

Workshop
Spettrometria gamma ad alta risoluzione

**Determinazione dell'attività di radionuclidi gamma emettitori.
Normativa tecnica e criticità**

R. Rusconi – ARPA Lombardia – Centro Regionale Radioprotezione

r.rusconi@arpalombardia.it

La normativa tecnica nazionale prima della norma UNI 11665

1. **UNI 8565:1985** Determinazione di radionuclidi gamma emettitori nelle **urine**
2. **UNI 9882:1991** Determinazione dei **principali radionuclidi** nel **latte**
3. **UNI 9889:1991** Energia nucleare. Determinazione della **radioattività naturale** nei **carboni** e in **ceneri di carbone** con spettrometria gamma ad elevata risoluzione
4. **UNI 10136:1992** Determinazione di emettitori gamma in **matrici agroalimentari** e prodotti derivati
5. **UNI 10797:1999 Radionuclidi naturali** nei **materiali da costruzione** - Determinazione mediante spettrometria gamma ad alta risoluzione

Metodi specifici per
matrice e/o
radionuclide



Gruppo di lavoro SC2/GL 01 UNI "Metodi radiometrici di misura su campioni alimentari e ambientali" (2015 – 2016)

1. Maurizio Forte – ARPA Lombardia
2. Luca Albertone – ARPA Piemonte
3. Silvia Arrigoni – ARPA Lombardia
4. Sandro Bortoluzzi – ENEA Saluggia
5. Fabio Frizza – SOGIN
6. Marco Fumagalli – SOGIN
7. Massimo Garavaglia – ARPA Friuli
8. Monica Gattinoni – TNE
9. Vittorio Moroni – AMETEK
10. Rosella Rusconi – ARPA Lombardia
11. Paola Sabatini – ARPA Umbria

**UNI 11665: 2017 - Determinazione di radionuclidi gamma emettitori
mediante spettrometria gamma ad alta risoluzione**

La normativa tecnica nazionale prima della norma UNI 11665

1. **UNI 8565:1985** Determinazione di radionuclidi gamma emettitori nelle **urine**

- Rivelatori NaI
- Prevista revisione completa intera serie urine

2. **UNI 9882:1991** Determinazione dei **principali radionuclidi nel latte**

- (Cs-137) + Sr-90

3. ~~UNI 9889:1991~~ Energia nucleare. Determinazione della **radioattività naturale** nei **carboni** e in **ceneri di carbone** con spettrometria gamma ad elevata risoluzione

4. ~~UNI 10136:1992~~ Determinazione di emettitori gamma in **matrici agroalimentari** e prodotti derivati

5. ~~UNI 10797:1999~~ **Radionuclidi naturali** nei **materiali da costruzione** - Determinazione mediante spettrometria gamma ad alta risoluzione

La normativa tecnica internazionale

- 1. UNI EN ISO 10703:2015** Qualità dell'**acqua** -
Determinazione della concentrazione di attività dei
radionuclidi - Metodo per spettrometria gamma ad alta
risoluzione **GdL acqua**
- 2. UNI EN ISO 18589-3:2017** Misurazione della
radioattività nell'ambiente - **Suolo** - Parte 3:
Misurazione di radionuclidi gamma emettitori
mediante spettrometria a raggi gamma **GdL suolo**
- 3. ISO/DIS 20042** Measurement of radioactivity –
Gamma emitting radionuclides – **Generic test
method** using gamma spectrometry [**Under
development**] **GdL strumenti**



La norma UNI 11665: 2017 - Determinazione di radionuclidi gamma emettitori mediante spettrometria gamma ad alta risoluzione

PRINCIPALI NOVITA'

➤ Il metodo dalla A alla Z (escluso il campionamento), approccio indipendente da MATRICE e RADIONUCLIDE



➤ Non contiene formule, sancisce l'uso dei software



➤ Nella parte cogente la norma è volutamente «generica», definisce **COSA** si deve fare ma lascia libertà su **COME** farlo (Appendici informative)

➤ In Appendice C: esempi numerici di applicazione dei fattori correttivi, ripetibilità, etc.



