

# AMBIENTE E RADIOATTIVITÀ: SISTEMA NAZIONALE DI MONITORAGGIO

**18|19**

**giugno 2015**

Ministero dell'Ambiente  
e della Tutela  
del Territorio e del Mare



CARATTERIZZAZIONE RADIOMETRICA DI SITI CONTAMINATI

Task 01.02.04

Mauro Magnoni, Arpa Piemonte



MINISTERO DELL'AMBIENTE  
E DELLA TUTELA DEL TERRITORIO E DEL MARE



**ISPRA**

Istituto Superiore per la Protezione  
e la Ricerca Ambientale



- Le Agenzie che hanno partecipato all'elaborazione di questo documento sono state:
  - Arpa Piemonte (coordinamento)
  - Arpa Toscana
  - Arpa Molise
  - Arpa Sardegna
  - Arpa Lombardia



## INTRODUZIONE



AMBIENTE e RADIOATTIVITA':  
Sistema nazionale di monitoraggio  
Roma, 18-19 giugno 2015

- Hanno in particolare collaborato i colleghi:
  - Rosella Rusconi
  - Silvia Bucci
  - Gabriele Pratesi
  - Claudio Cristofaro
  - Massimo Cappai



- La presente pubblicazione tratta della contaminazione di siti industriali o comunque di aree limitate, sia urbane che naturali, del territorio.

Sono escluse le problematiche relative alla contaminazione globale dell'ambiente (incidenti a centrali nucleari, tipo Chernobyl) o planetaria (fallout da test nucleari).



- La situazione tipica in cui ci si trova ad operare nei siti contaminati, così come sono comunemente intesi, non è quella in cui si è ha a priori una chiara evidenza di un inquinamento radioattivo
- Il contesto normativo in cui ci si muove è dunque, in generale, quello del Decreto 152 a cui si devono necessariamente affiancare ed integrare le norme di radioprotezione del D. Lgs. 230/95



- In un contesto in cui la contaminazione radioattiva è ipotetica, la pianificazione prevederà l'impiego di tecniche con ***sensibilità analitiche spinte al massimo***
- Viceversa, se la natura della contaminazione è già nota, ci si indirizzerà verso lo studio, il più possibile accurato, delle caratteristiche della suddetta contaminazione, con l'obiettivo ***di fornire una valutazione dosimetrica***



- **Origine della contaminazione:**

1. Traffico o smaltimento di **sorgenti radioattive vere e proprie**, ossia oggetti in genere metallici, sigillati, di dimensioni anche molto ridotte ma con valori di radioattività molto elevati, eventualmente ancora contenuti all'interno di schermature metalliche;
2. Traffico o smaltimento di **materiali radiocontaminati**, ossia materiale sfuso di varia origine (pezzi metallici, scorie di fonderia, macerie di demolizione, rifiuti di origine medica, dei etc.) che in momenti diversi del proprio ciclo produttivo è venuto a contatto con materie radioattive non sigillate (o anche che è stato contaminato per attivazione neutronica all'interno di impianti nucleari);
3. Traffico o smaltimento di **prodotti o residui** derivanti da particolari attività lavorative implicanti l'uso di materiali radioattivi di origine naturale (NORM);
4. Traffico o smaltimento di materiali del **ciclo del combustibile nucleare**



