

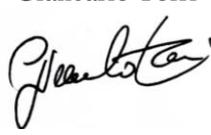
**ISPRA**Istituto Superiore per la Protezione
e la Ricerca AmbientaleDipartimento nucleare, rischio
tecnologico e industrialeMINISTERO DELL'AMBIENTE
E DELLA TUTELA DEL TERRITORIO E DEL MARE

Direzione per le valutazioni ambientali

Convenzioni tra ISPRA e ARPA, APPA, l'ENEA-INMRI, CRI, ISS nell'ambito della Convenzione del 29.12.2006 MATTM-ISPRA avente per oggetto "Supporto tecnico alla DSA all'elaborazione di linee guida ed indirizzi metodologici", linea di attività "Prevenzione dai rischi dell'esposizione a radiazioni ionizzanti", tematica "Implementazione di un sistema nazionale di monitoraggio della radioattività ambientale"

Task 01.02.04

Caratterizzazione radiometrica di siti contaminati

Rev. 0		
Soggetti partecipanti	Verifica Coordinatore task (data e firma)	Approvazione (ISPRA) (data e firma)
ARPA Piemonte	30/04/2014 ARPA Piemonte Mauro Magnoni 	05/05/2014 ISPRA Giancarlo Torri 
ARPA Toscana		
ARPA Molise		
ARPA Sardegna		
ARPA Lombardia		

Note

Revisioni

n.	data	Oggetto modifica

L'Istituto Superiore per la Protezione e la Ricerca Ambientale (ISPRA), le Agenzie Regionali per la Protezione dell'Ambiente (ARPA), le Agenzie Provinciali per la Protezione dell'Ambiente (APPA) e le persone che agiscono per loro conto sono responsabili per l'uso che può essere fatto delle informazioni contenute in questo documento.

Autori

Mauro Magnoni (ARPA Piemonte)
Silvia Bucci (ARPA Toscana)
Massimo Cappai (ARPA Sardegna)
Claudio Cristofaro (ARPA Molise)
Rosella Rusconi (ARPA Lombardia)

Sommario

Sommario	4
1 INTRODUZIONE	6
1.1 Premessa.....	6
1.2 Struttura del documento	6
2 LA PIANIFICAZIONE DELL'INDAGINE	8
2.1 Scopo dell'indagine.....	8
2.2 Origine della contaminazione.....	8
2.3 Radionuclidi coinvolti	9
2.4 Obiettivi in termini di sensibilità analitica	13
<i>Valori di riferimento per i materiali solidi</i>	13
<i>Valori di riferimento per le acque</i>	15
2.5 Criteri di scelta tra misure in campo e laboratorio	15
2.5.1 Misure in campo: tecniche di misura.....	16
2.5.2 Misure in laboratorio: tecniche di misura.....	17
<i>Spettrometria gamma</i>	17
<i>Misura della concentrazione di isotopi del plutonio</i>	19
<i>Misura della concentrazione degli isotopi del radio e dell'uranio</i>	19
<i>Misura della concentrazione di stronzio 90</i>	19
2.6 Definizione del piano di monitoraggio e incertezza di campionamento	20
2.6.1 Criteri di scelta per i piani di campionamento.....	21
3 MISURE DIRETTE IN CAMPO.....	23
3.1 Piano di monitoraggio	23
3.1.1 Definizione dei punti di misura	23
3.1.2 Scelta della tipologia di strumentazione.....	23
3.1.3 MDR e MAR.....	24
3.2 Misura del rateo di dose	24
3.2.1 Aspetti operativi	24
3.2.2 Strumentazione: caratteristiche e prestazioni	25
3.2.3 Stima MDR.....	26
3.3 La spettrometria gamma in campo	26
3.3.1 Aspetti operativi e strumentazione	28
3.3.2 Caso studio: sorgente puntiforme posta a una data profondità.....	29
3.3.3 Caso studio: materiale radioattivo contaminato interrato a una data profondità.....	32
4 CAMPAGNE DI PRELIEVO E DI MISURA	35
4.1 Aria ed atmosfera	36
4.2 Acque (superficiali e di falda)	36
4.3 Suolo e matrici assimilate (terreni/sedimenti, sedimenti superficiali, top soil).....	37
5 CONCLUSIONI.....	40
5.1 Valutazioni generali di contaminazione	40
5.2 Considerazioni dosimetriche	40
6 APPENDICE – SPETTROMETRIA GAMMA IN SITU.....	43
6.1 Calcolo della concentrazione di attività e delle MAR.....	43
7 BIBLIOGRAFIA.....	48

ACRONIMI

APAT – Agenzia per la Protezione dell’Ambiente e per i Servizi tecnici (ora ISPRA)

