

# LA RADIOATTIVITA' NELLE ACQUE POTABILI ED IL GEMELLAGGIO DI ARPA VENETO E ARPA LOMBARDIA CON LA POLONIA

Verona, 4 Dicembre 2007  
Dipartimento Provinciale ARPAV

## ASPETTI METROLOGICI

P. De Felice  
ENEA-INMRI  
Istituto Nazionale di Metrologia delle Radiazioni Ionizzanti  
C.R. Casaccia, P.O. Box 2400, I-00100, Rome, Italy  
[defelice@casaccia.enea.it](mailto:defelice@casaccia.enea.it)

# Requisiti di affidabilità

Diffusione di Sistemi di Qualità ISO-9000 e ISO/IEC-17025:

- Applicazione di metodi di prova **standardizzati**
- Impiego di strumentazione **tarata**
- Applicazione di programmi di **controllo di qualità**

## Misurazioni di radioattività nelle acque potabili: situazione attuale

- Laboratori esperti e attività stabilizzate limitati ad un numero ristretto
- Procedure di misurazione e di taratura non sufficientemente standardizzate
- Sorgenti campione e materiali di riferimento difficilmente reperibili
- Programmi di controllo di qualità non sempre di immediata applicazione
- Interconfronti non abbastanza frequenti

# Metodi di prova standardizzati

# Metodi standardizzati per la misurazione di radionuclidi nelle acque potabili

ISO 9696	Measurement of <b>gross alpha</b> activity in non-saline water-Thick source method
ISO 9697	Measurement of <b>gross beta</b> activity in non-saline water.
ISO 9698	Determination of <b>tritium</b> activity concentration - Liquid scintillation counting method.
UNI 216	<b>Total alpha and beta</b> activity determination in waters intended for human use by means of liquid scintillation – Draft
UNI 217	<sup>222</sup> <b>Rn</b> activity determination in waters by means of liquid scintillation. Draft
ASTM D 5072-98	Standard test method for <b>radon</b> in drinking water.
ASTM D 6239-98a	Standard test method for <b>uranium</b> in drinking water by high resolution alpha-liquid-scintillation spectrometry

Attività di standardizzazione in corso ad opera di gruppi di lavoro ISO e UNI

# Metodi e strumentazione di misura dei radionuclidi nelle acque potabili

Conteggio Alfa/Beta totale Conteggio Beta Conteggio Alfa Spettrometria alfa	beta: Scintillatori plastici Contatori GM Contatori proporzionali Scintillatori liquidi (event. sep. alfa/beta) alfa: Scintillatori ZnS Rivelatori a semiconduttore Si Contatori proporzionali Scintillatori liquidi (event. sep. alfa/beta)
Spettrometria gamma	rivelatori HPGe rivelatori NaI
Metodi emanometrici (Ra-226 e Rn-222)	monitori Radon
Metodi radiochimici	a supporto e/o integrazione dei suddetti metodi