## PIANIFICAZIONE DELL'INDAGINE

- **Origine della materie radioattive**

1. ciclo del combustibile nucleare, dall'estrazione dei minerali uraniferi fino allo smantellamento di impianti nucleari;
2. utilizzo a vario titolo di uranio impoverito, per usi sia civili (es.: realizzazione di schermature, standard da laboratorio, contrappesi, etc.) che militari (es.: munizioni all'uranio impoverito);
3. attività industriali in cui si utilizzano sorgenti radioattive a supporto dell'attività primaria dell'azienda (es.: sorgenti per gammagrafia industriale, rivelatori di umidità, misuratori di spessore, dispositivi per la scarica elettrostatica, rivelatori di fumo, etc.);
4. attività industriali coinvolte in incidenti con sorgenti radioattive (es.: fusione accidentale di sorgenti radioattive in acciaierie con conseguente produzione di scorie di lavorazione, polveri di abbattimento fumi e prodotti finiti radiocontaminati);
5. particolari attività industriali comprese nell'allegato III-bis del D.Lgs n. 230 del 1995 in cui si utilizzano materiali ad alto contenuto di radioattività naturale (industrie NORM, es.: industria per l'estrazione degli idrocarburi, industria per la produzione dei refrattari);
6. attività di ricerca scientifica;
7. attività sanitarie, in cui le sorgenti radioattive sono utilizzate a scopo diagnostico o terapeutico sia sotto forma di sorgenti sigillate (es.: sorgenti di cobalto-60 per radioterapia) che non sigillate (normalmente liquide o solide, possono dare luogo a rifiuti contaminati sia durante la manipolazione del materiale che a seguito della somministrazione ai pazienti).



- Si possono così individuare sia un elenco di radionuclidi legati ai vari scenari (Tabella 1 nel testo) che i parametri oggetto di determinazione analitica nelle varie matrici (Tabella 2 nel testo)
- Gli obiettivi in termini di sensibilità analitica devono essere valutati in riferimento al criterio di non rilevanza radiologica di  $10 \mu\text{Sv}/\text{anno}$  (Allegato I del D. Lgs. 230/95)



- Per l'applicazione di questo concetto si può fare uso dei *Clearence Levels* della pubblicazione EU Radiation Protection 122
- Si hanno a disposizione valori di riferimento per alcuni dei radionuclidi più rappresentativi, nel caso di materiali solidi e acque

**Tab. 3 Valori di riferimento (derivati da alcuni radionuclidi in natura)**

Radionuclide
Am-241
C-14
Co-60
Cs-137 <sup>(2)</sup>
Eu-152
Eu-154
H-3
Ni-63
Pu-238
Pu-239 <sup>(3)</sup>
Pu-240 <sup>(3)</sup>
Ra-226+ <sup>(4)</sup>
Sr-90+ <sup>(5)</sup>
Th-232+ <sup>(6)</sup>
U-235+ <sup>(7)</sup>
U-238+ <sup>(8)</sup>

- (1): variabile in funzione del contenuto di n  
 (2): l'ampio intervallo di variabilità dipende dalle  
 concentrazioni di Cs-137 sono in generale s  
 (3): somma delle concentrazioni di Pu-239  
 (4): in equilibrio con i prodotti di decadime  
 (5): in equilibrio con il prodotto di decadim  
 (6): in equilibrio con i prodotti di decadime  
 (7): in equilibrio con i prodotti di decadime  
 (8): in equilibrio con i prodotti di decadime

**Tab. 4 Valori di riferimento e intervalli di valori in natura per alcuni radionuclidi nelle acque**

Radionuclide	Valori di riferimento (classe d'età: adulti) Bq/kg	Intervallo di valori di fondo <sup>(1)</sup> Bq/kg
Alfa totale	0,1	< 0,01 – 0,5
Beta totale	1	< 0,05 – 0,2
Am-241	0,68	normalmente assente
C-14	240	non disponibile
Co-60	40	normalmente assente
Cs-137	11	normalmente assente
Eu-152	98	normalmente assente
Eu-154	68	normalmente assente
H-3 (HTO)	7600	< 5 <sup>(2)</sup>
Ni-63	910	normalmente assente
Pu-238	0,6	normalmente assente
Pu-239	0,55	normalmente assente
Pu-240	0,55	normalmente assente
Ra-226	0,49	< 0,01
Sr-90	4,9	normalmente assente
Th-232	0,6	normalmente assente
U-235	2,9	< 0,02
U-238	3	< 0,01 – 0,5

(1): valori tipici per campioni di acque del Nord Italia

(2): dato relativo alla concentrazione tipica di trizio nelle acque piovane e nelle acque superficiali interne



