

Mus. civ. Rovereto	Atti del Workshop in geofisica	10 dicembre 2010	59-72	2011
--------------------	--------------------------------	------------------	-------	------

LILIANA MOU ^(1,2), MARICA BALDONCINI ⁽³⁾, GIAN PIERO BEZZON ⁽¹⁾,
 CARLO BROGGINI ⁽⁴⁾, GIAN PAOLO BUSO ⁽¹⁾, ANTONIO CACIOLLI ^(4,2),
 IVAN CALLEGARI ⁽²⁾, TOMMASO COLONNA ⁽²⁾, GIOVANNI FIORENTINI ^(1,3,5),
 ENRICO GUASTALDI ⁽²⁾, FABIO MANTOVANI ^(5,3), GIOVANNI MASSA ⁽²⁾,
 ROBERTO MENEGAZZO ⁽⁴⁾, CARLOS ROSSI ALVAREZ ⁽⁴⁾, MANJOLA SHYTI ^(3,5),
 GERTI XHIXHA ^(6,3,5), MERITA XHIXHA ⁽⁷⁾

NUOVO SPETTROMETRO GAMMA PER IL MONITORAGGIO DELLA RADIOATTIVITÀ IN SITU

Abstract - LILIANA MOU, MARICA BALBONCINI, GIAN PIERO BEZZON, CARLO BROGGINI, GIAN PAOLO BUSO, ANTONIO CACIOLLI, IVAN CALLEGARI, TOMMASO COLONNA, GIOVANNI FIORENTINI, ENRICO GUASTALDI, FABIO MANTOVANI, GIOVANNI MASSA, ROBERTO MENEGAZZO, CARLOS ROSSI ALVAREZ, MANJOLA SHYTI, GERTI XHIXHA & MERITA XHIXHA - New portable gamma-ray spectrometer.

Every time a dramatic event happens, like Chernobyl and Fukushima nuclear accidents, the interest on radioactivity monitoring becomes subject of attention for all global media networks. It is important to emphasize that the necessity of radioactivity monitoring isn't only in the case of an emergency but it is a continuous problem to deal with. In the environment where we live are present radionuclides both of terrestrial and extraterrestrial origin, principally ⁴⁰K isotope and ²³⁸U, ²³²Th decay chains. As consequence of man-made activities some isotopes of anthropogenic origin are distributed all over the world, principally ¹³⁷Cs coming from nuclear power plant accidents and nuclear weapon tests.

For this reason, technological and methodological developments dedicated to the in-situ

⁽¹⁾ Istituto Nazionale di Fisica Nucleare (INFN), Legnaro, Via dell'Università, 2 - I-35020, Padova.

⁽²⁾ Centro di GeoTecnologie, Via Vetri Vecchi, 34 - 52027 San Giovanni Valdarno, Arezzo.

⁽³⁾ Dipartimento di Fisica, Università di Ferrara, Via Saragat, 1 - I-44100 Ferrara.

⁽⁴⁾ Istituto Nazionale di Fisica Nucleare (INFN), Padova, Via Marzolo, 8 - I-35131 Padova, Italy.

⁽⁵⁾ Istituto Nazionale di Fisica Nucleare (INFN), Ferrara, Via Saragat, 1 - I-44100 Ferrara.

⁽⁶⁾ Faculty of Forestry Science, Agricultural University of Tirana, Kodër Kamëz - A-1029 Tirana, Albania.

⁽⁷⁾ Dipartimento di Scienze Botaniche, Ecologiche e Geologiche, Università di Sassari, Piazza Università, 21 - I-07100 Sassari, Italy.

monitoring of radionuclides of both natural and artificial origin becomes of great importance for health and environmental protection. The recent developments show that in-situ gamma-ray spectroscopy technique is an efficient monitoring tool, permitting the identification and quantitative determination of gamma-ray emitting isotopes.

In this work we propose a specific task relative to the study of the principal performances of a portable gamma-ray spectrometer with NaI(Tl) detector (called ZaNaI), projected and realized for in-situ measurement of environmental radioactivity. In order to validate the quality of in-situ measurements we studied the correlation between abundances for 80 different sites. The results obtained in-situ using ZaNaI were compared with those obtained from independent measurements on 5 samples collected per site using laboratory measurements with HPGe detectors.

This study confirms that in presence of concentrations of natural radionuclides comparable to the crustal average abundances, in-situ measurements of 5 min using this portable detector are affected by uncertainties (1 s) of 5%, 15%, and 7%, respectively for potassium, uranium and thorium. The abundances of ^{40}K , ^{238}U and ^{232}Th obtained from in-situ measurements through Full Spectrum Analysis (FSA) applying a new Non Negative Least Square (NNLS) approach are in excellent agreement with the results obtained from laboratory measurements on sample using HPGe detectors.

The performances offered by this instrument are quite better according the requisites of principal national and international normative regarding the health and environmental radioprotection of population and workers exposed to radiation. For this reason, the ZaNaI is characterised as an accurate, reliable and fast response instrument, regarding the measurement of natural and artificial radionuclides present in environment for both geophysical and social purposes.

Key words: Radioactivity - Gamma spectroscopy - Uranium, thorium, potassium and cesium - Radioactive contamination - Environmental monitoring.

Riassunto - LILIANA MOU, MARICA BALBONCINI, GIAN PIERO BEZZON, CARLO BROGGINI, GIAN PAOLO BUSO, ANTONIO CACIOLLI, IVAN CALLEGARI, TOMMASO COLONNA, GIOVANNI FIORENTINI, ENRICO GUASTALDI, FABIO MANTOVANI, GIOVANNI MASSA, ROBERTO MENEGAZZO, CARLOS ROSSI ALVAREZ, MANJOLA SHYTI, GERTI XHIXHA & MERITA XHIXHA - Nuovo spettrometro gamma per il monitoraggio della radioattività in situ.