APPA – Agenzie per la protezione dell’ambiente delle province autonome

ARPA, ARTA – Agenzie regionali per la protezione dell’ambiente

CE – Commissione Europea

CNR – Consiglio Nazionale delle Ricerche

CRI – Croce Rossa Italiana

DBRad – Data Base di radioattività ambientale

DSA – Direzione per la Salvaguardia Ambientale

EML – Environmental Measurements Laboratory

EN – Norme Europee

ENEA – Ente per le Nuove Tecnologie, l’Energia e l’Ambiente

EPA – Environmental Protection Agency

INMRI – Istituto di Metrologia delle Radiazioni Ionizzanti

IRSA – Istituto di Ricerca Sulle Acque

ISO – International Organization for Standardization

ISPRA – Istituto Superiore per la Protezione e la Ricerca Ambientale

ISS – Istituto Superiore di Sanità

LIMS – Laboratory Information Management System,

MATTM – Ministero dell’Ambiente e della Tutela del Territorio e del Mare

MIDRad – Modulo Interscambio Dati di Radioattività

NORM – Naturally Occurring Radioactive Materials

RADIA – Sistema di trasferimento e archiviazione dati di radioattività ambientale

REM DB– Radioactivity Environmental Monitoring Data Base della Commissione Europea presso il Joint Research Center di Ispra (VA)

RESORAD – REte nazionale di SORveglianza della RADioattività ambientale

SINA – Sistema Informativo Nazionale Ambientale

SSNTD’s - Rivelatori a stato solido di tracce nucleari

UNI – Ente Nazionale Italiano di Unificazione

1 INTRODUZIONE

1.1 Premessa

La presente pubblicazione tratta della contaminazione di siti industriali o comunque di aree limitate, sia urbane che naturali, del territorio. Sono quindi escluse le problematiche relative alla contaminazione globale dell'ambiente derivante da deposizioni su scala continentale (incidenti a centrali nucleari, tipo Chernobyl) o planetaria (fallout da test nucleari).

Il problema della caratterizzazione dei siti contaminati è una questione di estrema attualità e complessità. Il coinvolgimento delle Agenzie su questi temi è trasversale su tutte le tematiche ambientali, anche se nella maggioranza dei casi si ha a che fare con contaminazioni dove la componente chimica è quella preponderante. I siti industriali dismessi e le aree soggette a smaltimenti illeciti di rifiuti di provenienza sia urbana che industriale sono esempi tipici di questi contesti. E' tuttavia abbastanza raro imbattersi in estese contaminazioni di tipo radioattivo, anche perché l'impiego di queste sostanze, è da molto tempo soggetto a una rigida regolamentazione sia a livello nazionale che internazionale. Per quanto riguarda l'Italia, l'attuale legge in vigore, cioè il Decreto Legislativo 230 del 1995, pur essendo ormai un po' datato non è stato il primo atto legislativo a normare la materia, ma è intervenuto ad aggiornare criteri di protezione radiologica già da tempo consolidati: il D. Lgs. 230/95 è infatti andato a sostituire una legge di molto precedente, il DPR 185 del 1964 che aveva assicurato negli anni passati un buon livello di radioprotezione.

La situazione tipica in cui ci si trova ad operare nei siti contaminati, così come sono comunemente intesi, non è tuttavia quella in cui si è ha una chiara evidenza di un inquinamento radioattivo, quanto piuttosto quella ove la radioattività può essere una delle componenti presenti, accanto a molte altre, e che quindi aspetta di essere rivelata ed eventualmente caratterizzata. 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.

Le fonti di contaminazione radioattiva che possono aver interessato siti industriali ed aree dismesse in varie parti del Paese sono diverse. Infatti, anche non considerando tra le possibili fonti di contaminazione quella legata al ciclo del nucleare dal momento che la gestione di questo tipo di rifiuti è soggetta ad una rigida regolamentazione, restano tuttavia molte altre attività che, gestite in modo approssimativo, possono aver determinato diffuse contaminazioni radioattive. L'impiego della radioattività in ambito industriale e sanitario ha infatti condotto alla produzione e alla commercializzazione di moltissimi dispositivi e prodotti contenenti radioisotopi che non sempre sono stati soggetti a corrette procedure di smaltimento. Anche lavorazioni industriali di sostanze contenenti radionuclidi naturali può generare residui e reflui in cui i livelli di concentrazione di radioattività naturale possono essere considerevolmente elevati e pertanto fonti di rischio ambientale e radiologico: è noto come la contaminazione da NORM (Natural Occurring Radioactive Materials) abbia interessato aree molto vaste in prossimità di installazioni della grande industria chimica (si ricordino, ad esempio, i depositi di fosfogessi a Marghera e a Crotone) e, su scala più limitata, anche in altri siti. Non si deve infine dimenticare la questione degli smaltimenti illeciti di sostanze di ignota provenienza; infatti, per quanto l'evocazione dello smaltimento criminale di rifiuti radioattivi non abbia finora ottenuto riscontri oggettivi, nonostante le dichiarazioni di vari collaboratori di giustizia, essa resta tuttavia un'eventualità che non può essere a priori esclusa.

