

Confronti interlaboratorio e prove valutative. Analisi critica dei risultati

Workshop “Spettrometria gamma ad alta risoluzione”

Milano, Palazzo Lombardia, 19 settembre 2018

P. De Felice

ENEA – Istituto Nazionale di Metrologia delle Radiazioni Ionizzanti (INMRI)

Schema

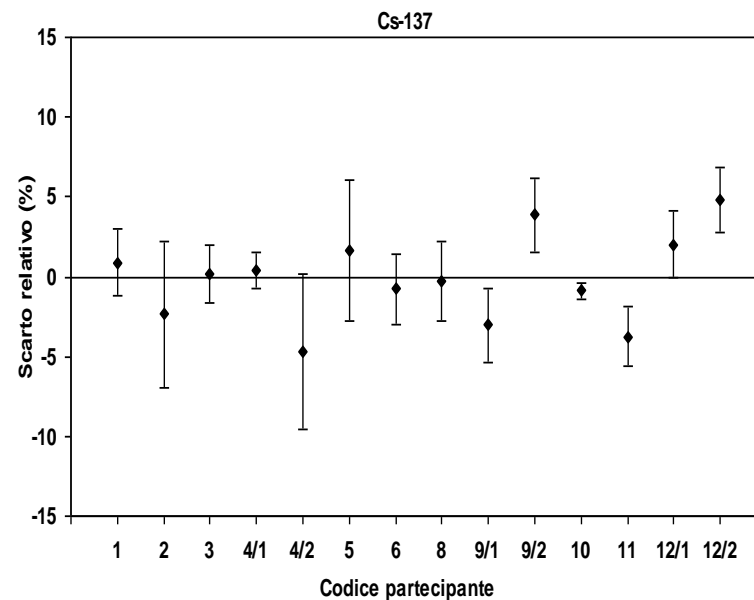
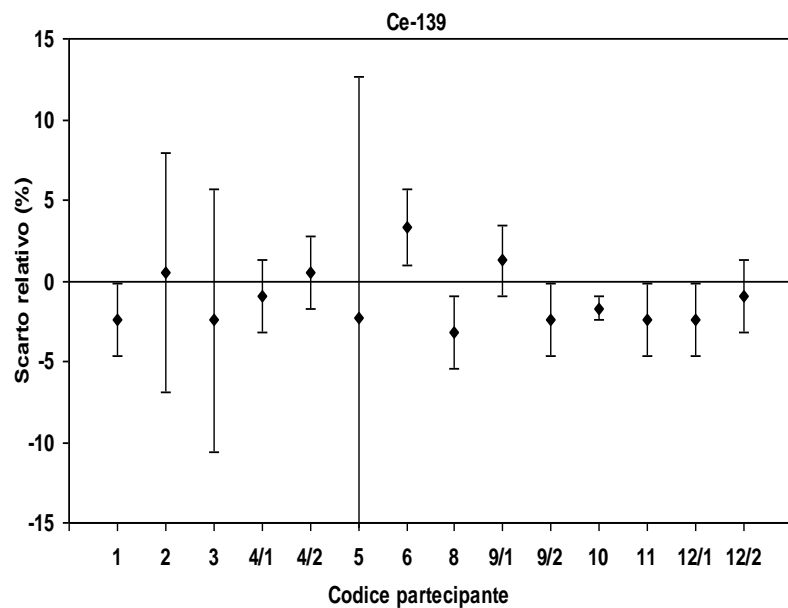
- PT: Validazione dei metodi e controllo di qualità
- PT organizzati nel passato da ENEA-INMRI ed evidenza di errori sistematici
- PT internazionali
- Radionuclidi esaminati: Dati nucleari
- Elenco dei PT esaminati
- Analisi Pb-210//Am-241 vs Cs-137//Zn-65 => ASS
- Analisi Cs-134 vs Cs-137//Zn-65 => ES
- Grafici Z-score di ILC recenti
- Disponibilità di opportuno SW di correzione
- Procedura ENEA-INMRI
- Campagna ENEA-INMRI su correzione per ES
- Scarsa applicazione dei metodi di correzione
- Utilità degli spettri campione per validazione dei metodi di correzione

PT: Validazione dei metodi e assicurazione della qualità

- PT richiesti da ISO17025 per Assicurazione della Qualità
- PT utili per validazione dei metodi e investigazione su effetti sistematici
- PT normati in ISO17043