Il tema del monitoraggio della radioattività è spesso oggetto di attenzione mediatica in occasione di eventi drammatici come gli incidenti nucleari di Chernobyl e Fukushima: raramente il controllo e lo studio della radioattività è comunicato alla società con pacatezza al di fuori di particolari emergenze. Nell'ambiente che ci circonda numerose sono le sorgenti di radioattività di origine extraterrestre e terrestre, primi tra tutti il ^{40}K e i radioisotopi presenti nelle catene di decadimento del ^{238}U e ^{232}Th . Negli ultimi decenni a questi isotopi se ne sono aggiunti altri di origine antropica, primi tra tutti il ^{137}Cs , riconducibili, per esempio, ai fallout successivi ad incidenti nucleari o test di armamenti nucleari in atmosfera.

In questo scenario lo sviluppo di strumentazione e metodologie dedicate al monitoraggio in situ di radioisotopi di origine naturale ed artificiale diventa sempre più importante sia per la salvaguardia che il controllo del territorio in cui viviamo. Per il raggiungimento di questi obiettivi la spettroscopia gamma è una tecnica d'indagine particolarmente efficace, che permette di misurare non solo il contenuto di radioattività di un materiale, ma di discriminare i diversi radioisotopi.

Il presente lavoro si propone di studiare le principali prestazioni dello spettrometro gamma portatile ZaNaI, progettato e realizzato appositamente per misurare in situ il contenuto di radioattività dell'ambiente. Per testare la qualità della misura realizzata con lo strumento ZaNaI abbiamo studiato la correlazione esistente tra le abbondanze dei radioisotopi misurati in 80 siti diversi e quelle ottenute dalla mediana dei valori misurati in laboratorio su 5 campioni raccolti in ciascun sito.

Al termine di questo lavoro possiamo affermare che in presenza di contenuti di radioattività naturale comparabili a quelli medi della crosta terrestre, con misure superiori a 5 minuti, lo

strumento portatile ZnNaI è in grado di misurare abbondanze di potassio, uranio e torio con incertezze (1 s) del 5%, 15%, e 7% rispettivamente. Le abbondanze di ^{40}K , ^{238}U e ^{232}Th ottenute con le misure in situ elaborate con il nuovo metodo Non Negative Least Square (NNLS) applicato al Full Spectrum Analysis (FSA) sono in ottimo accordo con le abbondanze degli stessi radio-nuclidi misurate nei campioni in laboratorio.

Queste performance sono migliori di quanto richiesto dalle principali normative nazionali ed internazionali di radioprotezione della popolazione e dei lavoratori esposti a rischio radiologico. Lo ZnNaI si configura pertanto come uno strumento veloce e affidabile per misurare la presenza di radioisotopi naturali ed artificiali nell'ambiente per scopi geofisici, di tutela della salute pubblica e per il monitoraggio della radioattività di territori relativamente vasti.

Parole chiave: Radioattività - Spettroscopia gamma - Uranio, torio, potassio e cesio - Contaminazione radioattiva - Monitoraggio ambientale.

1. INTRODUZIONE

Il tema del monitoraggio della radioattività ambientale sta diventando sempre più centrale nelle politiche di salvaguardia della salute pubblica sia a livello nazionale che europeo, principalmente a causa del diffondersi delle tecnologie nucleari applicate all'energia, alla salute ed alla produzione industriale.

La spettroscopia gamma è una metodologia valida per il monitoraggio della radioattività ambientale. Il suo largo impiego è motivato principalmente dal fatto che la radiazione penetrante permette l'identificazione del decadimento dell'isotopo attraverso indagini non distruttive in situ. In uno spettro ottenuto da una misura di radioattività naturale, infatti, è possibile riconoscere una serie di fotopicchi dovuti all'emissione associata al decadimento del ^{40}K , del ^{214}Bi nella catena di decadimento dell' ^{238}U e del ^{208}Tl nella catena di decadimento del ^{232}Th .

Il presente lavoro si propone di studiare alcune prestazioni di un rivelatore portatile costituito da uno scintillatore solido NaI(Tl) , progettato e realizzato appositamente per misurare in situ il contenuto di radioattività nei terreni con finalità geologiche ed ambientali. L'affidabilità delle misure ottenute in situ sarà verificata confrontando i risultati ottenuti con le abbondanze misurate in laboratorio su campioni di suolo rappresentativi della stessa area investigata dal detector portatile.

2. LA RADIOATTIVITÀ NATURALE

I nuclei instabili raggiungono una configurazione di maggior stabilità attraverso l'emissione di particelle (nuclei di elio, elettroni, positroni, neutrini, etc.) e/o di radiazione elettromagnetica (raggi x o γ). A differenza del decadimento α e β , l'emissione di raggi γ non cambia né il numero di massa A , né la carica Z del nucleo stesso: l'eccesso di energia di eccitazione del nucleo è emessa sotto forma

di radiazione elettromagnetica. Analogamente a quanto avviene negli orbitali elettronici, il nucleo atomico possiede livelli energetici quantizzati: nel momento in cui un nucleo si trova in uno stato eccitato esso può emettere radiazione elettromagnetica al fine di raggiungere uno stato di maggior stabilità. L'energia della radiazione gamma è pertanto ben definita e pari alla differenza tra i livelli nucleari coinvolti nella transizione: essa è caratteristica del nucleo che la produce.

Il momento esatto in cui un nucleo instabile decade in uno più stabile è ritenuto casuale ed imprevedibile, tuttavia per un dato campione di isotopi, il numero di decadimenti che ci si aspetta avvenga in un intervallo dt è proporzionale al numero N di nuclei presenti nel campione. Questa legge può essere descritta tramite la equazione differenziale del primo ordine:

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N$$

dove λ è la costante di decadimento, tipica per ciascun decadimento. La costante di decadimento λ è legata al tempo di dimezzamento $t_{1/2}$ attraverso la relazione:

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda}$$

Il tempo di dimezzamento $t_{1/2}$ di un isotopo radioattivo è definito come il tempo occorrente perché la metà dei nuclei di un campione dell'isotopo decadano in un altro elemento.