UNI 11665: Novità in dettaglio

CAMPO DI APPLICAZIONE (par. 2) definito in termini di:

a) energia: 5 keV – 3000 keV

➤ 50 keV 2000 keV: più utilizzato

b) attività: **dalla sensibilità analitica** fino a 10^5 Bq (con pretrattamenti e diluizioni: anche oltre)

c) matrice: **tutti i materiali che si possono ridurre a campioni omogenei**, in particolare campioni biologici, industriali, rifiuti ed effluenti, matrici alimentari e ambientali

L'accreditamento può essere richiesto per **SOTTOINSIEMI** del campo di applicazione

**Miglior controllo
effetto matrice
+ densità**

UNI 11665: Novità in dettaglio

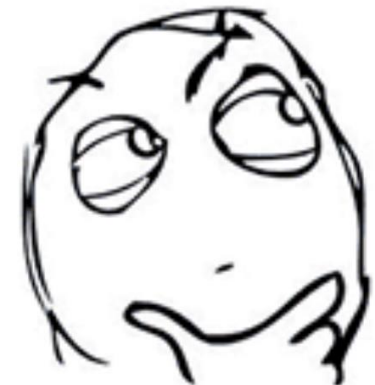
- Prevede esplicitamente la possibilità di utilizzare **software commerciali** per l'elaborazione degli spettri (Par. 10 – Apparecchiature), non contiene formule:

Parte integrante del sistema di acquisizione ed elaborazione dati è costituita da un personal computer e da pacchetti software di acquisizione, calcolo e gestione delle misurazioni. I software commerciali di utilizzazione generale, entro il loro previsto campo di applicazione, possono essere considerati sufficientemente validati (vedere UNI CEI EN ISO/IEC 17025:2005).



Ok, ma usati come?

**ABILITAZIONE
ALL'USO?**

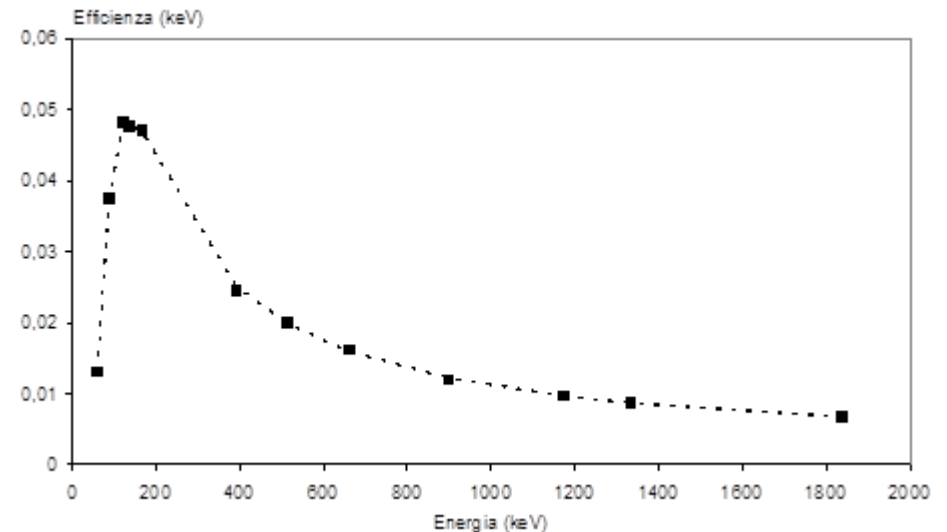


UNI 11665: Novità in dettaglio

Prevede diverse possibilità per realizzare la **taratura in efficienza** (Par.11.1.3):

a) **comparazione diretta** con una sorgente di riferimento certificata dello stesso radionuclide

b) misura dell'efficienza in funzione dell'energia con una sorgente di riferimento certificata con emissioni multiple e curva di interpolazione (**QCY+SW**)



c) metodi Monte Carlo o altri metodi numerici (**trasferimento di efficienza**). In questo caso la taratura deve essere verificata almeno in un caso mediante utilizzo di sorgente di riferimento certificata



UNI 11665: Novità in dettaglio

Fornisce indicazioni sui riferimenti raccomandati per i **dati nucleari** (Par. 11.4): riferimento principale **Decay Data Evaluation Project**

http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm

(*Type of updates: **N** - new evaluation; **1** - update in comments only; **2** - minor update in table; **3** - major update in table)