1.2 Struttura del documento

Il documento consta di 5 capitoli, compresa questa introduzione, più un'appendice bibliografica. Il capitolo 2 riguarda alcuni aspetti generali di programmazione dell'indagine, con una breve discussione delle particolarità che devono essere tenute in conto nei vari casi che si possono concretamente presentare: si va dalla considerazione sui radionuclidi potenzialmente coinvolti, agli obiettivi di sensibilità analitica richiesti, per arrivare infine alle modalità di programmazione vera e propria dell'indagine. In particolare vengono toccati questi punti:

- lo scopo dell'indagine
- l'origine della contaminazione
- i radionuclidi coinvolti

-
- la scelta se definire un piano di monitoraggio in campo dei livelli di radiazione e/o se stabilire un programma dettagliato di campionamento di matrici con successiva analisi
 - i criteri che dovrebbero essere seguiti per la programmazione operativa dell'indagine.

Il capitolo 3 tratta delle misure in campo. In esso si discutono in che modo le tecniche di misura in campo della radioattività e delle radiazioni possono essere impiegate per la valutazione di una contaminazione radioattiva. In particolare si approfondiscono la spettrometria gamma in campo e le misure di rateo di dose in aria.

Nel capitolo 4 si passa invece a discutere di come affrontare il problema della contaminazione radioattiva di un sito mediante l'effettuazione di un piano di campionamento di matrici ambientali ed eventualmente alimentari. In questo caso, i problemi da trattare sono sia la scelta delle matrici che delle tecniche di misura. Lo scenario di riferimento, cioè l'origine e le caratteristiche della contaminazione, influenzeranno ovviamente in maniera decisiva le scelte da fare. In un documento metodologico come questo, non potendo entrare ovviamente nei dettagli dei vari scenari possibili, ci si limiterà quindi a dare delle indicazioni di generali che dovranno necessariamente essere più adattate ai casi concreti. Di particolare importanza, in questi contesti, soprattutto se l'area da investigare è molto ampia, è l'individuazione di tecniche di *screening*, che consentano di monitorare un'area vasta in un tempo relativamente breve e con costi contenuti.

Infine, nel conclusivo capitolo 5 si tratta della valutazione complessiva di contaminazione, con in particolare dei cenni sulle valutazioni dosimetriche.

2 LA PIANIFICAZIONE DELL'INDAGINE

La pianificazione dell'indagine è un'attività di fondamentale importanza per la riuscita e il completo raggiungimento degli obiettivi. Il contesto ambientale e/o industriale in cui si trova un sito con contaminazione radioattiva influenza infatti in modo decisivo le modalità di intervento. Una attenta fase analitica di studio del contesto è perciò indispensabile affinché si giunga a una programmazione adeguata ed efficace sia in termini di efficacia delle risposte che l'indagine stessa è chiamata a dare, che di efficiente utilizzo delle risorse a disposizione.

2.1 Scopo dell'indagine

La caratterizzazione radiometrica di un sito contaminato è un argomento che, enunciato in modo astratto, rischia di essere difficile da trattare. Infatti, non solo gli scenari che è possibile immaginare sono innumerevoli, ma gli scopi per cui si deve procedere a una tale caratterizzazione possono influenzare in modo decisivo l'approccio. E' quindi molto importante, prima di accingersi a delineare un possibile piano di lavoro per la caratterizzazione di un sito contaminato, avere ben chiaro qual è l'obiettivo dell'indagine. Vi può essere infatti il caso in cui lo scopo dell'indagine è quello di verificare se un sito sia effettivamente contaminato da sostanze radioattive a seguito di un deliberato e illecito smaltimento. In questo caso, ad esempio, si dovrà programmare un'indagine in cui le sensibilità analitiche devono essere spinte al massimo perché lo scopo non è tanto quello di valutare il rischio radiologico, bensì quello di dimostrare appunto l'esistenza di un illecito. Viceversa, se ci si trova in una situazione in cui la conoscenza delle fonti di contaminazione è completamente nota, lo sforzo principale andrà indirizzato verso la valutazione, il più possibile accurata, delle caratteristiche della distribuzione nello spazio e anche nel tempo (con magari anche valutazioni retrospettive ed estrapolazioni nel futuro) della contaminazione stessa: il tutto finalizzato a una valutazione dosimetrica che sia in grado di dare una stima del rischio radiologico. E' evidente che, accanto a queste due condizioni, per così dire, estreme, si possono ipotizzare tutta una serie di situazioni intermedie. E' in ogni caso molto importante, prima di incominciare a delineare i piani di campionamento e misura, avere ben chiaro lo scopo e gli obiettivi dell'indagine: una scarsa chiarezza su questi aspetti può influenzare infatti negativamente l'esito dello studio e/o a condurre a un non ottimale utilizzo delle risorse disponibili, sia umane che strumentali.