Quando la configurazione energetica di un nucleo decaduto è a sua volta instabile, si verifica un successivo decadimento: si innesca pertanto una catena di decadimenti che si conclude nel momento in cui viene raggiunto un isotopo stabile. Se il tempo di dimezzamento di un isotopo padre è molto più lungo del tempo di dimezzamento dell'isotopo figlio, la catena di decadimenti può raggiungere la condizione di equilibrio secolare, ovvero la condizione in cui le attività di tutti i radionuclidi facenti parte della catena sono le stesse.

Lo spettro energetico ideale generato da un emettitore γ è composto da tanti fotopicchi quanti sono i possibili salti fra i livelli nucleari. In uno spettro misurato i fotopicchi sono sovrapposti allo spettro dei fotoni non totalmente assorbiti dal rivelatore o diffusi dal mezzo che separa la sorgente ed il rivelatore: lo spettro ottenuto copre pertanto un range di energie continuo fino alla massima energia di transizione gamma permessa dal decadimento. Una volta nota la calibrazione dello strumento, attraverso l'analisi dello spettro è pertanto possibile individuare gli isotopi che sono decaduti gamma e la loro attività specifica.

Nell'ambiente che ci circonda le sorgenti di radioattività possono essere di origine artificiale o naturale. Gli isotopi radioattivi di origine antropica (^{137}Cs , ^{239}Pu , ^{90}Sr , ^{60}Co , etc.) non sono presenti naturalmente nell'ambiente e, quando vengono registrati, sono riconducibili ad attività umane come per esempio fughe

di materiale radioattivo, abbandono di scorie nucleari e fallout dovuto ad incidenti nucleari o test di armamenti nucleari.

I radionuclidi naturali possono avere origine cosmogenica, ovvero sono prodotti in continuazione a seguito dell'interazione tra raggi cosmici e nuclei stabili presenti in atmosfera, od origine primordiale, ovvero radionuclidi presenti sin dalla formazione della Terra ed aventi vite medie sufficientemente lunghe da essere presenti ancora oggi sul nostro pianeta.

I principali isotopi radioattivi presenti nella crosta terrestre sono ^{40}K , ^{238}U e ^{232}Th : la loro abbondanza media è di 2.3 %, 2.7 ppm e 10.5 ppm rispettivamente. Mentre il decadimento beta-gamma del ^{40}K produce un singolo fotopicco di energia 1460 keV, ^{238}U e ^{232}Th producono una catena di decadimento. I raggi gamma più importanti per l' ^{238}U sono quelli di energia pari a 610 keV, 1120 keV e 1740 keV originati dalle transizioni del ^{214}Bi . Per il ^{232}Th le emissioni gamma più importanti sono quelle prodotte dalle transizioni del ^{208}Tl alle energie di 580 keV e 2614 keV. Misurando l'attività specifica del ^{214}Bi e del ^{208}Tl ed assumendo che le rispettive catene di decadimento siano in equilibrio secolare, si ricava il contenuto di uranio equivalente eU e torio equivalente eTh ⁽⁸⁾ nella porzione di terreno investigato.

3. DESCRIZIONE DEGLI STRUMENTI

In generale il funzionamento di un rivelatore di radiazione gamma si basa sull'interazione dei fotoni, che costituiscono la radiazione incidente, con il materiale che costituisce il rivelatore stesso, in modo che tutta o parte dell'energia posseduta dalla radiazione venga trasferita alla massa del rivelatore e successivamente convertita in segnale elettrico. La risposta del rivelatore, una volta convertita in impulsi elettrici, può essere adeguatamente processata attraverso un'operazione di amplificazione e digitalizzazione. Le due principali categorie di rivelatori di radiazioni gamma sono i detector a scintillazione e a semiconduttore: per la realizzazione di questo lavoro sono stati utilizzati entrambi i tipi di detector.

Per le indagini in situ è conveniente utilizzare un rivelatore a scintillazione che in generale ha efficienze elevate e non richiede sistemi di raffreddamento: questo tipo di rivelatori è costituito da un cristallo in grado di produrre luce visibile a seguito del deposito di energia all'interno della massa del rivelatore stesso.

Per le indagini descritte qui di seguito è stato utilizzato uno spettrometro gamma portatile (ZaNaI) costituito da uno ioduro di sodio NaI(Tl) e progettato

⁽⁸⁾ Con eU ed eTh si indicano i contenuti di U e Th misurati attraverso il ^{214}Bi e ^{208}Tl , con l'assunzione che le rispettive catene di decadimento si trovino in equilibrio.

appositamente per misure di radioattività naturale ed artificiale per scopi geofisici (Fig. 1). Lo strumento è in grado di acquisire spettri gamma in configurazione statica e dinamica, registrando sia la posizione GPS che i principali parametri ambientali (temperatura e umidità).

Il detector utilizzato è un cristallo NaI(Tl) di forma cubica (102 mm x 102 mm x 102 mm) con una risoluzione energetica di 12,5% per 662,5 keV (^{137}Cs) e 15% per 122 keV (^{57}Co). La base integrata a processamento digitale per rivelatori a scintillazione (digiBASE™ ORTEC®) viene gestita da un EeePC 900 mediante collegamento USB.

Le misure di radioattività ambientale sono state effettuate con lo ZaNaI appoggiato a terra con tempi di acquisizione di 5 minuti. In questa configurazione il centro di massa del cristallo si trova ad un'altezza di 7 cm: il rivelatore riceve il 90% del segnale da un'area di circa 0.5 m di raggio. L'utente è in grado già dopo pochi minuti di discriminare qualitativamente la presenza dei principali radioisotopi di origine naturale ed antropica: questa peculiarità rende questo strumento particolarmente adatto ad indagini di sorgenti radioattive nascoste, siti contaminati e ricerche minerarie.

Il software d'analisi è stato sviluppato conformemente a quanto suggerito dalle linee guida dell'IAEA ⁽⁹⁾ e dalle norme ANSI ⁽¹⁰⁾: esso permette di compiere operazioni sequenziali d'analisi spettrale e di utilizzare il nuovo metodo Non Negative Least Square (NNLS) applicato al Full Spectrum Analysis (FSA).