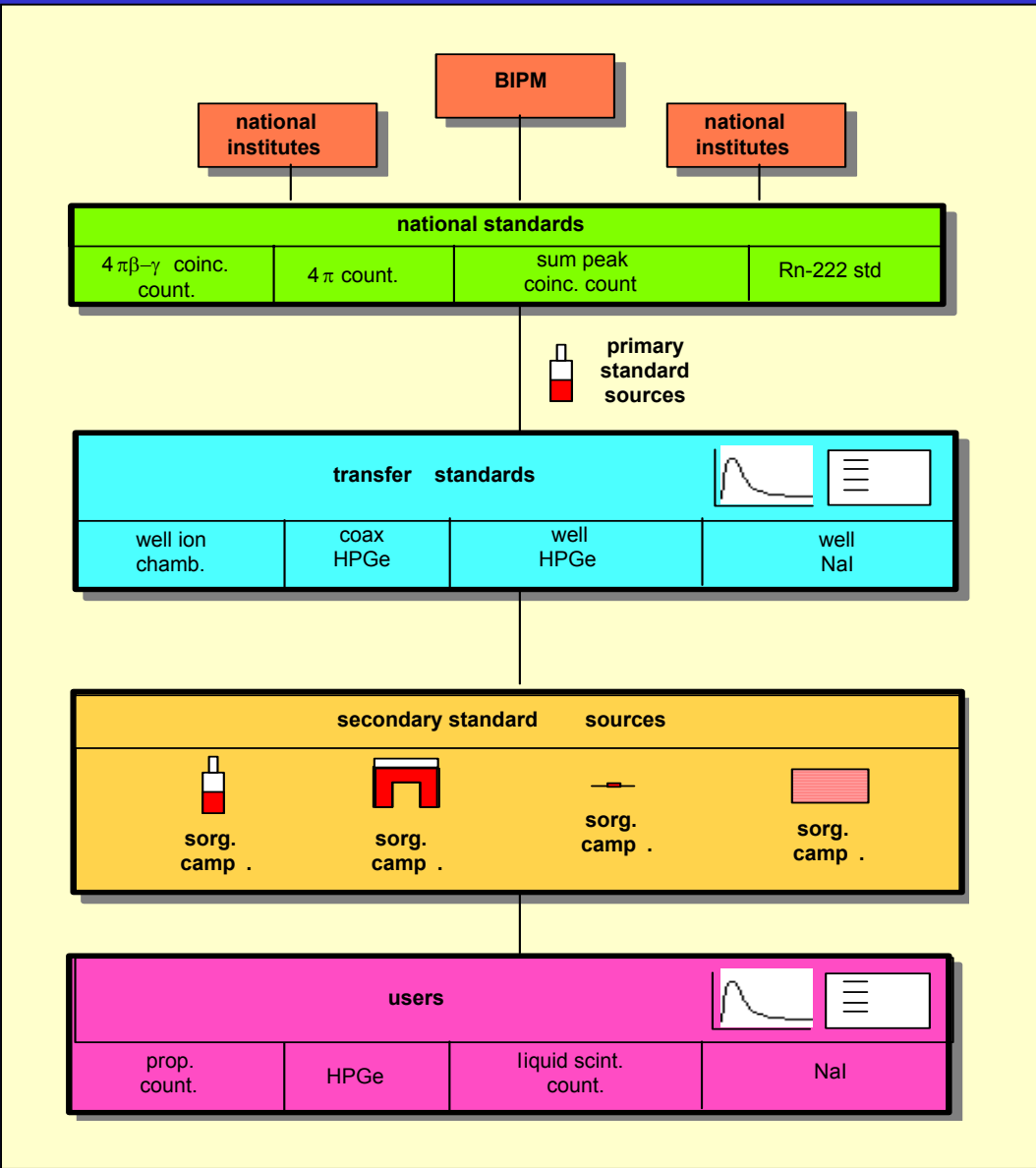
# Riferibilità delle misure alle unità SI

# DEFINITIONS

[Ref. BIPM/ISO International Vocabulary of basic and general terms in metrology]

**TRACEABILITY:** Property of the result of a measurement or the value of a standard whereby it can be related to stated references, usually national or international standards, through an unbroken chain (traceability chain) of comparisons all having stated uncertainties

**CALIBRATION:** Set of operations that establish, under specified conditions, the relationship between values of quantities indicated by a measuring instrument or measuring system, or values represented by a material measure or a reference material, and the corresponding values realised by standards



# Schema di riferibilità internazionale



# Indicazioni del Certificato di Taratura (ISO-17025)

- 5.10.2
  - a. Titolo
  - b. Laboratorio
  - c. Identificazione
  - d. Cliente
  - e. Metodo di taratura
  - f. Identificazione oggetto tarato
  - g. Data
  - h. Campionamento
  - i. Risultati
  - j. Autorizzazioni e firme
  - k. Dichiarazione
- 5.10.4.1
  - a. Condizioni di taratura
  - b. Incertezza di misura
  - c. Evidenza di riferibilità

## ISO-17025 5.6.2.1.2 Nota 1

I laboratori di taratura che soddisfano i requisiti della presente norma internazionale sono considerati competenti. Un certificato di taratura che riporta il logo dell'organismo di accreditamento emesso da un laboratorio di taratura accreditato secondo la presente norma internazionale, per la taratura prevista, costituisce un'evidenza sufficiente della riferibilità dei dati di taratura riportati.