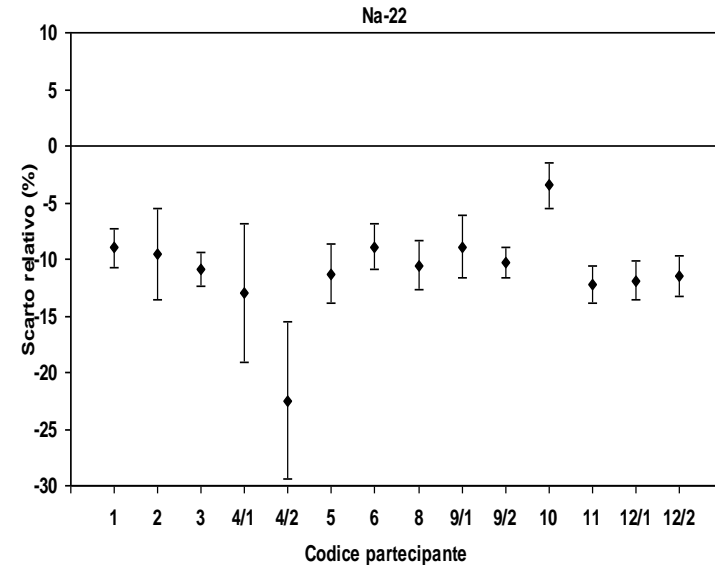
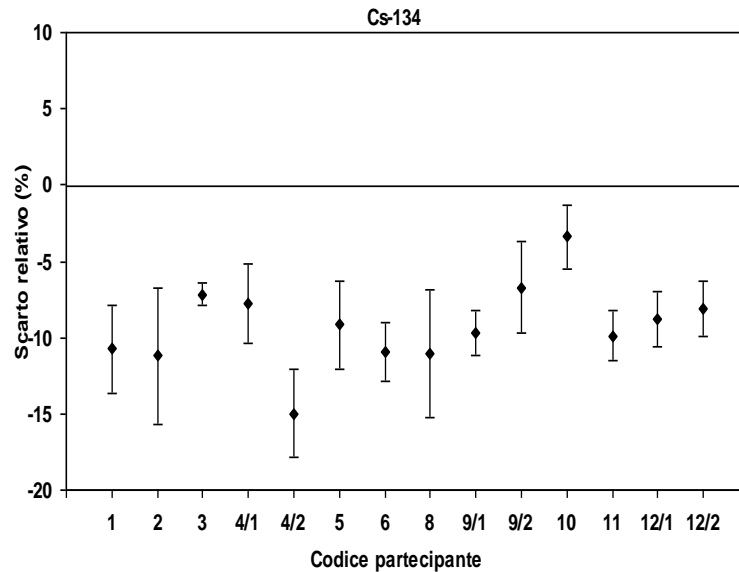
PT organizzati da INMRI-ENEA (1)

PT gamma 1987, sol liq. acq.: due tipiche situazioni soddisfacenti



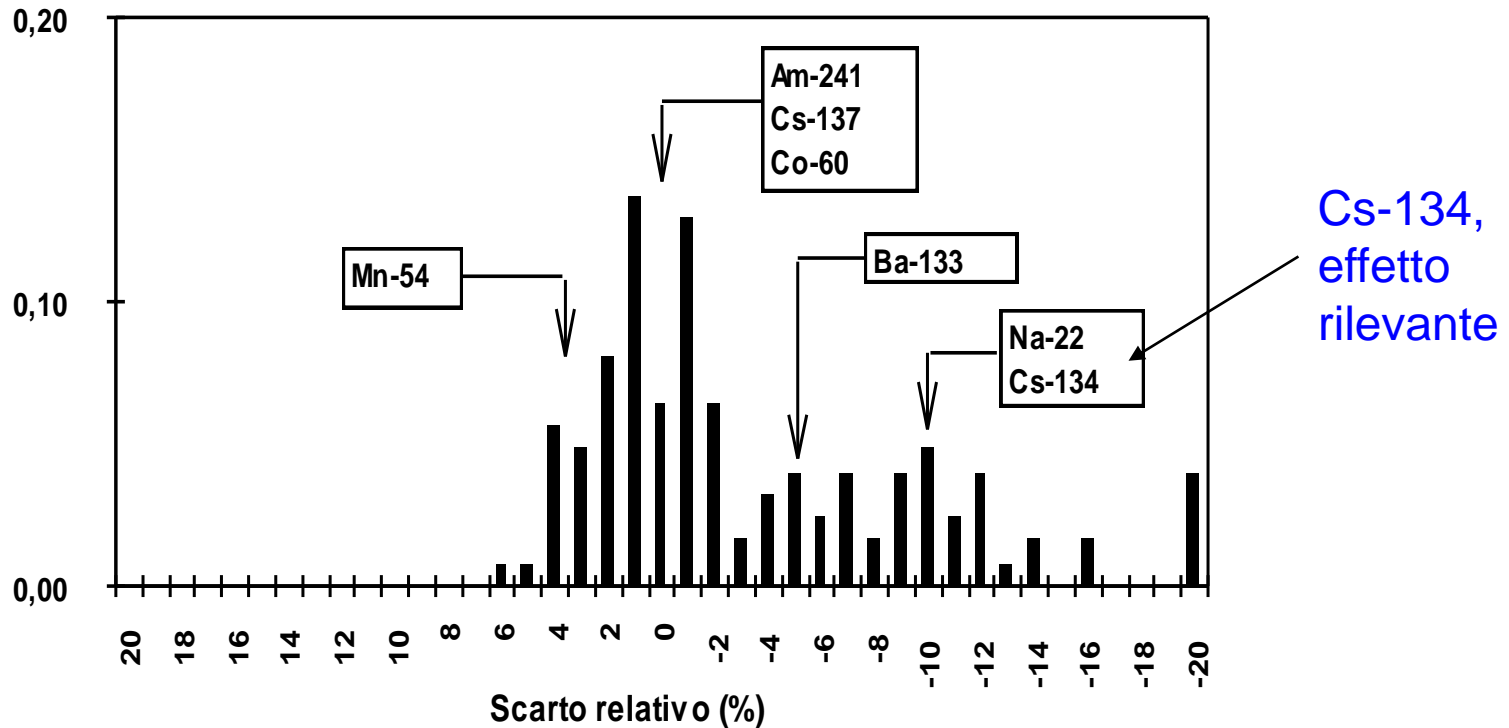
PT organizzati da INMRI-ENEA (2)