- Nella **pianificazione** dell'indagine bisogna quindi valutare l'opportunità di effettuare misure in campo oppure passare direttamente a un piano di campionamento
- Spesso le due opzioni coesistono:
  - a) Misure in campo** (propedeutiche)
  - b) Piano di campionamento**



## ***Misure in campo: tecniche di misura***

1. misure di contaminazione superficiale (mediante contaminometro (alfa, beta e gamma) o smear test)
2. misure di rateo di dose gamma
3. spettrometria gamma in campo



## ***Misure in laboratorio: tecniche di misura***

1. *Spettrometria gamma*
2. *Metodi radiochimici*
  - a) *Misure alfa/beta totale (acque e suoli)*
  - b) *Spettrometria alfa (Pu ed eventualmente altri transuranici)*
  - c) *Spettrometria alfa (Ra, U)*
  - d) *ICP-MS (U)*
  - e) *Sr-90*



## ***Il campionamento e la sua incertezza***

*Nella definizione del piano di campionamento andrà sviluppata una **metodologia** che consenta una stima dell'incertezza di campionamento stessa*

*Si passa quindi alla pianificazione del campionamento vero e proprio che in astratto potrà seguire diversi approcci:*

- 1. campionamento “a caso” (haphazard sampling)*
- 2. campionamento soggettivo (judgement sampling)*
- 3. campionamento probabilistico (probability sampling)*
- 4. campionamento di ricerca (search sampling)*



## Definizione del piano di monitoraggio (radiazione gamma)

- Sono impiegate di solito due tecniche di misura:
  - a) Misura del rateo di dose (plastici scintillatori o strumentazione equivalente)
  - b) Spettrometria gamma (HPGe, LaBr)



## Definizione del piano di monitoraggio (radiazione gamma -rateo)

- Per le misure di rateo di dose, nel caso in cui non si abbiano informazioni dettagliate sulla localizzazione della contaminazione l'approccio da seguire sarà quello di disegnare un percorso rettilineo da percorrere lentamente (a piedi) e a velocità costante, con un rivelatore sempre acceso, tenuto ad un'altezza di circa 1 m dal suolo. Il percorso dovrà sistematicamente "coprire" tutta l'area di interesse mediante linee parallele aventi tra loro una distanza  $d$  prefissata.



## Definizione del piano di monitoraggio (radiazione gamma- rateo)

- Il “passo”  $d$  del monitoraggio influenzerà evidentemente la sensibilità delle misure. Si tenga presente che un valore  $d > 20$  m potrebbe non essere adeguato per l'individuazione di anomalie radiometriche anche di una certa importanza



## Definizione del piano di monitoraggio (radiazione gamma -rateo)

- Impiegando strumenti aventi sensibilità dell'ordine di 5-10 nSv/h, si può stimare una *MDR* ("Minima Dose Rivelabile") dell'ordine di 20-50 nSv/h che, nell'ipotesi di un monitoraggio eseguito con passo  $d= 10$  m, corrispondono circa alle seguenti MAR:

$$\text{MAR}_{\text{Co60}} = 3,3 \text{ MBq}$$

$$\text{MAR}_{\text{Cs137}} = 12,8 \text{ MBq}$$

$$\text{MAR}_{\text{Am241}} = 385 \text{ MBq}$$



## Definizione del piano di monitoraggio (spettrometria gamma in campo)

- Dovendo mappare un'area con la spettrometria gamma in situ converrà, se possibile, stabilire un reticolo uniforme di passo  $d$ , all'intersezione del quale porre i vari punti di misura
- Ponendosi in queste condizioni con il rivelatore a 1 m dal suolo si possono stimare, con semplici *casi studio*, le potenzialità di questa tecnica