Nuclide		Tables	Comments	ASCII files			Vol.	UpDate	Type*
				ENSDF	PenNuc	Lara			
Ac-225	²²⁵ Ac	table	comments	ensdf	pennuc	txt	5	26/08/2009	3
Ac-227	²²⁷ Ac	table	comments	ensdf	pennuc	txt	4	16/02/2009	2
Ac-228	²²⁸ Ac	table	comments	ensdf	pennuc	txt	6	22/01/2010	3
Ag-108	¹⁰⁸ Ag	table	comments	ensdf	pennuc	txt	3	4/09/2006	2
Ag-108m	^{108m} Ag	table	comments	ensdf	pennuc	txt	3	17/01/2012	2
Ag-110	¹¹⁰ Ag	table	comments	ensdf	pennuc	txt	1	12/03/2004	1
Ag-110m	^{110m} Ag	table	comments	ensdf	pennuc	txt	1	24/03/2004	1
Al-26	²⁶ Al	table	comments	ensdf	pennuc	txt	99	24/07/2003	1
Am-241	²⁴¹ Am	table	comments	ensdf	pennuc	txt	5	20/08/2010	2
Am-242	²⁴² Am	table	comments	ensdf	pennuc	txt	5	18/01/2011	2
Am-242m	^{242m} Am	table	comments	ensdf	pennuc	txt	6	18/01/2011	2

Nota bene: 1 anno = 365,24 giorni



UNI 11665: Novità in dettaglio

Stima dell'attività (par. 12 + Appendice C)

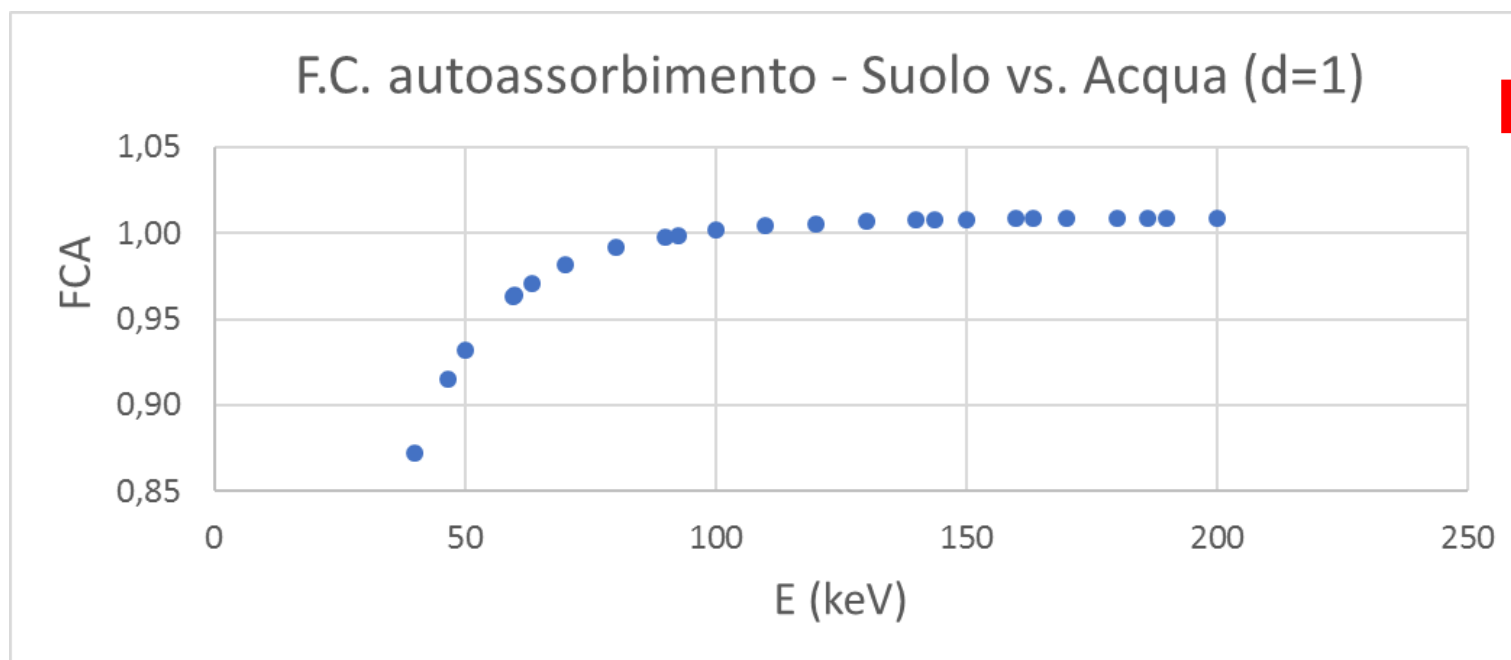
- Elenca i fattori correttivi che devono essere utilizzati
- Contiene indicazioni ed esempi numerici dei fattori correttivi per **somma in coincidenza e autoassorbimento**

UNI 11665: Novità in dettaglio

Esempio: autoassorbimento in un campione di suolo

- ✓ Sorgente di taratura: soluzione acquosa ($d=1 \text{ g/cm}^3$)
- ✓ Campione: suolo siliceo standard* ($d=1 \text{ g/cm}^3$)