# Metodi di prova e necessità di sorgenti campione e materiali di riferimento certificati

Conteggio Alfa/Beta totale	Beta: K-40, Sr-90 Alfa: Am-241, Pu-239, U-nat
Spettrometria gamma	Miscele di radionuclidi emettitori di fotoni singoli Soluzioni di singoli radionuclidi Soluzioni di singoli radionuclidi multi- $\gamma$ emettitori
Conteggio con scintillatore liquido	Beta: K-40, Sr-90 Alfa: Am-241, Pu-239, U-236
Misura del Trizio	Acqua triziata
Misura del Radio e Radon	Soluzioni di Ra-226 Soluzioni di Rn-222-in-acqua
Metodi radiochimici	Varie: U-232, Ra-228, Po-209, Pb-210

# Misurazioni di radioattività nelle acque potabili

Radionuclidi a lungo periodo di dimezzamento per cui è attualmente possibile effettuare tarature presso l'INMRI-ENEA

H-3	Cd-109	Hg-203
C-14	Sn-113	Tl-204
Na-22	Ba-133	Po-208
Cl-36	Cs-134	Pb-210
K-40	Cs-137	Rn-222
Mn-54	Ce-139	Ra-226
Fe-55	Pm-147	Th-232
Co-57	Eu-152	U-235
Co-60		Pu-238
Ni-63		Am-241
Zn-65		
Y-88		
Sr-89		
Sr-90		

Radionuclidi a cui estendere il servizio di taratura

Po-209
U-232
U-236
U-nat
Pu-239
altri ... ?

# Scopo della taratura

Determinare la dipendenza della risposta o efficienza dello strumento dal:

- **TIPO** ed **ENERGIA** della radiazione o dal **RADIONUCLIDE** considerato (dipendenza energetica)
- valore del **RATEO** della grandezza considerata (verifica di linearità)

# Criteria di scelta dei punti di taratura

**Dipendenza energetica:** radiazioni di riferimento, sulla base delle energie di interesse, tenendo conto della curva di risposta in energia dello strumento

**Verifica di linearità:** nell'intervallo dei valori normalmente misurati (compatibilmente con la condizione sopra)

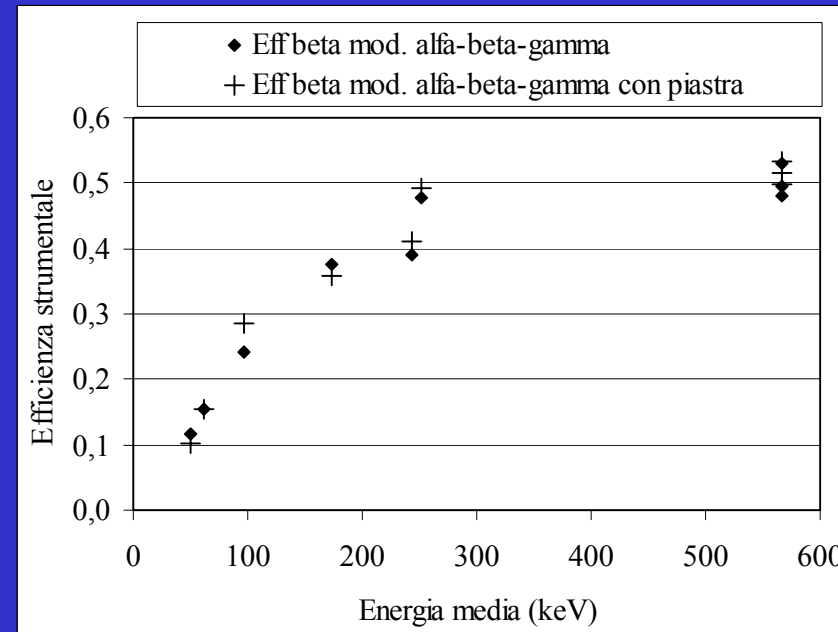
- *Almeno 1 punto al centro di ogni “scala” normalmente usata.*
- *Meglio 2 punti (1/4 e 3/4 della scala) per ogni “scala” normalmente usata*
- *Ottimo 3 punti (1/4, 1/2 e 2/3) per ogni “scala” normalmente usata*
- *N.B. È opportuno che uno dei ratei scelti sia nella scala del rateo utilizzato per la taratura in energia*