PT gamma 1987, sol liq. acq.: evidenza di errori sistematici (effetto somma)



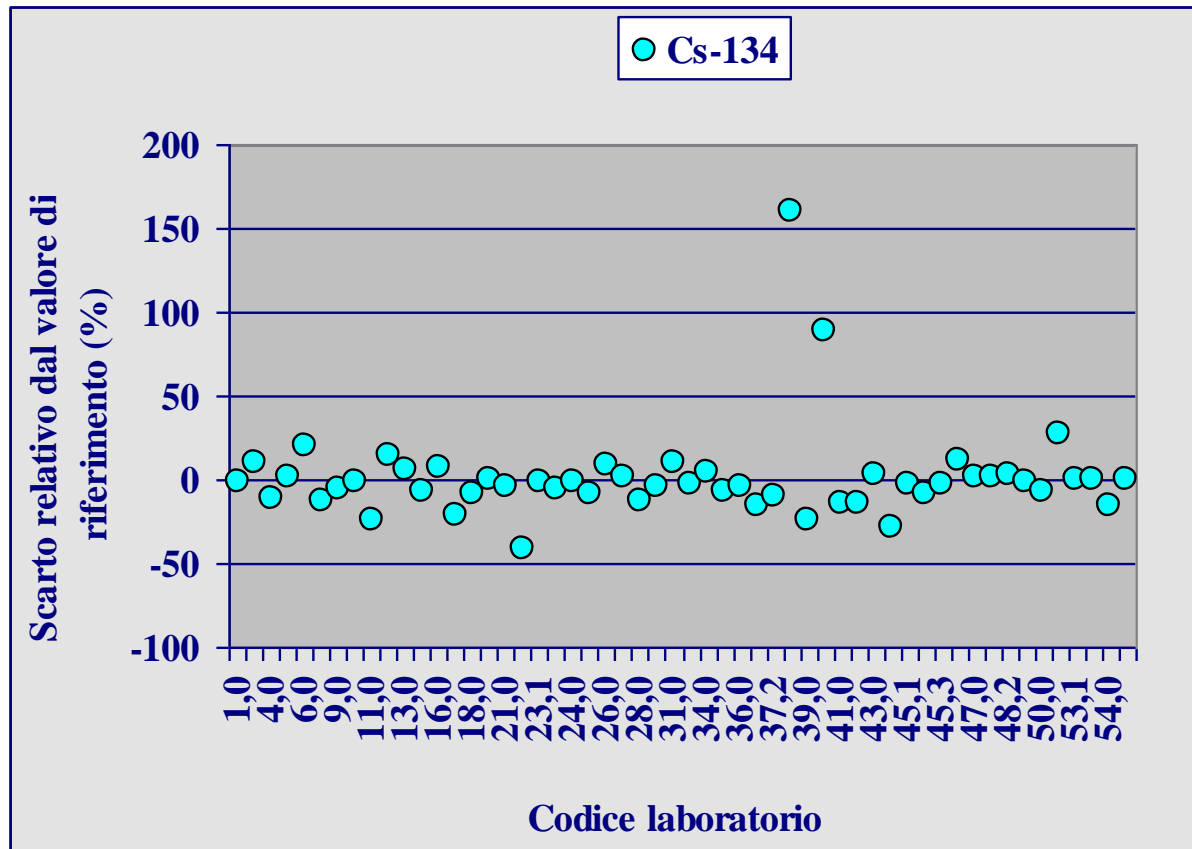
PT organizzati da INMRI-ENEA (3)

PT gamma 1991, sol liq. acq.: evidenza di errori non sistematici
(effetto somma su radionuclidi diversi)



PT organizzati da INMRI-ENEA (4)

PT gamma 2004, filtri: evidenza di errori sistematici (effetto somma)



PT internazionali

- Requisiti per la selezione dei PT analizzati
 - Valori assegnati ben definiti
 - Accurata analisi dei risultati, incertezze di misura incluse
 - Criteri di accettabilità definiti ed applicati (*anche se disomogenei !*)
 - Ampia partecipazione di laboratori italiani (seppur codificati)
 - Ampio arco temporale (dal 2000 ad oggi)
 - Ripetizione di alcuni PT (riproducibilità)
 - Rapporti tecnici disponibili
- PT considerati
 - IAEA
 - EC (JRC-Geel=IRMM)
- RN considerati
 - Matrici di diversa densità => ASS
 - Emittitori gamma di bassa e alta energia ($40 \text{ keV} < E_\gamma < 2 \text{ MeV}$) => ASS
 - Emittitori gamma con schema di dec. complesso (Cs-134, Eu-152) => ES

Radionuclidi esaminati (ASS): dati nucleari

Analisi (Pb-210 e Am-241) vs (Cs-137 e Zn-65)