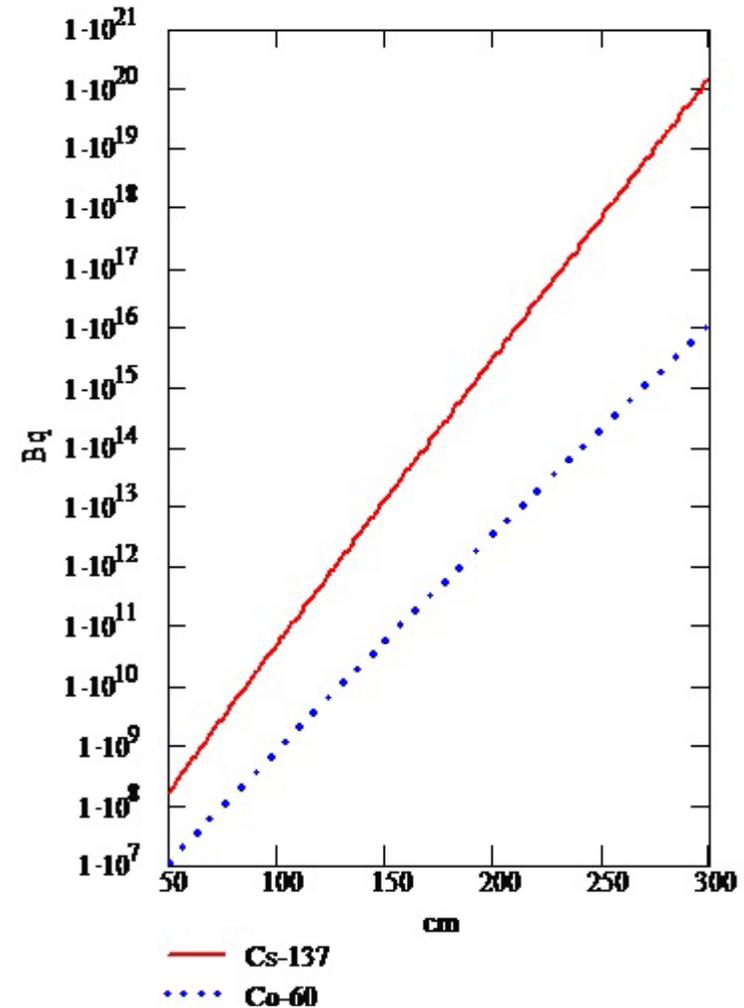
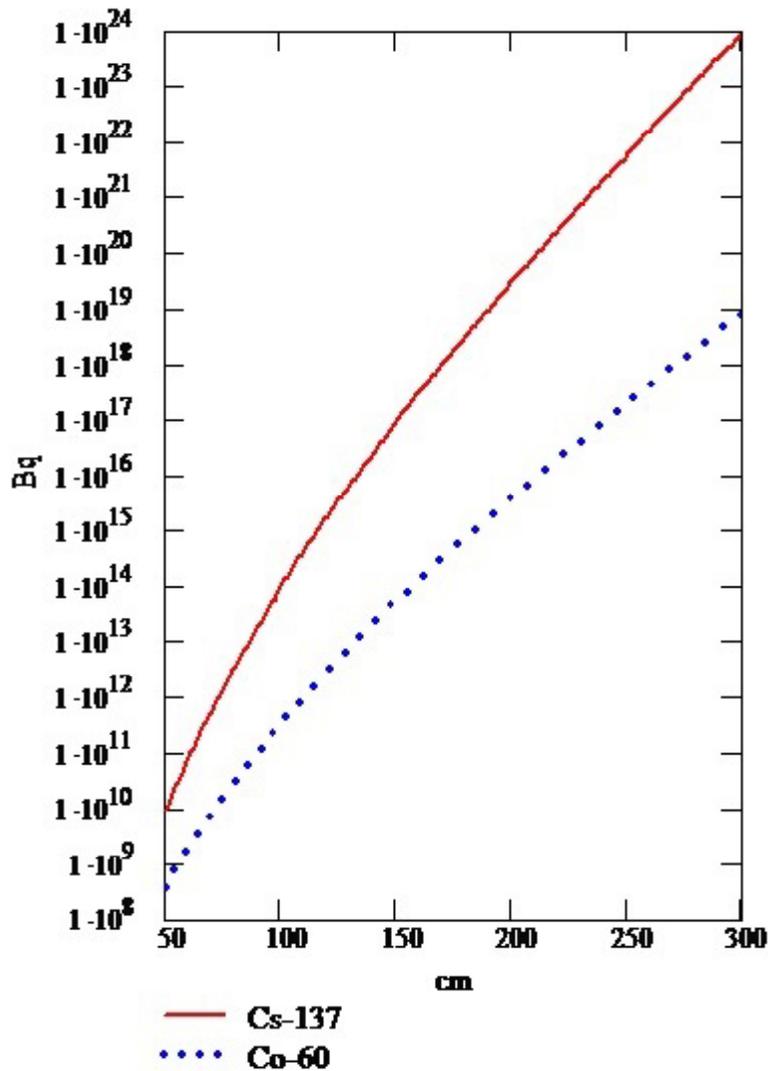
## Caso studio: sorgente puntiforme interrata a una profondità $h_s$