# Esempio di taratura con diversi radionuclidi (dipendenza energetica) cfr. efficienza di conteggio in misure beta totale

Radionuclidi e radiazioni di riferimento utilizzati per la taratura di contaminametri [ISO 8769]

Radio-nuclide	Radia-zione	Energia max(beta) med(fot) (keV)	Filtrazione (mg/cm <sup>2</sup> )
Am-241	α	5544	-
H-3	β	19	-
Ni-63	β	66	-
C-14	β	156	-
Pm-147	β	225	-
Tl-204	β	763	-
Cl-36	β	710	-
Sr-90	β	2274	-
Ru-106	β	3540	-
Fe-55	x	5,9	-
Pu-238	x	16	32,5 (zirconio)
I-129	x	32	81 (alluminio)
Am-241	γ	60	200 (acciaio)
Co-57	γ	124	200 (acciaio)
Cs-137	γ	600	800 (acciaio)
Co-60	γ	1200	81 (alluminio)

Dipendenza energetica dell'efficienza strumentale, per un contaminametro basato su un contatore proporzionale



# Trasferimento dell'efficienza

# Misure relative in condizioni di riproducibilità ( $\varepsilon = \text{cost.}$ )

$$R = \varepsilon A$$

$$R_s = \varepsilon A_s$$

$$R_x = \varepsilon A_x$$

$$A_x = \frac{R_x}{R_s} A_s$$

$$\varepsilon = \frac{R_s}{A_s} = \frac{R_x}{A_x}$$

$$u(A_x)^2 = u(R_x)^2 + u(R_s)^2 + u(A_s)^2$$

LEGENDA	Sorgente campione	Sorgente da misurare
Lettura strumentale	$R_s$	$R_x$
Attività	$A_s$	$A_x$
Efficienza di conteggio (cost.)	e	e

**RELATIVE MEASUREMENT:** measurement performed by a comparison between the value ( $A_x$ ) of a quantity to be measured and a known value ( $A_s$ ) (given by a standard) of the same physical quantity

[Ref. BIPM/ISO International Vocabulary of basic and general terms in metrology]  
HP: Decadimento ed altri effetti dipendenti dal rateo di conteggio trascurabili !



# Misure relative in condizioni di non riproducibilità ( $\epsilon \neq \text{cost.}$ ) metodo di "trasferimento dell'efficienza"

$$R = \epsilon A$$

$$\left\{ \begin{array}{l} R_s = \epsilon_s A_s \\ R_x = \epsilon_x A_x \\ A_x = \frac{R_x}{R_s} \frac{\epsilon_s}{\epsilon_x} A_s \end{array} \right\} \left\{ \begin{array}{l} A_x = \frac{R_x}{R_s} k A_s \\ \epsilon_x = \epsilon_s \frac{1}{k} \end{array} \right\}$$

$k \equiv \frac{\epsilon_s}{\epsilon_x} \Rightarrow$

LEGENDA	Sorgente campione	Sorgente da misurare
Letture strumentale	$R_s$	$R_x$
Attività	$A_s$	$A_x$
Efficienza di conteggio	$e_s$	$e_x$

$$u(A_x)^2 = u(R_x)^2 + u(R_s)^2 + u(A_s)^2 + u(k)^2$$

Fattorizzazione dell'efficienza

$$\epsilon = f_g f_s f_d I$$

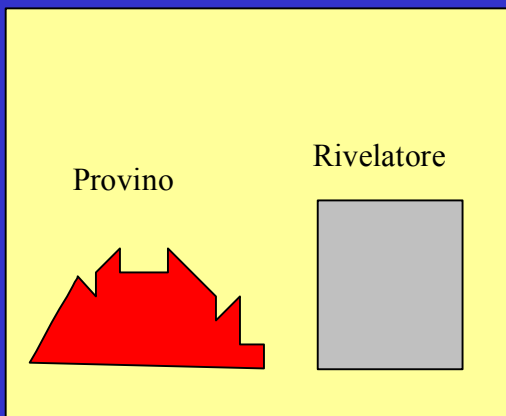
- $f_g$ : efficienza geometrica (angolo solido sotteso)
- $f_s$ : efficienza della sorgente
- $f_d$ : efficienza di rivelazione
- $I$ : probabilità di emissione