RN	E (keV)	ES
Pb-210	47	NO
Am-241	59	NO
Cs-137	662	NO
Zn-65	1115	NO

Radionuclidi esaminati (ES): dati nucleari

Analisi Cs-134 vs Cs-137/Zn-65

RN	E (keV)	ES
Cs-134	560÷1360	SI
Cs-137	662	NO
Zn-65	1115	NO

Elenco dei PT esaminati

Year	Provider	PT/ILC	No. Part.	No. States	ILC Code	Report
2004	EC	Cs-137 in air filters			2004 EC	EUR 22926 EN
2005	EC	Cs-137, K-40 and Sr-90 in milk powder			2005 EC	EUR 23270 EN
2005	IAEA	ALMERA proficiency test	53	37	-	IAEA/AL/152
2005	IAEA	Radionuclides and trace elements in soil and compost			IAEA-CU-2006-01	IAEA/AL/160
2005	IAEA	Soil sampling interlaboratory comparison	10	10	-	IAEA/AQ/001
2006	IAEA	Cs-137 and Pb-210 in spiked soil			IAEA-CU-2006-02	IAEA/AL/166
2006	IAEA	Cs-137 and Pb-210 in spiked soil			IAEA-CU-2006-05	IAEA/AL/167
2006	IAEA	Gamma Emitting Radionuclides in Air Filters			IAEA-CU-2006-11	IAEA/AL/169
2006	IAEA	Gamma emitting RNs in water, soil and grass	38	29	IAEA-CU-2006-04 ALMERA	IAEA/AL/170
2006	IAEA	Gamma emitting radionuclides			IAEA-CU-2006-03	IAEA/AL/171
2006	IAEA	Gamma emitting radionuclides in sea water			IAEA-CU-2006-08	IAEA/AL/175
2007	IAEA	Artificial and natural RNs in water, soil and spinach	58	46	IAEA-CU-2007-04	IAEA/AQ/3
2007	IAEA	Po-210 determination in water	36	30	IAEA-CU-2007-09	IAEA/AQ/4
2007	IAEA	Radionuclides in Spinach, Soil and Water			IAEA-CU-2007-03	IAEA/AQ/8
2008	IAEA	Naturally occurring radionuclides in phosphogypsum	49	40	IAEA-CU-2008-04	IAEA/AQ/15
2008	IAEA	Naturally Occurring Radionuclides in Phosphogypsum and Water			IAEA-CU-2008-03	IAEA/AQ/18
2008	IAEA	Radionuclides in Air Filters			IAEA-CU-2008-02	IAEA/AQ/2
2009	IAEA	Gamma emitting RN in simulated air filters	69	46	IAEA-CU-2009-04	IAEA/AQ/16
2010	IAEA	Ra-226 in soil and natural radionuclides in water	46	36	?	?
2010	EC	Radionuclides in Soil			2010 EC	EUR 25360 EN
2011	EC	K-40, Sr-90 and Cs-137 in bilberry powder			2011 EC	EUR 26201 EN
2011	IAEA	Natural and artificial RNs in soil and water	57	41	IAEA-TEL-2011-04	IAEA/AQ/32
2012	IAEA	Natural and artificial RN in water, hay and soil	63	44	?	?
2013	IAEA	Man-made and natural radionuclides in water and flour samples	76	49	?	?
2014	IAEA	Anthropogenic radionuclides in water, seaweed and sediment sample	71	49	IAEA-TEL-2014-04	?
2014	EC	¹³⁷ Cs in air filters			2014 EC	ARI 109 (2016) 36–40
2015	IAEA	Interlaboratory comparison on gamma-ray spectra evaluation	106	47	IAEA-TEL-2015-01	?
2015	IAEA	Anthropogenic and natural radionuclides in water, biota and soil samples	82	57	IAEA-TEL-2015-04	Preliminary results
2016	EC	I-131, Cs-134 and Cs-137 measurements in air filters			2016 ENV57/MetroERM	EUR 28431 EN
2016	IAEA	Natural and artificial RNs in water, vegetation and sediment samples	82	51	IAEA-TEL-2016-04	Preliminary results
2017	EC	I-131, Cs-134 and Cs-137 measurements in maize powder			-	Preliminary report
2017	IAEA	Natural and anthropog. RNs in water, milk powder and NORM samples	89	58	IAEA-TEL-2017-04	Preliminary results

Analisi Pb-210//Am-241 vs Cs-137//Zn-65 matrici volumiche => ASS

Year	Prov.	PT/ILC W=Water, S=Soil	Pb-210 pass	Am-241 pass	Cs-137 pass	Zn-65 pass
2004	EC	Cs-137 in air filters	-	-	67%	-
2005	EC	Cs-137, K-40 and Sr-90 in milk powder	-	-	51%	-
2005	IAEA	ALMERA proficiency test	-	75% (W), 67% (S)	85% (W), 79% (S)	82% (W), 80% (S)
2005	IAEA	Radion. and trace elements in S and compost	-	-	100%	-
2006	IAEA	Cs-137 and Pb-210 in spiked S	33%	-	82%	-
2006	IAEA	Cs-137 and Pb-210 in spiked S	79%	-	94%	-
2006	IAEA	Gamma emitting RNs in W, S and grass	43% (W), 60% (S)	84% (W), 70% (S)	92% (W), 87% (S)	95% (W), 92% (S)
2006	IAEA	Gamma Emitting Radion. in Air Filters	53% (W), 65% (S)	61% (W), 67% (S)	70% (W), 77% (S)	59% (W), 77% (S)
2006	IAEA	Gamma emitting radion. in sea W	100% (W)	85% (W)	55% (W)	48% (W)
2007	IAEA	Artificial and natural RNs in W, S and spinach	65% (average)	76% (average)	89% (average)	79% (average)
2007	IAEA	Radion. in Spinach, S and W	62% (W), 54% (S)	72% (W), 72% (S)	78% (W), 79% (S)	70% (W), 74% (S)
2008	IAEA	Naturally occurring radion. in phosphog.	71% (phosphog.)	-	-	-
2008	IAEA	Naturally Occurring Radion. in phosphog. and W	62% (phosphog.)	-	-	-
2010	EC	Radion. in S	-	-	71%	-
2011	EC	K-40, Sr-90 and Cs-137 in bilberry powder	-	-	71%	-
2011	IAEA	Natural and artificial RNs in S and W	50% (S)	66-74% (W),	88-94% (W), 96% (S)	-
2015	IAEA	Anthropogenic and natural radion. in W, biota and S samples	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
2016	IAEA	Natural and artificial RNs in W, vegetation and sediment samples	n.a.	n.a.	n.a.	-
2017	EC	I-131, Cs-134 and Cs-137 measurements in maize powder	-	n.a.	-	-
2017	IAEA	Natural and anthropog. RNs in W, milk powder and NORM samples	-	-	89%	-