- Date queste condizioni, se  $h$  è l'altezza a cui si trova il rivelatore, la distanza massima a cui si trova la sorgente interrata è:

$$h_{MAX} = \sqrt{(h + h_s)^2 + \frac{d^2}{2}}$$

e si può calcolare quindi la corrispondente MAR:

$$MAR = \frac{4.65 \cdot \sqrt{N_b}}{\sigma \gamma \cdot p \cdot \sqrt{t} \cdot e^{-\left[ \left( \frac{\mu}{\rho} \right)_{aria} \cdot \rho_{aria} \cdot h_{aria} + \left( \frac{\mu}{\rho} \right)_{suolo} \cdot \rho_{suolo} \cdot h_{suolo} \right]}} \cdot \frac{1}{4\pi \cdot h_{MAX}^2}$$



**MAR in funzione della profondità della sorgente nel caso più sfavorevole (a sinistra, distanza max) e più favorevole (a destra, rivelatore sulla verticale)**



## **Caso studio: materiale radioattivo uniformemente contaminato interrato a una profondità $h_s$**

- La situazione ora, come si può immaginare, è molto più complicata e critica
- Abbiamo appena visto come l'interramento di una sorgente puntiforme renda già problematica la rivelazione: in questo caso è tutto molto più difficile e una certa influenza la possono avere anche i livelli locali di fondo, come vedremo nei risultati....



Tabella A

Sud Italia - 50 m slm - Rateo di dose gamma: 100 nSv/h – Deposizione media $^{137}\text{Cs}$ : 2000 Bq/m <sup>2</sup> tempo di conteggio: 2500 – Rivelatore HPGe tipo n, 28% efficienza relativa		
	MAR $^{137}\text{Cs}$	MAR $^{60}\text{Co}$
PROFONDITÀ CONTAMINAZIONE $h_s = 50$ cm	7 – 13 kBq/kg	1 kBq/kg
PROFONDITÀ CONTAMINAZIONE $h_s = 100$ cm	6000 - 11000 kBq/kg	150 kBq/kg
DEPOSIZIONE SUPERFICIALE UNIFORME	34 – 64 Bq/m <sup>2</sup>	47 Bq/m <sup>2</sup>

Tabella B

Nord Italia - 200 m slm - Rateo di dose gamma: 120 nSv/h – Deposizione media $^{137}\text{Cs}$ : 20000 Bq/m <sup>2</sup> tempo di conteggio: 2500 – Rivelatore HPGe tipo n, 28% efficienza relativa		
	MAR $^{137}\text{Cs}$	MAR $^{60}\text{Co}$
PROFONDITÀ CONTAMINAZIONE $h_s = 50$ cm	23 kBq/kg	0,6 kBq/kg
PROFONDITÀ CONTAMINAZIONE $h_s = 100$ cm	19700 kBq/kg	86 kBq/kg
DEPOSIZIONE SUPERFICIALE UNIFORME	110 Bq/m <sup>2</sup>	27 Bq/m <sup>2</sup>