Il confronto tra le misure realizzate in situ e quelle su campioni di suolo è stato possibile grazie all'impiego del sistema MCA_Rad (Fig. 2), operativo presso i Laboratori Nazionali INFN di Legnaro. Questo strumento è costituito da due detector HPGe iperpuro di tipo *n*, posti uno di fronte all'altro alla distanza di circa 5 cm. Entrambi i rivelatori al germanio hanno un'efficienza relativa dell'80% ed una risoluzione energetica di 2.2 keV a 1.33 MeV. La risoluzione spettrale dei detector HPGe è di gran lunga maggiore rispetto a quella degli scintillatori NaI(Tl) e ciò li rende particolarmente indicati per misure raffinate ad elevata precisione. La bassa efficienza di questi rivelatori, tuttavia, li vede sfavoriti nelle loro applicazioni speditive in situ.

Grazie ad una massiccia schermatura in rame e in piombo, il background registrato nella camera di misura dovuto al ^{40}K (1460 keV) è ridotto a 32 conteggi/ora e quello dovuto al ^{214}Bi (609 keV) è di 14 conteggi/ora. Lo strumento può realizzare misure su ogni tipo di materiale (solido, liquido o gassoso) opportunamente confezionato in scatole di policarbonato di 180 cc; grazie ad un caricatore in grado di ospitare 22 campioni ed un lettore di codice a barre, il sistema MCA_Rad è in

⁽⁹⁾ IAEA-TECDOC, 2003. Guidelines for radioelement mapping using gamma ray spectrometry data.

⁽¹⁰⁾ ANSI N42.14-1999. American National Standard for calibration and use of Germanium Spectrometers for the measurement of Gamma-Ray emission rates of radionuclides.

grado di realizzare misure in modo completamente automatico senza l'intervento umano. Un'unità di acquisizione dati multicanale gestita da un software sviluppato in ambiente Windows controlla le procedure di misura, il cambio del campione, la temperatura dei HPGe, che devono essere mantenuti a -180° .

Per gli obiettivi di questo lavoro e per la performance del sistema MCA_Rad, utilizzeremo le misure di abbondanza di radioisotopi ottenute da questo strumento come punto di riferimento per la caratterizzazione della qualità dello strumento portatile ZnNaI.



Fig. 1 - Spettrometro gamma portatile utilizzato per misurare la presenza di radioisotopi in situ.

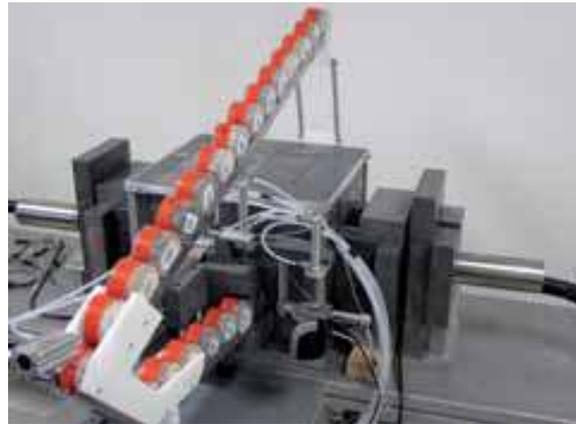


Fig. 2 - Apparato MCA_Rad realizzato presso i Laboratori Nazionali INFN di Legnaro.

4. REALIZZAZIONE DELLE MISURE IN SITU

Le misure di radioattività in situ sono state realizzate con lo spettrometro gamma portatile nel bacino del fiume Ombrone, in Toscana meridionale tra le province di Siena e Grosseto (Fig. 3). Il punto nel quale effettuare la misura è stato scelto facendo in modo di trovarsi in un luogo preferibilmente pianeggiante e distante almeno 20 metri da strade asfaltate e strutture antropiche di grandi dimensioni (case, muri di cinta, ponti, ecc.). Quest'ultimo accorgimento si è reso necessario al fine di indagare un'area il più possibile omogenea e possibilmente poco perturbata da azioni antropiche. Completata la fase preliminare di calibrazione dello strumento, per ogni fermata è stato acquisito uno spettro con lo zaino appoggiato a terra per una durata di 5 minuti (Fig. 4).

La misura in situ con la strumentazione portatile è fortemente influenzata dall'ambiente circostante: risulta pertanto fondamentale la conoscenza dei principali parametri ambientali e delle caratteristiche fisiche del terreno. Per questo motivo, ogni sito è stato caratterizzato riportando in un database elettronico i principali parametri geopedologici (litologia, tessitura, colore, etc.). Con l'obiet-