Orizzontale

- W ~ S
- Cs-137 ~ Zn-65
- Pb-210 < Am-241
- Am-241 < (Cs-137 ~ Zn-65)

Verticale

- Scarsa riproducibilità.
- Situazione ~ stazionaria nel tempo, senza apprezzabili miglioramenti.
- Permangono difficoltà anche in tempi recenti.

Analisi Cs-134 vs Cs-137//Zn-65 => ES

Year	Prov.	PT/ILC W=Water, S=Soil	Cs-134 pass	Cs-137 pass	Zn-65 pass
2004	EC	Cs-137 in air filters	-	67%	-
2005	EC	Cs-137, K-40 and Sr-90 in milk powder	-	51%	-
2005	IAEA	ALMERA proficiency test	61% (W), 72% (S)	85% (W), 79% (S)	82% (W), 80% (S)
2005	IAEA	Radion. and trace elements in S and compost	-	100%	-
2006	IAEA	Cs-137 and Pb-210 in spiked S	-	82%	-
2006	IAEA	Cs-137 and Pb-210 in spiked S	-	94%	-
2006	IAEA	Gamma Emitting Radion. in Air Filters	73%	82%	-
2006	IAEA	Gamma emitting RNs in W, S and grass	76% (W), 92% (S)	92% (W), 87% (S)	95% (W), 92% (S)
2006	IAEA	Gamma Emitting Radion. in Air Filters	52% (W), 72% (S)	70% (W), 77% (S)	59% (W), 77% (S)
2006	IAEA	Gamma emitting radion. in sea W	28% (W)	55% (W)	48% (W)
2007	IAEA	Artificial and natural RNs in W, S and spinach	71% (average)	89% (average)	79% (average)
2007	IAEA	Radion. in Spinach, S and W	54% (W), 71% (S)	78% (W), 79% (S)	70% (W), 74% (S)
2008	IAEA	Radion. in Air Filters	50% (filter)	61% (filter)	-
2009	IAEA	Gamma emitting RN in simulated air filters	52% (filter)	51% (filter)	-
2010	EC	Radion. in S	-	71%	-
2011	EC	K-40, Sr-90 and Cs-137 in bilberry powder	-	71%	-
2011	IAEA	Natural and artificial RNs in S and W	70-84% (W),	88-94% (W), 96% (S)	-
2014	EC	137Cs in air filters	-	70%	-
2016	EC	I-131, Cs-134 and Cs-137 measurements in air filters	54%	61%	-
2017	IAEA	Natural and anthropog. RNs in W, milk powder and NORM samples	-	89%	-

Orizzontale

- W ~ S
- Cs-137 ~ Zn-65
- Cs-134 < (Cs-137 ~ Zn-65)

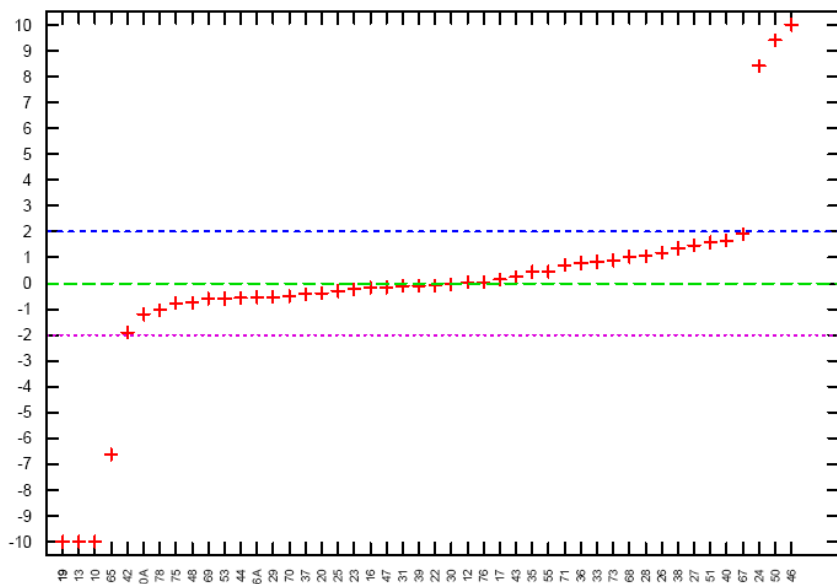
Verticale

- Scarsa riproducibilità.
- Situazione ~ stazionaria nel tempo, senza apprezzabili miglioramenti.
- Permangono difficoltà anche in tempi recenti.