La costante k può essere determinata mediante

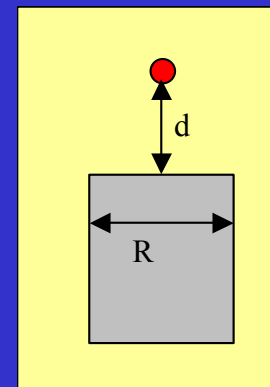
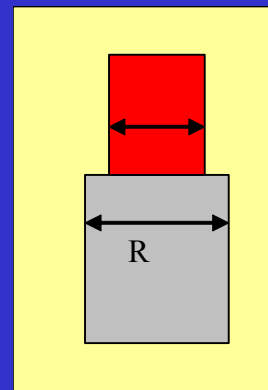
- Misurazioni
- Espressioni analitiche
- Simulazioni Monte Carlo
- Modelli semiempirici

# Dalla taratura alla prova

Oggetto e mezzo di misura



Geometria di misura (prova)      Geometria di taratura



$$k \equiv \frac{\varepsilon_s}{\varepsilon_x}$$

$$\varepsilon_s = \frac{R_s}{A_s}$$

$$\varepsilon_x = \varepsilon_s \frac{1}{k}$$

## Trattamento del campione

- Macinatura
- Omogeneizzazione
- Pesata
- Preparazione in geometria di misura

## Trasferimento di efficienza

- Caratterizzazione del rivelatore
- Caratterizzazione delle geometrie
- Calcolo o misura del fattore di trasferimento, k

# Esempio: estensione dell'intervallo di taratura (spettr. gamma)

## metodo del rapporto di efficienze

- L'efficienza all'energia  $E_i$  si ottiene dall'efficienza misurata all'energia  $E_0$  e dal rapporto  $k_i$ , misurato direttamente mediante una sorgente non tarata (stessa geometria !)
- Esempio:
  - $E_0=122,1$  keV (sorg. campione Co-57)
  - $E_1=121,8$  keV (sorg. non tarata Eu-152)
  - $E_i$ =altre energie fotoniche dell'Eu-152

$$k_i = \frac{\varepsilon(E_1)}{\varepsilon(E_i)} \quad \text{non necessaria sorgente tarata}$$

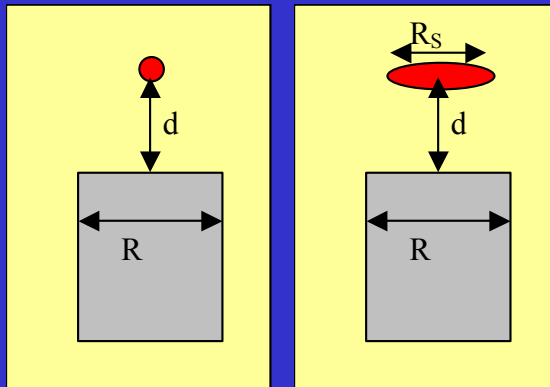
$$\varepsilon(E_0) \approx \varepsilon(E_1)$$



$$\varepsilon(E_i) = \varepsilon(E_0) \frac{1}{k_i}$$

Riferibilità

# Esempio: trasferimento di efficienza da sorgenti puntiformi a sorgenti piane estese



dove:

- a: sorgente estesa
- p: sorgente puntiforme
- accuratezza  $\pm 2\%$  per  $R/d < 0,5$