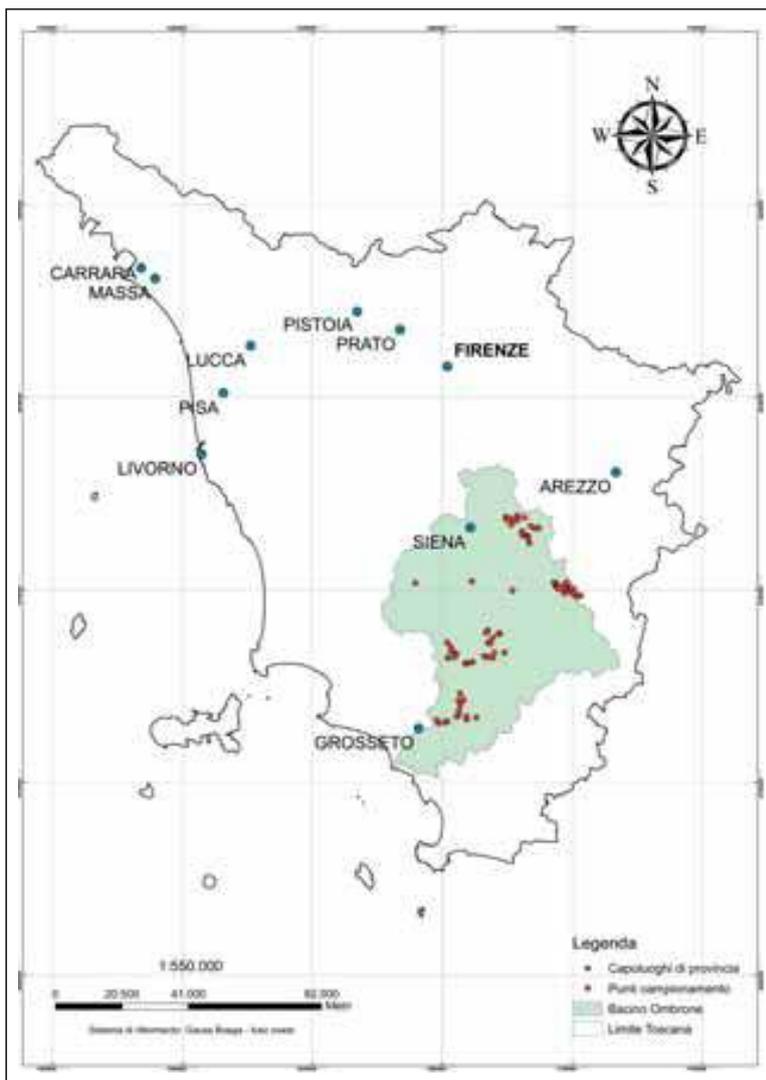


Fig. 3 - I punti sulla carta indicano il situ presso il quale sono state realizzate le misure.



Fig. 4 - Esempio di misura di spettroscopia gamma in situ con strumento appoggiato a terra



Fig. 5 - Esempio di disposizione dei prelievi di campioni di suolo rispetto al punto centrale nel quale è stata realizzata la misura di spettroscopia gamma in situ.

tivo di caratterizzare il contenuto di radioattività dell'area investigata, sono anche stati prelevati cinque diversi campioni di suolo analizzati successivamente in laboratorio. Il campionamento è stato realizzato seguendo una disposizione a «stella»: sono stati prelevati un campione centrale nel punto in cui è stato posizionato lo zaino e quattro campioni alla distanza di circa un metro (Fig. 5).

Il suolo è stato raccolto con una cazzuola fino ad una profondità massima di circa 10 cm, evitando di prelevare radici, foglie o materiali non rappresentativi del suolo stesso. Il quantitativo asportato non è stato mai inferiore a 500 g. Il sacchetto è stato chiuso con nastro adesivo e sul sacchetto è riportato l'ID identificativo del campione. In totale sono stati analizzati 80 siti diversi e sono stati raccolti 400 campioni di suolo.

5. REALIZZAZIONE DELLE MISURE IN LABORATORIO

Tutti i 400 campioni di suolo raccolti nella prima fase di campagna sono stati preparati per la successiva fase di misura di radioattività con lo strumento MCA_Rad. I suoli sono stati sminuzzati e, quando necessario, essiccati in un forno ventilato a 110° C, fino al raggiungimento di una massa costante. I campioni sono stati successivamente riposti in contenitori cilindrici di policarbonato di 180 cc, sono stati sigillati da un nastro adesivo sul quale è stato scritto l'ID identificativo del campione e sono stati pesati (Fig. 6). A ciascuna scatoletta è stato assegnato un codice a barre per l'identificazione automatica durante la misura. I campioni di suolo sono posti su un caricatore inclinato al termine del quale è posizionato un lettore di codici a barre e un pistone che introduce il campione nella camera di misura, tra le due facce dei detector, attraverso un'apertura rettangolare di 5 × 10 cm². Il tempo di acquisizione per tutti i campioni è stato di un'ora.



Fig. 6 - Esempio di campioni di suolo pronti per essere analizzati dall'MCA_Rad.

6. ANALISI DATI

Uno spettro gamma acquisito in situ utilizzando un rivelatore NaI(Tl) è generalmente composto da una serie di fotopicchi più o meno accentuati a seconda della maggiore o minore presenza di radioisotopi (prevalentemente ^{40}K , ^{238}U e ^{232}Th) nell'ambiente. Questo spettro è stato analizzato utilizzando un nuovo metodo basato sul Non Negative Least Square (NNLS) applicato al Full Spectrum Analysis (FSA). Il metodo FSA cerca di ricostruire lo spettro misurato componendo linearmente gli spettri fondamentali (e non solo i fotopicchi) prodotti dai radioisotopi che si intendono investigare: questa tecnica permette di estendere l'indagine anche a isotopi di origine antropica come il ^{137}Cs e di supportare il risultato finale con una statistica maggiore rispetto a quella raccolta nello stesso intervallo di tempo nei soli intervalli energetici corrispondenti ai fotopicchi. La composizione delle diverse componenti determina la forma dello spettro, mentre il peso di ciascuna componente fondamentale è dato dalla concentrazione associata all'elemento stesso. Il metodo NNLS interviene laddove il calcolo della minimizzazione del chi quadro introduce valori di conteggi negativi nei diversi bin dello spettro, facendo in modo che tutte le soluzioni abbiano un significato fisico.

Un misura di precisione della radioattività gamma in situ non può ignorare contributi non riconducibili ai radioisotopi presenti nel terreno, come per esempio la radioattività intrinseca del detector, il contributo dato dai raggi cosmici, la geometria della sorgente e del detector ed il radon atmosferico: un'opportuna calibrazione del detector è pertanto necessaria. Così come descritto dal Technical Report 309 dell'IAEA ⁽¹⁾, la calibrazione dello strumento è stata realizzata utilizzando siti naturalmente arricchiti di un solo radioisotopo. La caratterizzazione di questi siti è avvenuta raccogliendo un elevato numero di campioni che sono stati analizzati in laboratorio utilizzando il sistema MCA_Rad. Questo procedimento ha permesso di ottenere gli spettri fondamentali per ^{40}K , ^{238}U , ^{232}Th e ^{137}Cs per lo strumento portatile ZaNaI (Fig. 7). La composizione lineare di questi spettri fondamentali permette di ricostruire lo spettro misurato in situ attraverso opportuni pesi che sono le concentrazioni dei quattro radioisotopi presenti nel terreno.