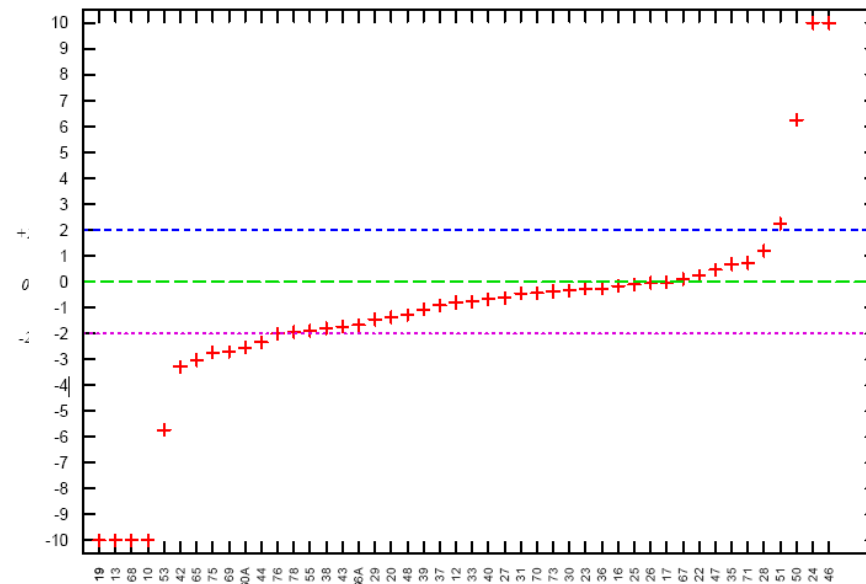
Grafici Z-score di ILC passati => ES

Year	Prov.	PT/ILC W=Water, S=Soil	Report
2005	IAEA	ALMERA proficiency test	IAEA/AL/152

Z-Score, Solution, gamma - 137Cs



Z-Score, Solution, gamma - 134Cs

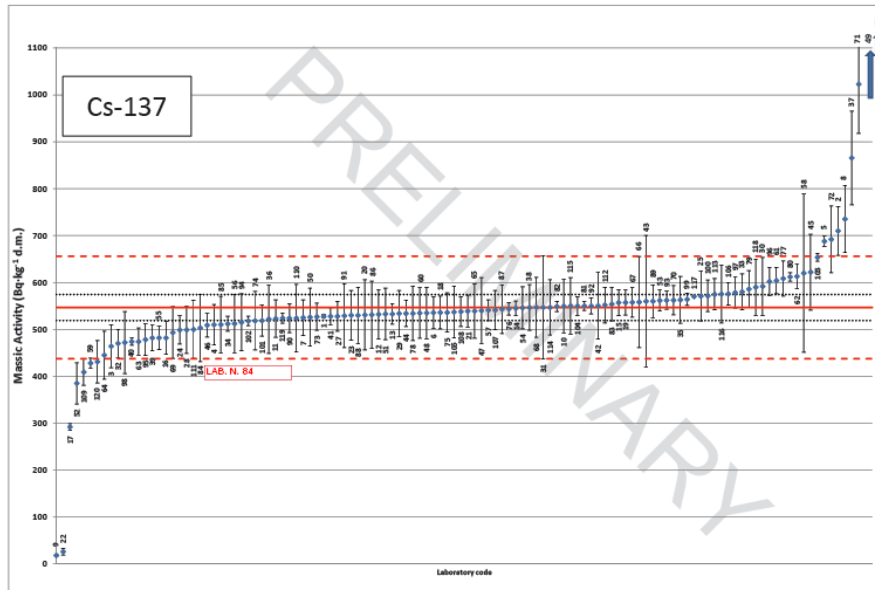


- Evidente presenza di errori sistematici dovuti ad ES

Grafici Z-score di ILC recenti (pass/fail n.a.)

Year	Prov.	PT/ILC W=Water, S=Soil	Report
2017	EC	I-131, Cs-134 and Cs-137 measurements in maize powder	Preliminary

Preliminary results of the 2017 EC Proficiency Test on I-131, Cs-134 and Cs-137 measurements in maize powder