2.2 Origine della contaminazione

L'origine della contaminazione è un aspetto di estrema importanza, la cui conoscenza influenza anche le modalità di esecuzione dell'indagine. La conoscenza dell'origine di una contaminazione radioattiva consente infatti spesso di conoscere o ipotizzare con ragionevole certezza, le caratteristiche radiometriche della contaminazione stessa. E' però difficile fare un elenco esaustivo delle varie possibili fonti di contaminazione radioattiva di un generico sito. In molti casi poi l'origine della contaminazione non è conosciuta ed è anzi l'indagine stessa che deve aiutare a comprenderne l'origine.

Una dispersione incontrollata di sostanze radioattive che vada poi a contaminare un'area vasta può aver luogo a seguito di eventi incidentali e impreveduti che coinvolgono siti o installazioni dove sono stoccate, utilizzate o manipolate sostanze radioattive. In questi casi è spesso possibile avere subito o in tempi brevi delle informazioni, almeno qualitative, sulla natura della contaminazione. Le installazioni nucleari, i centri ospedalieri, diagnostici o di ricerca, per citare solo alcuni dei tipici utilizzatori/detentori di sostanze radioattive, sono tutte entità per le quali sono o dovrebbero essere note le caratteristiche radiometriche delle sostanze ivi presenti. Più rari sono i casi in cui installazioni di questo tipo diano luogo a contaminazioni a seguito dello scarico autorizzato e programmato in ambiente di sostanze radioattive: di solito, in questi casi, i livelli di concentrazione non sono molto elevati e quindi difficilmente si possono determinare contaminazioni ambientali significative.

Contaminazioni o sospetti di contaminazioni radioattive si possono avere presso installazioni industriali che in passato erano coinvolte in attività, più o meno lecite, di smaltimento dei rifiuti di origine industriale: in questi casi lo smaltimento improprio di sostanze radioattive è spesso evocato anche se in questi casi è sempre molto difficile ottenere poi riscontri oggettivi.

L'origine di una contaminazione radioattiva in ambiente in una situazione in cui si ipotizza o sono state accertate attività illecite in merito allo scarico di rifiuti può essere legata ad una o più delle seguenti cause:

- 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;
- 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);
- Traffico o smaltimento di prodotti o residui derivanti da particolari attività lavorative implicanti l'uso di materiali radioattivi di origine naturale (NORM);
- Traffico o smaltimento di materiali del ciclo del combustibile nucleare

L'origine di queste materie radioattive, siano esse sorgenti sigillate o materiale contaminato, si può ricondurre principalmente ai seguenti processi:

- ciclo del combustibile nucleare, dall'estrazione dei minerali uraniferi fino allo smantellamento di impianti nucleari;
- 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);
- 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.);
- 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);
- 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);
- attività di ricerca scientifica;
- 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).

2.3 Radionuclidi coinvolti

L'identificazione dei radionuclidi coinvolti è, dal punto di vista tecnico, la questione principale da definire in sede di pianificazione. La natura dei radionuclidi stessi nonché il loro stato fisico (solido, liquido o gassoso) influenzano in modo decisivo l'effettuazione dell'indagine: da essa infatti dipendono, i protocolli di prelievo, la scelta delle tecniche di misura da impiegare, nonché i criteri di valutazione complessiva. Tuttavia non sempre purtroppo, per ovvi motivi, è possibile conoscere *a priori* quali radionuclidi siano effettivamente presenti in un sito contaminato. Nei casi in cui non si abbiano dunque informazioni precise sullo scenario di contaminazione e si debba quindi procedere "alla cieca", si può operare una selezione di radionuclidi sulla base di considerazioni di carattere generale. Si possono così definire dei "radionuclidi di riferimento" che, per varie ragioni, possono essere stati dispersi nell'ambiente.

La tabella che segue (Tab. 1), costruita a partire da alcuni documenti pubblicati dall'Agenzia Internazionale per l'Energia Atomica (IAEA 1998; IAEA 2008; IAEA 2009) e dall'Unione Europea

(EC 1999) presenta un elenco dei più importanti radionuclidi utilizzati in medicina, nell'industria o nella ricerca e di quelli legati al ciclo del combustibile nucleare; l'elenco è limitato ai radionuclidi con tempo di dimezzamento fisico (tempo necessario affinché la quantità di radioattività si riduca ad $\frac{1}{2}$ del valore iniziale) superiore a 5 anni, che sono gli unici che si ipotizza possano ancora essere presenti in quantità significative dopo 20 anni o più dalla loro produzione.