Per testare la qualità della misura realizzata con lo strumento ZaNaI abbiamo studiato la correlazione esistente tra le abbondanze dei radioisotopi misurati in situ e quelle ottenute dalla mediana dei valori misurati in laboratorio sui 5 campioni raccolti in ciascun sito. La deviazione standard delle 5 misure riferite a ciascun sito è stata utilizzata per avere la sensibilità sulla disomogeneità del sito stesso. Nel raggio di circa un metro rispetto al punto centrale di acquisizione con lo ZaNaI , gli

⁽¹⁾ IAEA - International Atomic Energy Agency, «Construction and use of calibration facilities for radiometric field equipment», Technical Report Series N° 309, Vienna, 1990.

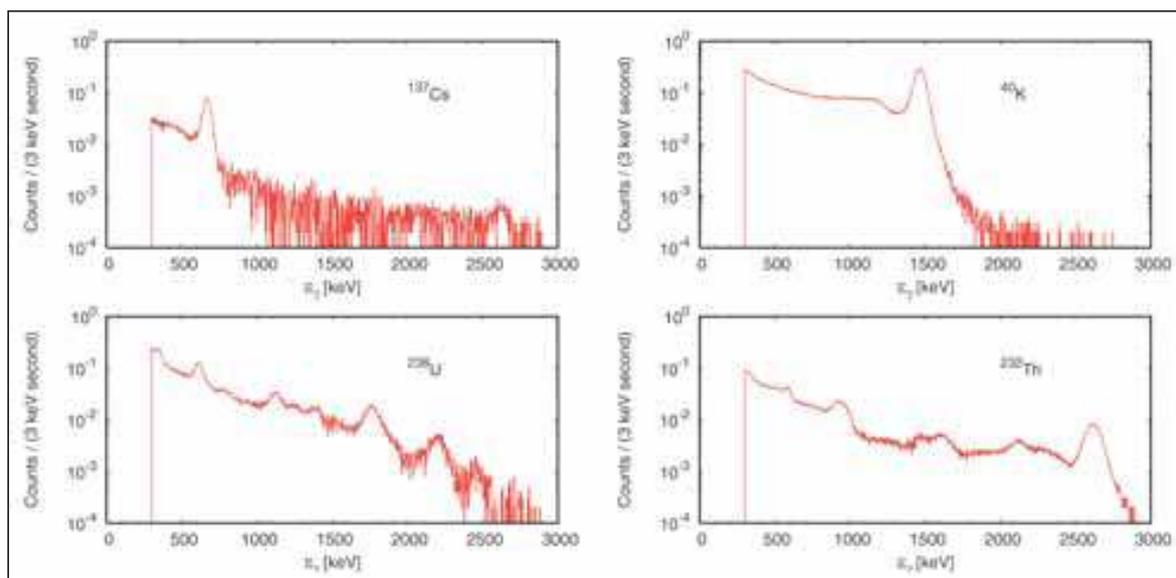


Fig. 7 - Spettri fondamentali di ^{40}K , ^{238}U , ^{232}Th e ^{137}Cs per lo strumento portatile ZaNaI .

80 siti scelti si sono rivelati omogenei, infatti i valori medi delle deviazioni standard per tutti i siti sono state $\langle\sigma_{\text{K}}\rangle = 4\%$, $\langle\sigma_{\text{U}}\rangle = 11\%$ e $\langle\sigma_{\text{Th}}\rangle = 9\%$ rispettivamente per le abbondanze di K, U e Th. Nelle Figg. 8, 9, 10 riportiamo le rette di correlazione tra le abbondanze misurate in situ e quelle misurate in laboratorio.

Si osserva che i coefficienti angolari ottenuti dalla regressione lineare sono compatibili con 1 entro 1σ : questo significa che le abbondanze ottenute con le misure in situ elaborate con il metodo FSA applicando NNLS sono in ottimo accordo con le mediane delle abbondanze dei campioni misurati in laboratorio. L'errore associato al coefficiente angolare della regressione lineare per gli 80 siti ci permette di quantificare l'incertezza con cui il rivelatore ZaNaI misura il contenuto di radioattività in situ rispetto al punto di riferimento ottenuto con le misure realizzate su campione. Secondo questa analisi, il detector portatile ZaNaI è in grado di effettuare misure di radioattività in situ con incertezze sui valori delle abbondanze di ^{40}K , ^{238}U , ^{232}Th di 5%, 7% e 15% rispettivamente. Ovviamente a queste incertezze va aggiunto l'errore statistico dipendente dal tempo di acquisizione: si è comunque verificato che per siti aventi contenuti di radioattività simili alla media della crosta terrestre, l'incertezza statistica di una misura di 5 minuti è inferiore alle incertezze riportate sopra.

7. CONCLUSIONI

In questo lavoro sono state studiate le prestazioni dello spettrometro gamma ZaNaI correlando i risultati ottenuti in 80 siti con i valori di abbondanza di ^{137}Cs ,