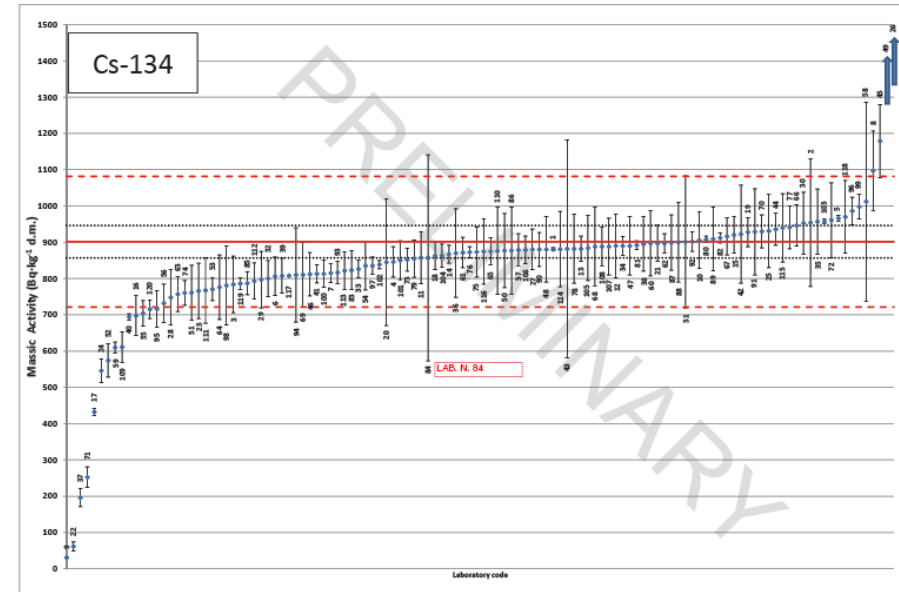


Page 3 of 3

24/10/2017



Preliminary results of the 2017 EC Proficiency Test on I-131, Cs-134 and Cs-137 measurements in maize powder




Page 2 of 3

24/10/2017




- Evidente persistenza di errori sistematici dovuti ad ES


Disponibilità di opportuno SW di correzione




Applied Radiation and Isotopes
Volume 64, Issues 10–11, October–November 2006, Pages 1340-1345




Experimental validation of coincidence summing corrections computed by the ETNA software


Marie-Christine Lépy , Philippe Brun, Claude Collin, Johann Plagnard

 Show more



<https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2006.02.042> [Get rights and content](#)




Applied Radiation and Isotopes
Volume 56, Issues 1–2, January–February 2002, Pages 71-75




Transfer of the efficiency calibration of Germanium gamma-ray detectors using the GESPECOR software


O. Sima , D. Arnold 

 Show more

[https://doi.org/10.1016/S0969-8043\(01\)00169-5](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(01)00169-5) [Get rights and content](#)




Nuclear Instruments and Methods in Physics
Research Section A: Accelerators, Spectrometers,
Detectors and Associated Equipment
Volume 550, Issue 3, 21 September 2005, Pages 603-608



EFFTRAN—A Monte Carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry

Tim Vidmar 

 Show more

<https://doi.org/10.1016/j.nima.2005.05.055> [Get rights and content](#)

- ETNA, disponibile dal 2004
- GESPECOR, disponibile dal 2002
- EFFTRAN, disponibile dal 2005
- Tutti ampiamente validati e periodicamente aggiornati
- SW commerciale disponibile dal 2010

Metodi rapidi, es. INMRI-ENEA



ELSEVIER

Applied Radiation and Isotopes

Volume 52, Issue 3, March 2000, Pages 745-752



Fast procedures for coincidence-summing correction in γ -ray spectrometry

Pierino De Felice ^a, Paola Angelini ^b, Aldo Fazio ^a, Roberto Biagini ^a

Show more

[https://doi.org/10.1016/S0969-8043\(99\)00239-0](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(99)00239-0)

Get rights and content

- Metodi rapidi semplificati, disponibili dal 2000
- Applicato in Italia in una campagna di promozione per correzioni ES



ELSEVIER

Applied Radiation and Isotopes

Volume 56, Issues 1–2, January–February 2002, Pages 117-123



A national campaign for coincidence-summing correction in γ -ray spectrometry

Pierino De Felice ^a, Paola Angelini, Aldo Fazio, Marco Capogni

Show more

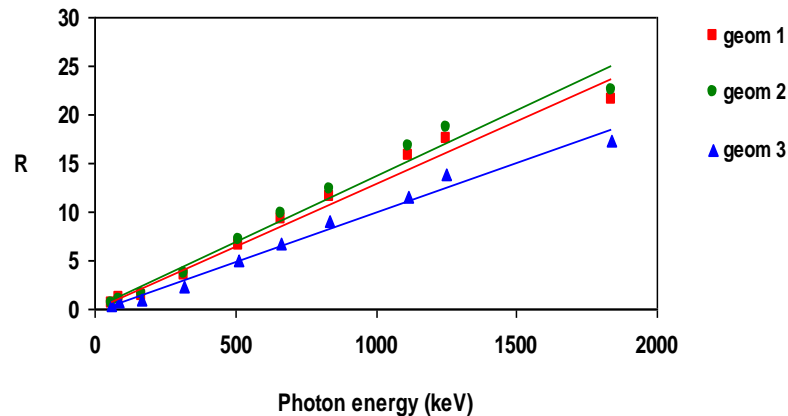
[https://doi.org/10.1016/S0969-8043\(01\)00176-2](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(01)00176-2)

Get rights and content

METODO RAPIDO N. 3

“Rapporto efficienze/sezioni d’urto”