Tab. 1 Alcuni importanti nuclidi utilizzati in medicina, nell'industria e nella ricerca o legati al ciclo del combustibile nucleare

RADIONUCLIDE	TEMPO DI DIMEZZAMENTO FISICO	PRINCIPALI EMISSIONI RADIOATTIVE	PRINCIPALI APPLICAZIONI				
			INDUSTRIALE	INDUSTRIALE NORM	SANITARIA	RICERCA	ENERGIA NUCLEARE
Americio 241 (Am-241)	432,6 a	□□□□	+				+
Calcio 41 (Ca-41)	1,03 x 10 ⁵ a	X					+
Californio 252 (Cf-252)	2,65 x 10 ⁸ a	□	+				
Carbonio 14 (C-14)	5,73 x 10 ³ a	□			+	+	+
Cesio 135 (Cs-135)	2,3 x 10 ⁶ a	□					+
Cesio 137 (Cs-137)	30,08 a	□	+				+
Cloro 36 (Cl-36)	3,01 x 10 ⁵ a	□				+	+
Cobalto 60 (Co-60)	5,27 a	□	+				+
Curio 243 (Cm-243)	29,1 a	□					+
Curio 244 (Cm-244)	18,1 a	□					+
Europio 152 (Eu-152)	13,5 a	□					+
Europio 154 (Eu-154)	8,6 a	□					+
Iodio 129 (I-129)	1,57 x 10 ⁷ a	X, □					+
Nettunio 237 (Np-237)	2,14 x 10 ⁶ a	□□□□					+
Nichel-59 (Ni-59)	7,6 x 10 ⁴ a	X					+
Nichel-63 (Ni-63)	100,1 a	□					+
Niobio 94 (Nb-94)	2,03 x 10 ⁴ a	□					+
Plutonio 238 (Pu-238)	87,7 a	□	+				+
Plutonio 239 (Pu-239)	24110 a	□	+				+
Plutonio 240 (Pu-240)	6561 a	□					+
Plutonio 241 (Pu-241)	14,29 a	□□□□					+
Plutonio 242 (Pu-242)	3,75 x 10 ⁵ a	□					+
Radio 226 (Ra-226)	1600 a	□□□□	+	+			
Selenio 79 (Se-79)	2,95 x 10 ⁵ a	□					+
Stronzio 90 (Sr-90)	28,9 a	□	+				+
Tecnezio 99 (Tc-99)	2,11 x 10 ⁵ a	□					+
Torio 232 (Th-232)	1,4 x 10 ¹⁰ a	□	+	+			
Trizio (H-3)	12,3 a	□	+			+	+
Uranio 235 (U-235)	7,04 x 10 ⁸ a	□□□□					+
Uranio 238 (U-238)	4,47 x 10 ⁹ a	□		+			+

Per quanto riguarda i rifiuti legati al ciclo del combustibile nucleare è prassi corrente sia a livello nazionale che internazionale scegliere radionuclidi ‘spia’ delle presenze di situazioni di contaminazione selezionati tra quelli presenti con maggiore probabilità e che siano contemporaneamente di facile determinazione analitica: tipicamente si tratta di gamma emettitori come cesio 137, cobalto 60, europio 152, europio 154 (IAEA 2009, ISO 21238). Procedure analitiche più complesse ed onerose, come quelle per la ricerca diretta di radionuclidi alfa e beta emettitori, sono di norma limitate ad un numero ridotto di campioni e parametri (come ad esempio gli isotopi del plutonio, di particolare rilevanza strategica e radioprotezionistica), selezionati secondo il duplice criterio della rappresentatività rispetto alla situazione sotto indagine e della fattibilità pratica del piano.

Per quanto riguarda i rifiuti di origine diversa dal ciclo del combustibile nucleare si può fare utile riferimento all’esperienza sia nazionale che internazionale in materia di produzione di rifiuti radioattivi e di bonifica di siti contaminati; i radionuclidi in assoluto più ricorrenti sono, in questo caso, elementi delle serie radioattive naturali di uranio e torio (industrie NORM), radio 226 (sia da industrie NORM che a seguito del vasto impiego che si è fatto di questo radionuclide nella prima metà del XX secolo per la produzione ad esempio di dispositivi sanitari), americio 241, cesio 137, cobalto 60 e stronzio 90 (tra i principali radionuclidi utilizzati in ambito industriale).

In considerazione di quanto appena riportato e della necessità di proporre un piano d’indagine realmente attuabile è stata selezionata una breve lista di radionuclidi e parametri analitici indicatori della presenza di radioattività (Tabella 2) che saranno oggetto di determinazioni analitiche dirette; eventuali approfondimenti saranno decisi sulla base dell’esito delle misure effettuate.