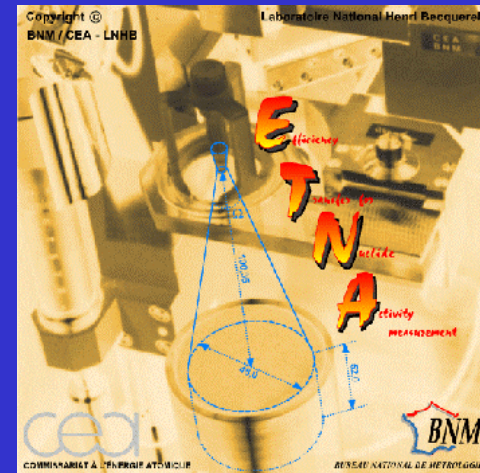
$$\frac{\varepsilon_a(d)}{\varepsilon_p(d)} = \frac{\Omega_a(d)}{\Omega_p(d)}$$

$$\Omega_a(d) = \frac{2}{R_s^2} \int_0^{R_s} \Omega_p(r, d) r dr \approx \frac{1}{2} \left[ 1 - \left( 1 + \frac{R^2}{d^2} \right)^{-1/2} - \frac{3}{8} R_s^2 \frac{R^2}{d^4} \left( 1 + \frac{R^2}{d^2} \right)^{-5/2} + \dots \right]$$

# Efficiency transfer in $\gamma$ -ray spec.: ETNA

ETNA (Efficiency Transfer for Nuclide Activity measurements) is a software developed by the Laboratoire National Henri Becquerel that allows calculation of:

- efficiency transfer factors
- coincidence summing corrections

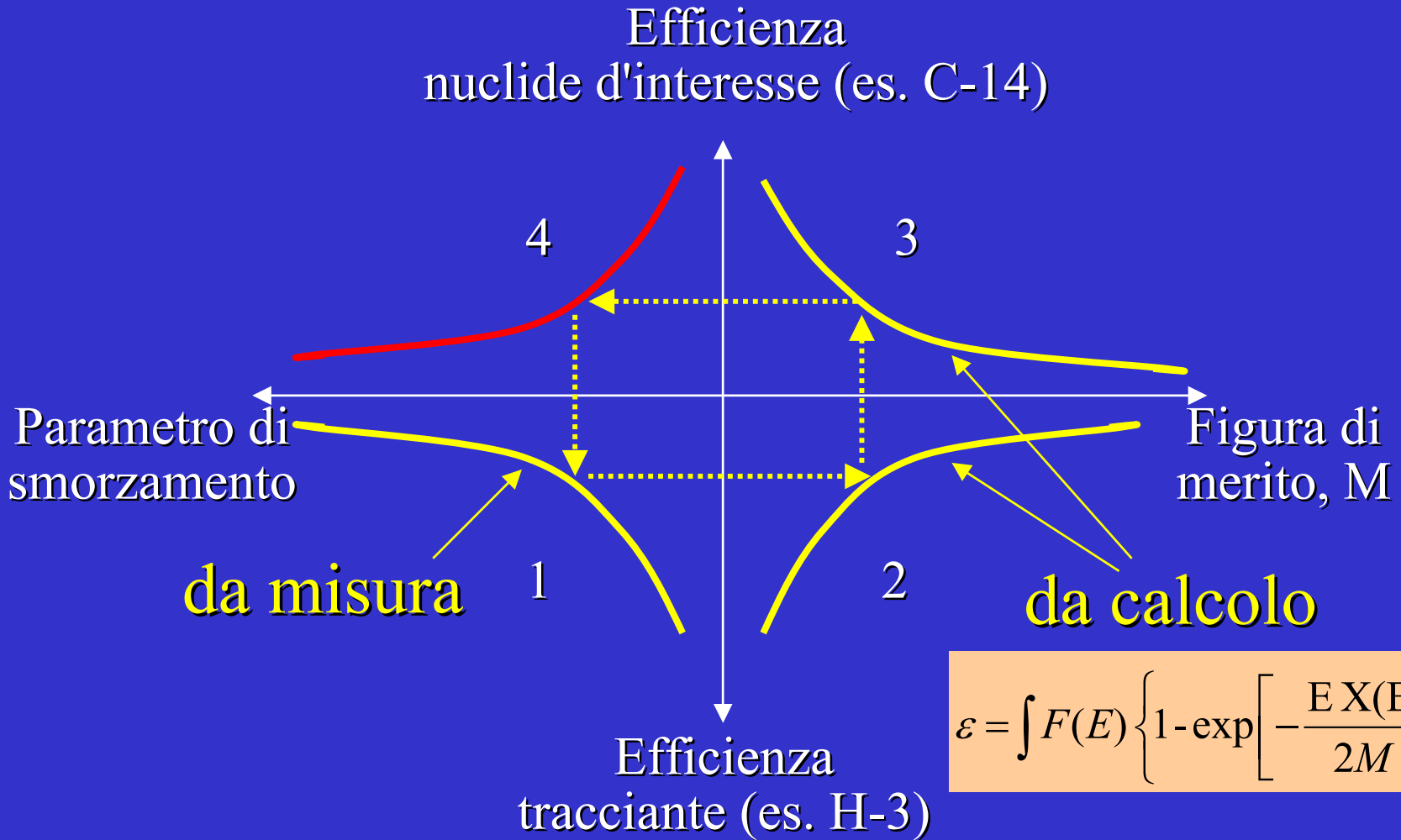


## Références

M.C. Lépy, M.M. Bé, F. Piton, "ETNA (Efficiency Transfer for Nuclide Activity measurements) : Logiciel pour le calcul du transfert de rendement et des corrections de coïncidences en spectrométrie gamma", Note technique LNHB/01/09/F (2001)

M.C. Lépy et al., Intercomparison of efficiency transfer software for gamma-ray spectrometry, Applied Radiation and Isotopes Vol.55 N°4 (October 2001) 493-503.

# Esempio: trasferimento dell'efficienza con scintillatori liquidi, metodo CIEMAT/NIST



$$\varepsilon = \int F(E) \left\{ 1 - \exp \left[ - \frac{E X(E)}{2M} \right] \right\}^2$$

# Controlli di qualità

# Periodicità della taratura

[ Rif. UNI 8143:1980, UNI 8299:1981,  
UNI 8846:1987, UNI 9102:1988]

- Taratura iniziale: alla messa in funzione dello strumento e successivamente:
  - dopo interventi di manutenzione di un certo rilievo
  - quando il controllo di taratura o di buon funzionamento indichino situazioni anomale
  - indipendentemente dal buon esito dei controlli, con periodicità 2-4 anni in relazione allo “stress” dello strumento (raccomandato)
- Controlli periodici:
  - di taratura, con periodicità annuale
  - di corretto funzionamento, prima di ogni impiego dello strumento



# Scadenza del Certificato di Taratura (ISO-17025)

ISO-17025 5.10.4.4 - Un certificato di taratura non deve contenere alcuna raccomandazione sull'intervallo di taratura salvo che ciò sia stato concordato con il cliente.

ISO-17025 5.6.3.1 - Il laboratorio deve disporre di un programma e di una procedura per la taratura dei propri campioni di riferimento

ISO-17025 5.6.3.2 - ... I materiali di riferimento interni devono essere controllati nella misura in cui sia tecnicamente ed economicamente fattibile

ISO-17025 5.6.3.3 - I controlli necessari per mantenere la fiducia nello stato di taratura dei campioni di riferimento ... e dei materiali di riferimento, devono essere eseguiti secondo procedure e scadenze definiti.

L'ENEA-INMRI può effettuare la “ritaratura” delle sorgenti campione e dei materiali di riferimento.

# Necessità di interconfronti a livello nazionale

(da programmare a breve)

Interconfronti su materiali di riferimento certificati in matrice  
acquosa:

- Alfa-Beta totale  
(es. campione tracciato con K-40, Sr-90 e  $U_{nat}$ )
- Uranio
- Radon/Radio

# ICRM recommendation

## ICRM general meeting, 9th september 2005

Given that BIPM has recommended the use of DDEP evaluated decay data in all NMI's, the Nuclear Data Working Group recommends the adoption of DDEP data in all members institutes of the ICRM, to assure roundness and consistency in their future nuclear data studies.

International Committee for Radionuclide Metrology (ICRM,  
<http://www.physics.nist.gov/icrm>)

**GRAZIE PER  
L'ATTENZIONE**