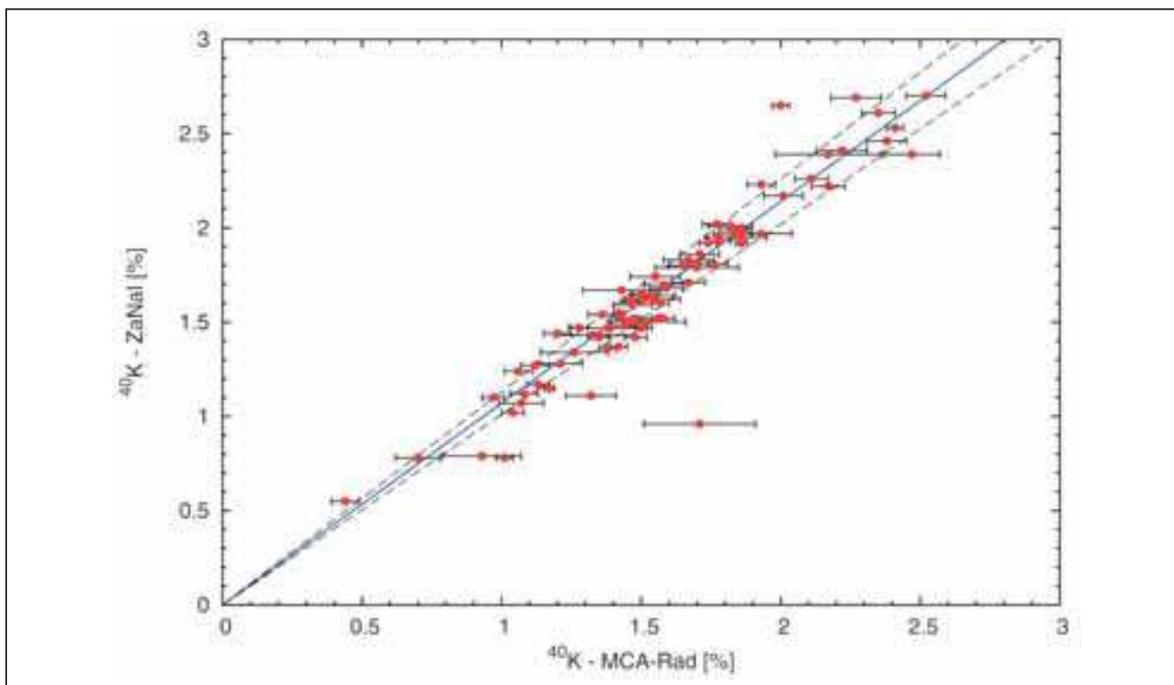


Fig. 8 - Correlazione tra l'abbondanza di potassio misurata con il rivelatore MCA_Rad e quella misurata con il rivelatore portatile ZaNaI. I punti relativi alle misure realizzate con MCA_Rad si riferiscono alla mediana dei 5 campioni raccolti per ciascun sito e la barra d'errore si riferisce alla deviazione standard. Il coefficiente angolare della retta è $m_K = 1.06 \pm 0.06$.

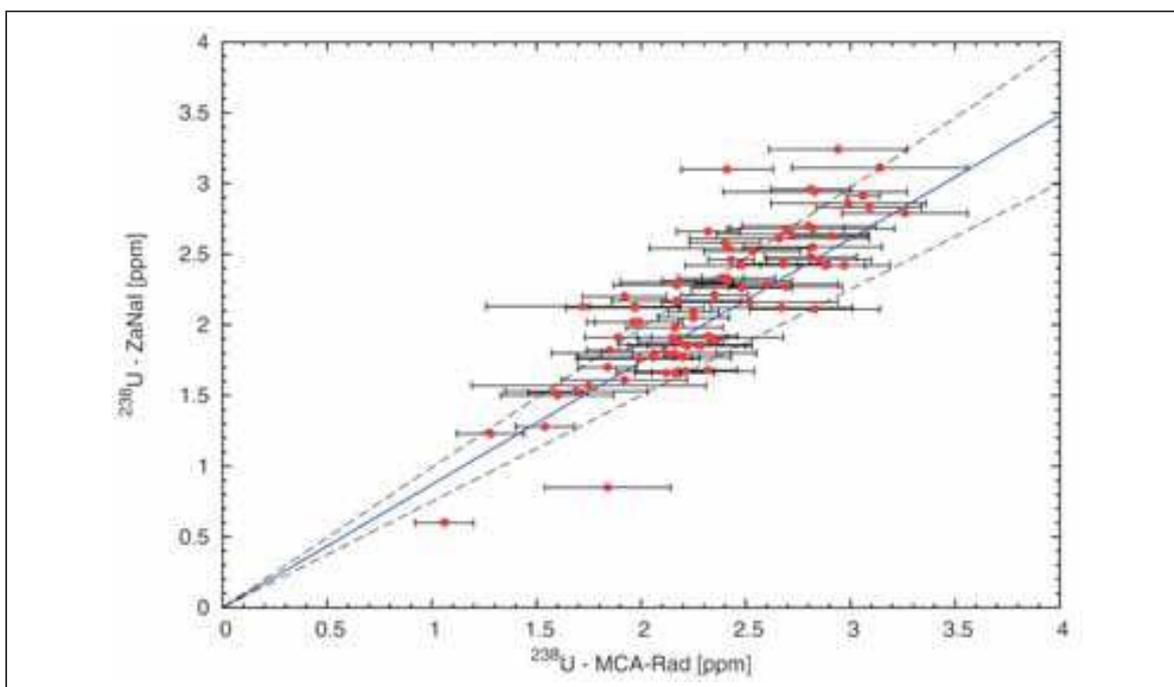


Fig. 9 - Correlazione tra l'abbondanza di uranio misurata con il rivelatore MCA_Rad e quella misurata con il rivelatore portatile ZaNaI. I punti relativi alle misure realizzate con MCA_Rad si riferiscono alla mediana dei 5 campioni raccolti per ciascun sito e la barra d'errore si riferisce alla deviazione standard. Il coefficiente angolare della retta è $m_U = 0.87 \pm 0.12$.