* Suolo = 67,5% SiO_2 + 10% H_2O + 11% O + 7,1% Al + 3,2% Fe + 1,2% C



$E > 100 \text{ keV}$



$FCA = 1$

UNI 11665: Novità in dettaglio

Esempio: autoassorbimento in campioni di origine biologica
(alimenti, matrici vegetali, etc)

- ✓ Sorgente di taratura: soluzione acquosa ($d=1 \text{ g/cm}^3$)
- ✓ Campioni di origine biologica
- ✓ Densità campione = Densità sorgente $\pm 0,1 \text{ g/cm}^3$ (generalmente vero)



Per $E > 100 \text{ keV}$ l'effetto della composizione chimica può ritenersi trascurabile

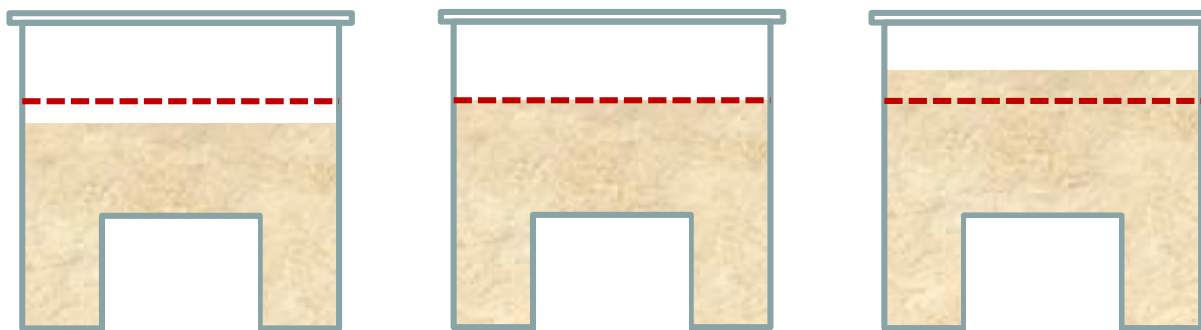
UNI 11665: Novità in dettaglio

Entro limiti definiti (in termini di energia, composizione chimica e densità) alcune correzioni sono trascurabili e/o possono essere gestite come contributo aggiuntivo all'incertezza di misura (esempi in Appendice C)

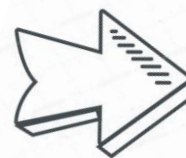
UNI 11665: Novità in dettaglio

Stima dell'incertezza (par. 12)

La stima dell'incertezza deve comprendere un contributo dovuto alla **ripetibilità** = tutte le componenti dello scarto tipo di ripetibilità non spiegate dall'incertezza statistica di conteggio, in particolare quelle legate alla preparazione del campione



- N prove **interamente** ripetute (dal pretrattamento del campione all'acquisizione dello spettro ed analisi)
- Ripetizioni da effettuare in condizioni in cui il **contributo di Poisson** sia **trascurabile**



