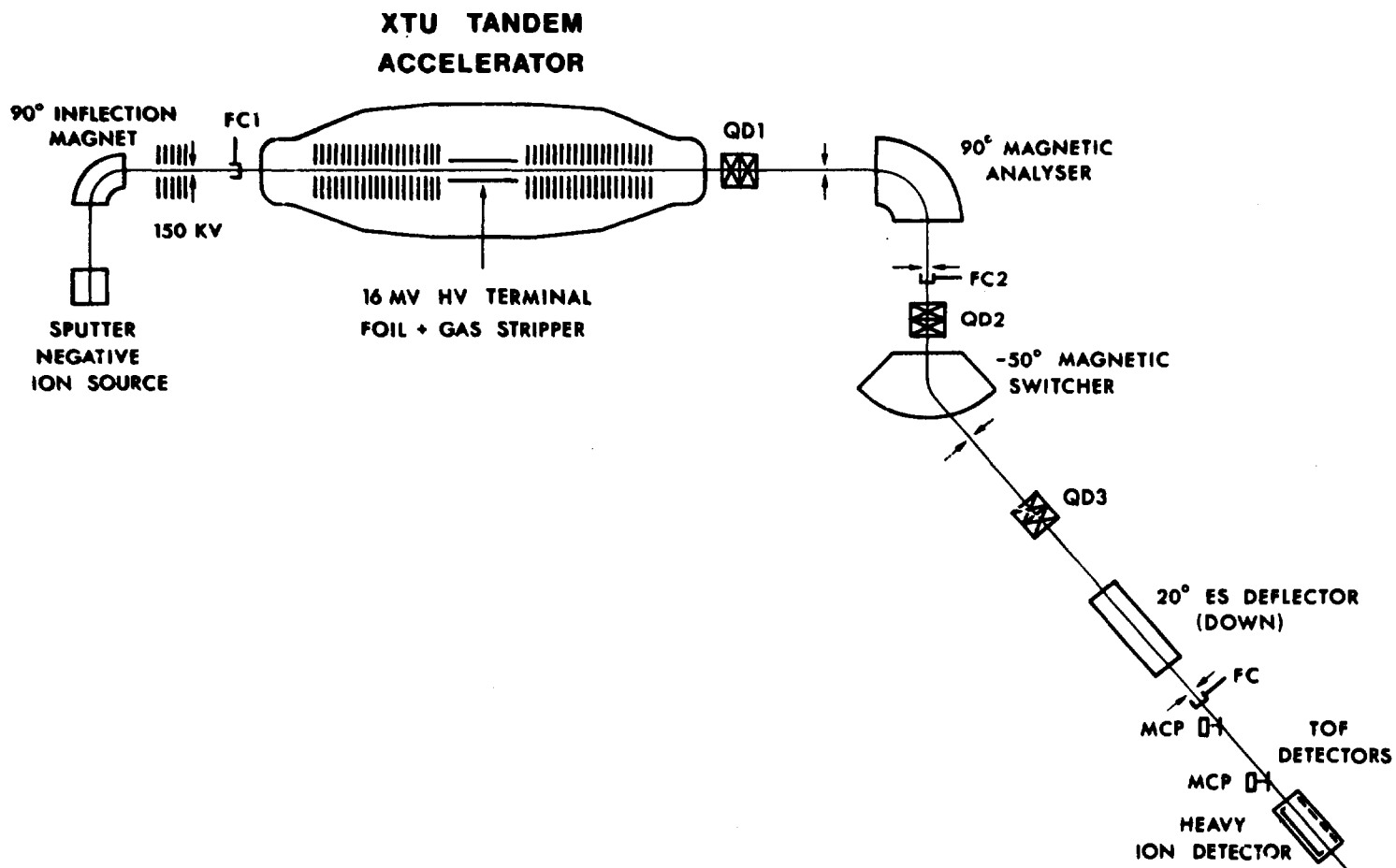


FIG. 10

## APPENDICE

Nell'ambito del programma nazionale possono essere distinte le seguenti linee di ricerca:

1. Misure di interesse della cosmocronologia.

Gruppi interessati:

Dipartimento di Fisica di Padova e Laboratori Nazionali di Legnaro;

Istituto di Fisica di Trieste.

Nuclidi misurati:  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{129}\text{I}$ .

2. Misure di interesse archeologico e paleontologico.

Gruppi interessati:

Dipartimento di Fisica di Roma;

Dipartimento di Fisica e di Scienze della Terra di Napoli;

Dipartimento di Fisica di Padova e Laboratori di Legnaro;

Istituto di Fisica di Trieste.



Nuclidi misurati:  $^{14}\text{C}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ .

3. Misure di interesse geologico.

Gruppi interessati:

Istituto di Fisica Generale Applicata;

Istituto di Geologia di Torino;

Dipartimento di Fisica e di Scienze della Terra di  
Napoli;

Dipartimento di Fisica di Roma;

Dipartimento di Fisica e di Geologia di Padova e  
Laboratori di Legnaro;

Istituto di Fisica e di Geologia di Trieste.

Nuclidi misurati:  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{26}\text{Al}$ .

4. Misure di interesse biologico e medico.

Gruppi interessati:

Istituto di Fisica di Padova e Laboratori Nazionali di  
Legnaro;

Dipartimento di Fisica di Napoli;

Istituto di Fisica di Trieste.

Nuclidi misurati:  $^{14}\text{C}$  e  $^{129}\text{I}$ .

5. Misure di interesse della Fisica Nucleare.

Gruppi interessati:

Istituto di Fisica di Trieste;

Dipartimento di fisica e Laboratori Nazionali di  
Legnaro.

Nuclidi misurati: vari.

## INDICE

1.0	PREMESSA . . . . .	3
2.0	METODI SPERIMENTALI . . . . .	5
2.1	Vantaggi Della Spettrometria Di Massa Ad Alte Energie . . . . .	5
2.2	Spettrometria Di Massa Basata Sul Tandem XTU . . . .	6
2.3	Spettrometria Di Massa Basata Sul Tandem TTT-3 . . .	11
2.4	Preparazione Campioni . . . . .	12
2.4.1	Carbonio . . . . .	13
2.4.2	Berillio . . . . .	14
3.0	APPLICAZIONI . . . . .	15
3.1	Cosmocronologia . . . . .	15
3.1.1	Meteoriti . . . . .	15
3.1.2	Riserve Terrestri . . . . .	17
3.2	Archeologia E Paleontologia . . . . .	20
3.3	Geologia . . . . .	22
3.3.1	$^{36}\text{Cl}$ , Tracciante E Cronometro In Idrologia . . . .	23
3.3.2	$^{10}\text{Be}$ Nelle Lave Vulcaniche . . . . .	24
3.3.3	$^{14}\text{C}$ , Tracciante E Cronometro Geofisico . . . . .	25
3.4	Biologia E Medicina . . . . .	27
3.5	Fisica Nucleare . . . . .	28
3.5.1	Vite Medie Nucleari . . . . .	28
3.5.2	Piccole Sezioni D'urto . . . . .	29
3.5.3	Doppio Decadimento Beta . . . . .	30
3.5.4	Neutrini Solari . . . . .	31
4.0	CONCLUSIONI . . . . .	33