**Per quanto riguarda il  $^{137}\text{Cs}$  una certa influenza sulle MAR deriva anche dalla presenza del radioisotopo stesso nell'ambiente: questo effetto è evidente osservando i valori riferiti al Sud Italia, inferiori di circa un fattore 2 rispetto a quelli valutati per un tipico sito del Nord Italia**



## Alcune considerazioni su questo caso studio:

- La spettrometria gamma in campo è estremamente sensibile nel valutare la presenza di radioisotopi, soprattutto artificiali distribuiti superficialmente; si raggiungono infatti sensibilità notevoli (qualche decina di Bq/m<sup>2</sup>) anche con tempi di acquisizione relativamente contenuti (2500 s)
- La capacità di rivelare materiali contaminati sepolti decresce invece molto rapidamente all'aumentare dello spessore dello strato di suolo schermante, fino a diventare pressoché nulle per profondità superiori al metro; ciò vale soprattutto per radionuclidi con emissioni gamma a bassa e media energia, mentre per radionuclidi con emissioni gamma ad alta energia (ad esempio, il Co-60) si hanno MAR ancora relativamente contenute, attorno ai 90 kBq/kg anche per materiali che si trovano a 1 m di profondità.



## Alcune considerazioni su questo caso studio:

- I valori di MAR qui presentati sono stati valutati per le efficienze intrinseche del rivelatore Canberra impiegato da Arpa Piemonte, cioè per valori del parametro  $(N_o/\Phi)_{ARPA}$  alle energie di emissione dei radioisotopi pari a:

$$(N_o/\Phi)_{661.7} = 5,863 \text{ cps}/(\text{fotoni}/[\text{cm}^2 \cdot \text{s}])$$

$$(N_o/\Phi)_{1332.5} = 3,126 \text{ cps}/(\text{fotoni}/[\text{cm}^2 \cdot \text{s}])$$

- Una stima approssimata delle  $MAR_{LAB}$  per un rivelatore qualsiasi e per un generico tempo di acquisizione  $t$  (espresso in secondi), a partire dai valori  $MAR_{ARPA}$  mostrati nelle precedenti tabelle, può essere ricavata dalla seguente espressione approssimata:

$$MAR_{LAB} = \frac{MAR_{ARPA} \cdot (N_0 / \Phi)_{ARPA}}{(N_0 / \Phi)_{LAB}} \cdot \sqrt{\frac{2500}{t}}$$

- Se non sono disponibili informazioni sui valori di  $N_0 / \Phi$ , con un'ulteriore un po' grossolana ma accettabile approssimazione, ***ad essi può essere sostituito il valore dell'efficienza relativa del rivelatore (sapendo che per il rivelatore Canberra Arpa Piemonte efficienza relativa = 28,5%)***



## Generalità

- Nell'ultima sezione del report si tratta in dettaglio di come affrontare una campagna di misura che preveda prelievo di campioni e analisi
- Sono state quindi elaborate alcune tabelle che mettono a confronto, per alcune matrici chiave, le tipiche sensibilità analitiche e i valori di riferimento richiesti



## CAMPAGNE DI PRELIEVO E MISURA

**Tab. 5 Sensibilità analitiche e valori di riferimento per le determinazioni radiometriche sulle acque – Radionuclidi soggetti a determinazione diretta**

Radionuclide	Metodo di misura	Sensibilità analitica in	Valori di riferimento
Alfa totale	Scintillazione liquida (LSC)		
Beta totale	Scintillazione liquida (LSC)		
Pu-238	Separazione - spettrometria $\alpha$		
Pu-239 <sup>(1)</sup>	Separazione - spettrometria $\alpha$		
Pu-240 <sup>(1)</sup>	Separazione - spettrometria $\alpha$		
Ra-226	Scintillazione liquida (LSC)		
Sr-90	Separazione - conteggio $\beta$ to		
U-238	Scintillazione liquida (LSC)		

(1): somma delle concentrazioni di Pu-239 e Pu

Si ritiene che non sia utile analizzare i ca  
tutti i radionuclidi gamma emettitori sono comun  
e beta con sensibilità analitiche ampiamente suffic  
6).