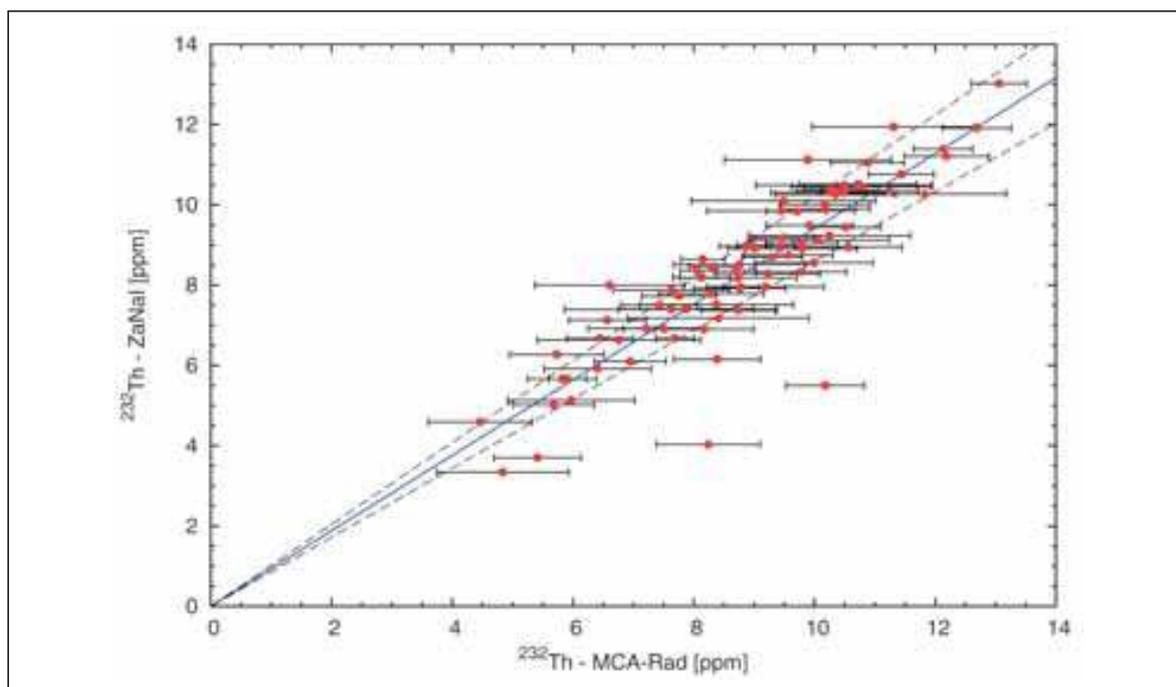


Fig. 10 - Correlazione tra l'abbondanza di torio misurata con il rivelatore MCA_Rad e quella misurata con il rivelatore portatile ZnNaI. I punti relativi alle misure realizzate con MCA_Rad si riferiscono alla mediana dei 5 campioni raccolti per ciascun sito e la barra d'errore si riferisce alla deviazione standard. Il coefficiente angolare della retta è $m_{Th} = 0.94 \pm 0.07$.

^{40}K , ^{238}U e ^{232}Th ottenuti da misure realizzate in laboratorio su campioni di suolo. I siti test sono stati individuati e caratterizzati dal punto di vista geopedologico in modo tale da essere il più omogenei possibile, evitando potenziali disturbi sulla radioattività introdotti da attività antropiche. Per ciascun sito sono stati raccolti 5 campioni di suolo: tutti i 400 campioni sono stati misurati con lo strumento MCA_Rad, uno spettrometro gamma che utilizza due HPGe accoppiati per realizzare misure automatizzate in condizioni di basso fondo.

Il contenuto di radioattività di riferimento per tutti i siti è stato fatto corrispondere alla mediana dei 5 campioni raccolti ed alla deviazione standard delle abbondanze misurate è stato associato il grado di disomogeneità del sito stesso. L'omogeneità dei suoli investigati si è rivelato un elemento fondamentale per lo studio di caratterizzazione delle prestazioni del rivelatore portatile ZnNaI.

L'obiettivo che ci si era prefissati consisteva nel ricavare una valutazione quantitativa dell'incertezza con cui lo ZnNaI misura il contenuto di radioattività del terreno quando si trova appoggiato a terra. Grazie alla nuova tecnica d'analisi FSA implementata con il metodo NNLS si sono raggiunti eccellenti risultati, confermati dagli ottimi coefficienti angolari ottenuti dalle regressioni lineari che correlano misure di abbondanza realizzati in situ con quelle ricavate dall'analisi spettroscopia su campioni.

Al termine di questo lavoro possiamo affermare che in presenza di contenuti di radioattività naturale comparabile a quello medio della crosta terrestre, con misure superiori a 5 minuti, lo strumento portatile $ZaNaI$ è in grado di misurare abbondanze di potassio, torio ed uranio con incertezze (1σ) rispettivamente del 5%, del 7% del 15%. Queste performance sono migliori di quanto richiesto dalle principali normative nazionali ed internazionali di radioprotezione della popolazione e dei lavoratori esposti a rischio radiologico ⁽¹²⁾. Lo $ZaNaI$ si configura pertanto come uno strumento veloce e affidabile per misurare la presenza di radioisotopi naturali ed artificiali nell'ambiente per scopi geofisici, di tutela della salute pubblica e per il monitoraggio della radioattività di territori relativamente vasti.

BIBLIOGRAFIA

- BALBONCINI M., 2010 - «Applicazione del metodo Non Negative Least Square alla Full Spectrum Analysis nel processo di calibrazione di uno spettrometro di raggi gamma portatile». Tesi, Università degli Studi di Ferrara.
- CACIOLLI A., BALBONCINI M., BEZZON G.P., BROGGINI C., BUSO G.P., CALLEGARI I., *et al.* «A new FSA approach for in situ γ -ray spectroscopy». *Submitted to Science of the Total Environment*.
- IAEA - International Atomic Energy Agency, 1990 - «Construction and use of calibration facilities for radiometric field equipment», *Technical Report Series*, 309, Vienna.
- IAEA - International Atomic Energy Agency, 2003 - «Guidelines for radioelement mapping using gamma ray spectrometry data», *IAEA-TECDOC-1363*, Vienna.
- Radiation Protection 112: 1999 - «Radiological protection principles concerning the natural radioactivity of building materials» - *EC Directorate General Environment, Nuclear Safety and Civil Protection*.
- GRASTY R.L., 1975 - «Atmospheric absorption of 2.62 MeV gamma-ray».
- UNI 10797:1999 «Radionuclidi naturali nei materiali da costruzione - Determinazione mediante spettrometria gamma ad alta risoluzione».
- XHIXHA G., BEZZON G.P., BROGGINI C., BUSO G.P., CACIOLLI A., CALLEGARI I., *et al.* «A low background fully automated high-resolution gamma-ray spectrometer dedicated to radiological characterization of NORM». *Submitted to Applied Radiation and Isotopes*.

⁽¹²⁾ Radiation Protection 112: «Radiological protection principles concerning the natural radioactivity of building materials» – EC Directorate General Environment, Nuclear Safety and Civil Protection – 1999. UNI 10797:1999 «Radionuclidi naturali nei materiali da costruzione – Determinazione mediante spettrometria gamma ad alta risoluzione».