Tab. 2 Radionuclidi e parametri analitici oggetto di determinazione analitica

RADIONUCLIDE / PARAMETRO ANALITICO	MATRICE
Alfa totale ⁽¹⁾	Campioni liquidi
Beta totale ⁽¹⁾	Campioni solidi e liquidi
Am-241	Campioni solidi
Co-60	Campioni solidi
Cs-137	Campioni solidi
Eu-152	Campioni solidi
Eu-154	Campioni solidi
K-40 (indicatore ambientale)	Campioni solidi
Pu-238	Campioni solidi e liquidi
Pu-239 + Pu-240	Campioni solidi e liquidi
Ra-226	Campioni solidi e liquidi
Sr-90	Campioni liquidi
Th-232	Campioni solidi
Uranio	Campioni solidi e liquidi

(1) : nel caso dei campioni liquidi le misure di attività alfa e beta totale consentono di valutare anche quantitativamente la presenza di tutte le specie radioattive, e nello specifico anche di quelle riportate in tabella

Limitate contaminazioni ambientali possono talvolta darsi durante lo smantellamento di capannoni industriali a causa della presenza, non adeguatamente gestita, di dispositivi contenenti sostanze radioattive (rivelatori di fumo, parafulmini, ecc.).

Un altro tipico caso di contaminazione ambientale da radionuclidi può darsi laddove operano o hanno operato installazioni industriali di vari comparti produttivi (chimico, metallurgico, edilizio, ecc.) che, impiegando nei propri processi industriali materiali contenenti radioattività naturale, hanno generato come scorie e rifiuti del materiale in cui la radioattività naturale, inizialmente presente in modeste quantità, si è concentrata considerevolmente: si tratta dei cosiddetti NORM (Natural Occurring Radioactive Materials).

Un caso particolare sono infine le fonderie, sia di metalli ferrosi che non ferrosi (alluminio, ad esempio). Sono ben noti infatti i diversi casi di contaminazione generati dall'accidentale fusione di sorgenti radioattive "nascoste" nei carichi di rottame in ingresso. In queste situazioni di solito si ha a che fare con una pesante contaminazione all'interno del perimetro del sito industriale, mentre più raro, anche se non da escludere, sono le contaminazioni ambientali più estese. L'esperienza, almeno in Italia, ha finora mostrato che questi tipi di contaminazione sono principalmente dovute ad un singolo radionuclide (nella maggioranza dei casi, il Cs-137).

2.4 Obiettivi in termini di sensibilità analitica

Gli obiettivi dell'indagine in termini di sensibilità analitica sono strettamente connessi allo scopo dell'indagine stessa. E' evidente che se il principale obiettivo è quello di verificare un eventuale illecito (smaltimento illegale in discariche, dispersione dolosa nell'ambiente di radionuclidi, ecc.) le tecniche di misura che verranno scelte allo scopo dovranno essere spinte al massimo della sensibilità. Viceversa, se invece la preoccupazione è essenzialmente di tipo radioprotezionistico gli obiettivi in termini di sensibilità analitica possono essere scelti in modo più oggettivo, non dipendente cioè dai limiti di sensibilità delle tecniche di misura che si hanno a disposizione. A questo proposito si può fare riferimento al criterio di non rilevanza radiologica, introdotto dalla Direttiva Euratom 29/1996 e inserito nel corpus giuridico italiano nell'allegato I del D. Lgs. 230/1995. Tale criterio stabilisce infatti che al di sotto del valore di dose efficace annua pari a 10 μ Sv, qualunque attività, sia essa una pratica o un intervento, "escono" per così dire dal sistema regolatorio. In altri termini, se questo limite non viene superato, le attività in questione possono essere svolte senza alcun pregiudizio per la salute pubblica e l'igiene ambientale e quindi senza che debba essere posta in essere alcuna precauzione radioprotezionistica.

L'applicazione di questo concetto al caso di una contaminazione radioattiva ambientale può poi tradursi nella definizione e nell'adozione di limiti derivati in termini di concentrazione di attività delle varie matrici, detti anche Livelli di Allontanamento (*Clearance levels*, CL) Come utile guida in questi casi ci si può senz'altro riferire alla pubblicazione tecnica della Commissione Europea *Radiation Protection 122* (EC, 2000) che elenca per diverse matrici e radionuclidi i valori dei CL.

In ogni caso, l'obiettivo in termini di sensibilità analitica della campagna di misure deve essere dimensionato sia rispetto alle potenzialità analitiche effettivamente disponibili che alla rilevanza radiologica della eventuale contaminazione. Premesso infatti che lo smaltimento in ambiente, in qualunque concentrazione, di una sostanza radioattiva (con emivita superiore ai 75 giorni) rappresenta un illecito, l'obiettivo di identificare qualunque tipo di smaltimento a prescindere dai valori di radioattività coinvolti non è di fatto praticabile per insuperabili limitazioni metodologiche. Non si deve inoltre dimenticare che la radioattività è anche un fenomeno naturale ed in alcuni casi (come ad esempio per gli isotopi dell'uranio ed il radio-226 e dei loro prodotti di decadimento) i livelli di riferimento rispetto ai quali valutare eventuali scostamenti dovuti ad atti illeciti devono necessariamente tenere conto del livello del fondo ambientale.