**Tab. 6 Sensibilità analitiche e valori di riferimento per i radionuclidi non soggetti a determinazione diretta**

Radionuclide	Parametro di riferimento	Sensibilità analitica Bq/kg	Valori di riferimento (classe d'età: adulti) Bq/kg
Am-241	Alfa totale	0,02	0,68
Pu-238	Alfa totale	0,02	0,6
Pu-239	Alfa totale	0,02	0,55
Pu-240	Alfa totale	0,02	0,55
Ra-226	Alfa totale	0,02	0,49
Th-232	Alfa totale	0,02	0,6
U-235	Alfa totale	0,02	2,9
U-238	Alfa totale	0,02	3
C-14	Beta totale	0,1	240
Co-60	Beta totale	0,1	40
Cs-137	Beta totale	0,1	11
Eu-152	Beta totale	0,1	98
Eu-154	Beta totale	0,1	68
H-3 (HTO)	Beta totale	0,1	7600
Ni-63	Beta totale	0,1	910
Sr-90	Beta totale	0,1	4,9

## CAMPAGNE DI PRELIEVO E MISURA

Tab. 7 Sensibilità analitiche e valori di riferimento per le determinazioni in spettrometria gamma su campioni solidi

Radionuclide	Sensibilità analitica (HPGe 30%, V=100 cc, T=1000 min) Bq/kg	Sensibilità analitica (HPGe 30%, V=1000 cc, T=1000 min) Bq/kg	Valori di riferimento Bq/kg
Am-241	10	3	170
Co-60	1,5	0,5	99
Cs-137	1,5	0,5	380
Eu-152	3	1	210
Eu-154	2	1	190
Ra-226 (diretto)	22	7	8
Ra-226 (Pb-214) <sup>(1)(2)</sup>	2,5	1	8
Th-232 (Ac-228) <sup>(3)</sup>	5	1	14
U-235 <sup>(4)</sup>	1,5	0,5	710
U-238 (Th-234) <sup>(5)</sup>	17	7	690

(1): misurato sulla base di Pb-214

(2): in equilibrio con i prodotti di decadimento fino a Po-214

(3): misurato sulla base di Ac-228, in equilibrio con i prodotti di decadimento fino a Tl-208

(4): in equilibrio con i prodotti di decadimento fino a Th-231

(5): misurato sulla base di Th-234, in equilibrio con i prodotti di decadimento fino a U-234

# Suolo e matrici solide assimilate



## CAMPAGNE DI PRELIEVO E MISURA

**Tab. 8 Sensibilità analitiche e valori di riferimento per le determinazioni in spettrometria alfa su campioni solidi**

Radionuclide	Tecnica	Sensibilità analitica Bq/kg	Valori di riferimento Bq/kg
Pu-238	Spettrometria alfa	0,1	0,60
Pu-239	Spettrometria alfa	0,1	0,55
Pu-240	Spettrometria alfa	0,1	0,55

La tabella 9 riporta invece il confronto tra la sensibilità analitica della misura di attività beta.

**Tab. 9 Sensibilità analitiche per le misure di attività beta residua e valori di riferimento per i radionuclidi beta emettitori**

Radionuclide	Parametro di riferimento	Sensibilità analitica Bq/kg	Valori di riferimento Bq/kg
C-14	Beta residuo	200	63000
H-3	Beta residuo	200	860000
Ni-63	Beta residuo	200	120000
Sr-90+ <sup>(1)</sup>	Beta residuo	200	1100

(1): in equilibrio con il prodotto di decadimento Y-90



## Commento finale...

- Molti altri contenuti sono presenti sul report: in questa presentazioni sono stati mostrati solo alcuni dei principali risultati. Mancano in particolare la discussione e la giustificazione di alcune delle scelte effettuate, che sarebbe stato troppo lungo trattare
- Grazie a tutti quanti hanno collaborato