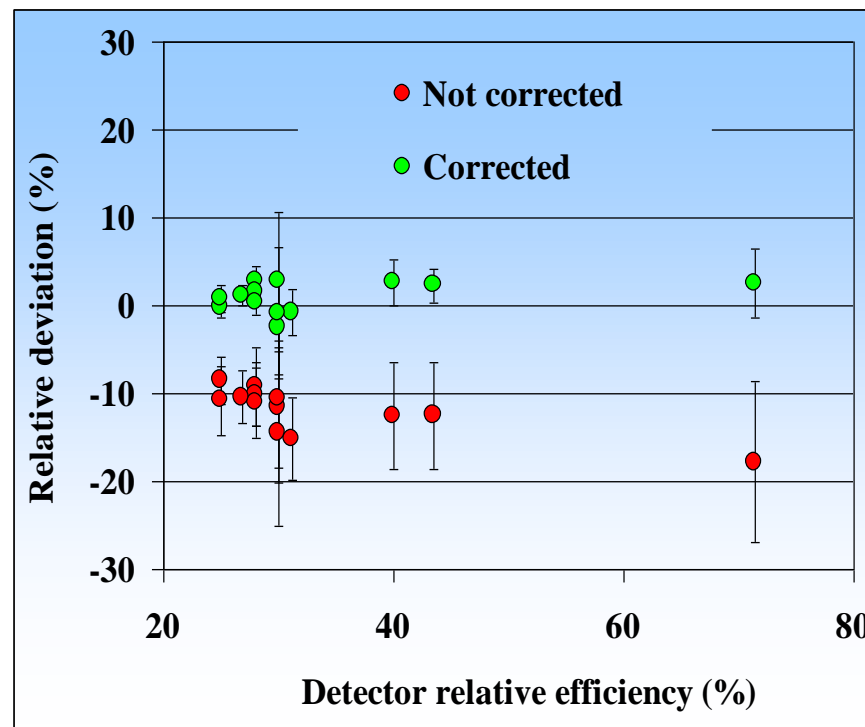
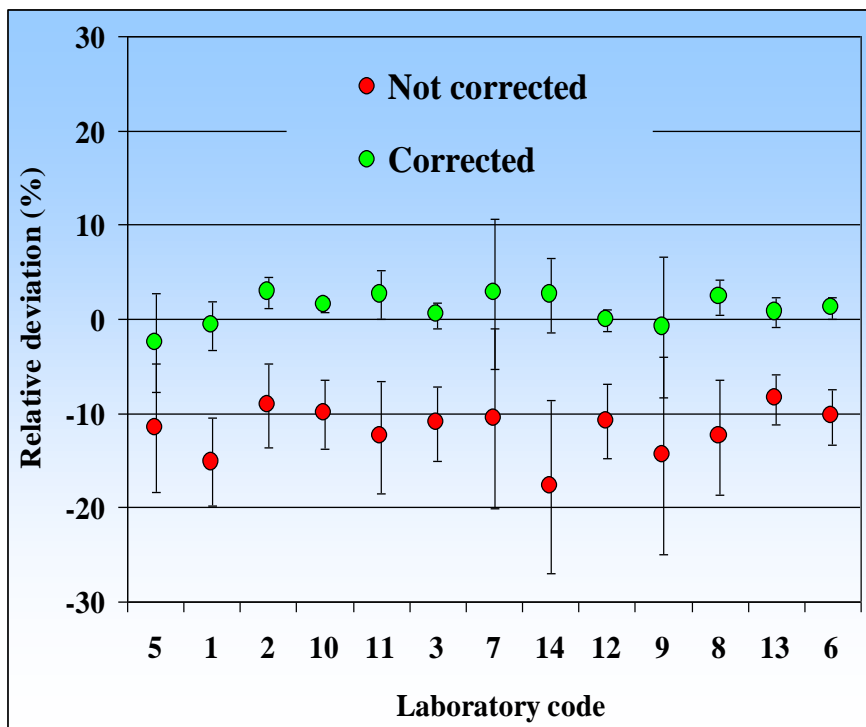
$$R = \frac{\varepsilon_i / \varepsilon_{t_i}}{\sigma_i / \sigma_{t_i}} = k E_\gamma$$



- HP:
 - $\varepsilon_t = \varepsilon$ per $E < 160$ keV
 - Relazione costante tra rapporti di efficienza picco/totale e sezioni d’urto fotoelettrico/totale;
 - Relazione indipendente dalla geometria di misura.
- Costante, k, determinata con Cs-137
- Espressioni analitiche (semplificate) dei fattori di correzione

	K
ε/σ 2 cm	0,0102207
ε/σ 5 cm	0,0099135
ε/σ 10 cm	0,0094897

Campagna nazionale INMRI-ENEA per la promozione delle correzioni per ES (1999-2000)



• RISULTATI:

- Scarto medio ridotto da -12% to +1%;
- Scarti tipo ridotto da 6% to 3%.

Scarsa applicazione dei metodi di correzione

- Necessità di diffondere maggiormente i metodi di correzione
- Incertezze richieste e dichiarate dai laboratori spesso inferiori agli errori commessi
- Possibili cause dell'incompleta diffusione dei metodi di correzione
 - Complessità dell'argomento
 - Difficoltà di incorporare le procedure di correzione nei SW utilizzati in laboratorio
 - Sottovalutazione dell'effetto
 - Insufficiente formazione sull'argomento
- **La giornata odierna si propone come tentativo di superamento delle suddette difficoltà**
 - Proposte di soluzioni
 - Discussione, IMPORTANTE

Utilità degli spettri campione

- Verifica, in condizioni di riferimento, dell'approccio seguito dal laboratorio;
- Confronto tra risultati ottenuti e valori di riferimento;
- Confronto tra risultati ottenuti con metodi diversi;
- Eliminazione delle componenti di sperimentali di variabilità:
 - rivelatore;
 - sorgente;
 - statistica di conteggio;
 - dati nucleari;
 - ecc
- Opportunità di effettuare la validazione del metodo di correzione.

GRAZIE



P. De Felice
ENEA – Istituto Nazionale di Metrologia delle Radiazioni Ionizzanti (INMRI)
pierino.defelice@enea.it