Valori di riferimento per i materiali solidi

I Livelli di Allontanamento (CL) definiti nella Pubblicazione RP122 (EC, 2000) sono stati pensati non per situazioni definibili come 'interventi' a seguito di incidenti, per le quali possono essere ritenuti accettabili obiettivi più elevati in termini di dose, ma per situazioni ordinarie e quindi garantiscono obiettivi di dose assolutamente cautelativi ed identificabili con il livello corrispondente alla cosiddetta 'non rilevanza radiologica' (10 microSievert per anno).

Nello specifico, i CL sono calcolati utilizzando tra l'altro, sotto ipotesi ampiamente cautelative, i seguenti scenari di riferimento riconducibili anche alla situazione sotto indagine:

- inalazione di polveri contaminate da parte di un bambino, che per un anno intero (8760 ore/anno) inal polveri costituite al 10% dal materiale radiocontaminato stoccato in una discarica;
- ingestione di polveri da parte di un bambino, che ingerisca ogni anno 100 grammi di polveri radiocontaminate mentre gioca sopra un sito costituito interamente da materiale contaminato;
- esposizione di un lavoratore (1800 ore/anno) che lavori a tempo pieno sopra una discarica che contiene il 10% di materiale radiocontaminato.

Per ciascun radionuclide il livello di clearance (CL, espresso come concentrazione di attività) rappresenta la concentrazione di attività che darebbe luogo ad una dose di radiazioni pari o inferiore a 10 microSievert/anno relativamente allo scenario che risulta essere il più critico tra quelli sopra riportati. Il valore di 10 microSievert/anno è generalmente assunto come corrispondente alla non rilevanza radiologica del problema (si consideri anche che il livello di fondo della radioattività naturale in ambiente, variabile da luogo a luogo, è comunque dell'ordine di 2400 microSievert/anno). Pertanto al di sotto della soglia definita dai CL la radioattività è considerata 'non pericolosa' per l'uomo.

Metodi analitici che garantiscano la possibilità di misurare livelli di radioattività pari a frazioni dei CL possono essere ritenuti adeguati dal punto di vista della protezione.

La tabella 3 riporta i livelli di clearance ed il valore tipico del fondo ambientale, quando presente, per i radionuclidi già riportati in tabella 2 e per alcuni beta emettitori di particolare interesse. I valori degli intervalli delle concentrazioni di attività dei radionuclidi assunti come valori di fondo, presentati nella tabella, sono quelli tipici riscontrati in Italia e sono puramente indicativi; nei casi concreti andranno quindi puntualmente verificati anche perché, per molti radionuclidi, la variabilità dei livelli di fondo sul territorio nazionale è particolarmente elevata.

Tab. 3 Valori di riferimento (derivati dai livelli di clearance) e intervalli di valori in natura per alcuni radionuclidi in materiali solidi (terreni e sedimenti)

RADIONUCLIDE	VALORI DI RIFERIMENTO BQ/KG	INTERVALLO DI VALORI DI FONDO BQ/KG
Am-241	170	normalmente assente
C-14	63000	10 – 200 ⁽¹⁾
Co-60	99	normalmente assente
Cs-137 ⁽²⁾	380	5 - 500 ⁽²⁾
Eu-152	210	normalmente assente
Eu-154	190	normalmente assente
H-3	860000	non disponibile
Ni-63	120000	normalmente assente
Pu-238	150	< 0,005 – 0,05
Pu-239 ⁽³⁾	140	0,05 – 0,1
Pu-240 ⁽³⁾	140	0,05 – 1
Ra-226+ ⁽⁴⁾	8	< 20 – 60
Sr-90+ ⁽⁵⁾	1100	0,5 – 4
Th-232+ ⁽⁶⁾	14	20 – 50
U-235+ ⁽⁷⁾	710	1 – 3
U-238+ ⁽⁸⁾	690	< 20 – 60

(1): variabile in funzione del contenuto di materia organica

(2): l'ampio intervallo di variabilità dipende fortemente dall'area geografica che si considera: nel Nord Italia le concentrazioni di Cs-137 sono in generale superiori rispetto al Centro e al Sud