Ripetibilità = scarto tipo delle ripetizioni

UNI 11665: Novità in dettaglio

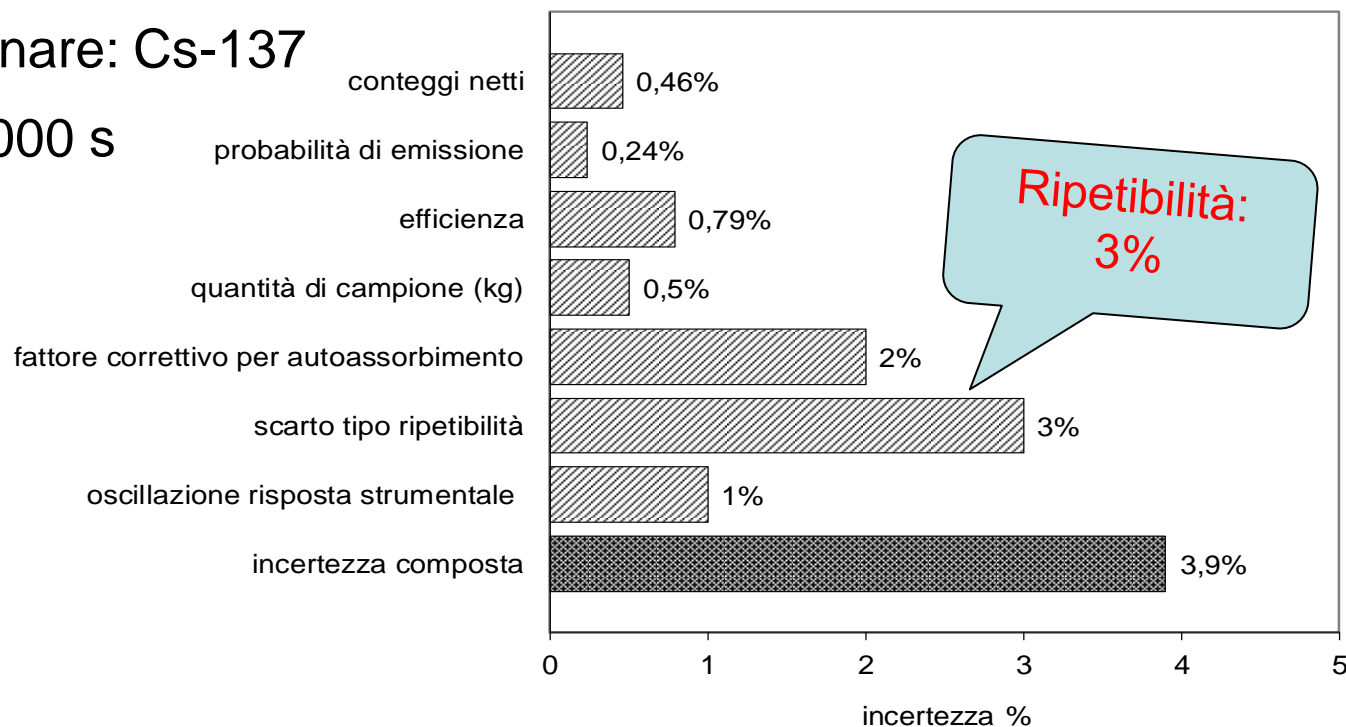
Stima dell'incertezza (par. 12)

Appendice C: un esempio: campione d'erba

- geometria di misura: contenitore cilindrico da 0,1 dm³
- densità apparente del campione: 0,45 g/cm³
- densità della sorgente utilizzata per la taratura: 0,5 g/cm³
- radionuclide da determinare: Cs-137
- durata della misura: 60000 s
- tempo morto: 0,02%



757 ± 29 Bq/kg (3,9%)



UNI 11665: Novità in dettaglio

Limiti caratteristici

➤ Confronto dell'approccio Bayesiano con quello classico di Currie

Limite di rivelabilità secondo Currie:

$$y^{\#}_C = \left[4,65 \sqrt{\frac{x_2}{t} + \frac{2,71}{t}} \right] w$$

Modello Bayesiano:

$$y^{\#}_B = \frac{\left[4,65 \sqrt{\frac{x_2}{t} + \frac{2,71}{t}} \right] w}{1 - k^2 u_{rel}^2(w)}$$

$$y^{\#}_B = y^{\#}_C \cdot F$$

Incertezza relativa $u_{rel}(w)$ (%)	F
1	1,0003
5	1,0068
10	1,0278
15	1,0648
20	1,1214
25	1,2035
30	1,3219

$$w = \frac{1}{Q \cdot \varepsilon \cdot I_{\gamma} \cdot FC}$$

UNI 11665: Novità in dettaglio

Appendice C

contiene esempi numerici di tutti i passaggi di esecuzione del metodo

Grazie per i consigli,
li seguirò quando
mi darete anche l'**esempio.**



Concludendo...

- La norma UNI 11665 è stata redatta nel tentativo di rispecchiare l'attuale «stato dell'arte» nell'esecuzione delle misure per spettrometria gamma, semplificando anche il processo di accreditamento
- La norma contempla esplicitamente l'uso dei programmi per effettuare tutti i calcoli e valutare i fattori correttivi
- I programmi devono essere usati in modo consapevole, in particolare per quanto riguarda il calcolo delle correzioni per somma in coincidenza e autoassorbimento

Concludendo...

➤ Scopo della giornata:

1. confrontare approcci diversi per la soluzione dello stesso problema utilizzando i software in uso nei diversi laboratori
2. confrontare i risultati analizzando le criticità emerse ed individuando i reali punti di forza e di debolezza del metodo

➤ L'idea:

1. scegliere e distribuire ad alcuni «utenti tipo» uno spettro taratura ed uno di analisi con necessità di correzione per somma in coincidenza e autoassorbimento
2. chiedere ad un soggetto autorevole (ENEA INMRI) l'analisi critica dei vari approcci e dei risultati