(3): somma delle concentrazioni di Pu-239 e Pu-240

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

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

(6): in equilibrio con i prodotti di decadimento fino a Tl-208

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

(8): in equilibrio con i prodotti di decadimento fino a Pa-234

Valori di riferimento per le acque

In questo caso un approccio certamente cautelativo può fare riferimento alla regolamentazione europea (CE 1998) e nazionale sulle acque potabili (D.Lgs. 31 2001) che indicano come valore di parametro per la radioattività nelle acque destinate al consumo umano 0,1 mSv/anno (Dose Totale Indicativa). Questo valore si traduce, secondo le valutazioni dell'Organizzazione Mondiale della Sanità (WHO 1993 e WHO 1996) nei valori di 0,1 a 1 Bq/L rispettivamente per l'attività alfa e beta totale, utilizzate normalmente come parametri di screening. L'Istituto Superiore di Sanità (Risica 2000) ha successivamente pubblicato i valori derivati per i singoli radionuclidi corrispondenti al sopracitato valore di dose totale. Tutti questi valori di riferimento sono riportati nella Tabella 4.

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 ⁽¹⁾ 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 ⁽²⁾
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

2.5 Criteri di scelta tra misure in campo e laboratorio

La prima scelta da fare nella definizione di un piano di monitoraggio di un sito contaminato o di cui si sospetta la contaminazione radioattiva è senz'altro quella di stabilire se si può procedere solo con un piano di misure in campo oppure se è necessario prevedere anche un piano di campionamento articolato di

matrici ambientali e, eventualmente, alimentari. Le due opzioni non sono necessariamente alternative: è infatti possibile, anzi è spesso la regola, che lo studio di un determinato sito contaminato richieda l'esecuzione di entrambe queste modalità di indagine. E' tuttavia utile distinguere a livello metodologico questi aspetti perché tecnicamente presentano delle peculiarità che meritano di essere attentamente valutate.

Le misure in campo hanno l'evidente vantaggio di fornire un immediato risultato e quindi devono sempre essere prese in considerazione ogniqualvolta il "fattore tempo" è importante; non a caso sono proprio le misure in campo quelle che vengono immediatamente attivate in caso di emergenza. Tuttavia, anche senza considerare i casi di emergenza, le misure in campo trovano comunque un vasto impiego come primo monitoraggio di *screening*, preliminare a una più approfondita indagine, soprattutto nei casi in cui la conoscenza dell'origine della contaminazione è sconosciuta; in questi casi le misure in campo svolgono anche la funzione di efficace presidio di radioprotezione, consentendo una prima stima dell'eventuale rischio radiologico a cui possono essere esposti gli operatori addetti alle attività di monitoraggio.

La scelta di effettuare la caratterizzazione di un sito contaminato mediante misure in laboratorio di campioni prelevati in campo può essere dettata da vari motivi che possono essere brevemente riassunti in due casi:

- a) Necessità/utilità di conoscere i livelli e le caratteristiche della contaminazione con maggiore dettaglio, precisione e accuratezza
- b) impossibilità di utilizzare le tecniche di misura diretta in campo a causa delle caratteristiche fisiche intrinseche della contaminazione

Mentre il primo caso si riferisce a situazioni in cui i risultati forniti delle misure in campo, pur essendo in grado di identificare e misurare la contaminazione, non possano fornire risposte completamente soddisfacenti in termini di precisione, accuratezza e completezza, nel secondo caso la scelta è invece obbligata da vincoli di natura tecnica. Per esemplificare questo concetto si può fare riferimento ad un'area in cui si sospetta la contaminazione da plutonio o da uranio impoverito (UI); dal momento che sia il plutonio che l'UI non presentano emissioni gamma sufficientemente intense, qualunque indagine basata su misure dirette in campo, essendo fondata essenzialmente sulla misurazione della radiazione gamma, non sarebbe in grado di dare una risposta definitiva.

La definizione di un piano articolato di campionamento di matrici presenta in generale delle difficoltà e degli oneri maggiori rispetto a un piano di monitoraggio in campo. Nella programmazione dei campionamenti e delle misure può quindi essere utile seguire una strategia per così dire di "approssimazioni successive", soprattutto se l'area da investigare è molto vasta. In questi casi infatti l'esecuzione dettagliata su di un gran numero di campioni di tutte le possibili analisi radioisotopiche può essere estremamente onerosa e richiedere molto tempo. Si deve quindi preferire inizialmente l'effettuazione di una serie di misure relativamente semplici su poche matrici individuate come particolarmente idonee per la loro significatività e/o semplicità di prelievo. Questo specifico tema sarà approfondito nel paragrafo 2.5.2.

2.5.1 *Misure in campo: tecniche di misura*

Per quanto riguarda le tecniche di misura che possono essere utilizzate per il monitoraggio diretto dei livelli di radiazione in una determinata zona si possono distinguere, grossolanamente, tre diverse tecniche:

- a) misure di contaminazione superficiale (mediante contaminometro (alfa, beta e gamma) o smear test)
- b) misure di rateo di dose gamma
- c) spettrometria gamma in campo

Queste tre tecniche di misura rispondono ovviamente ad esigenze diverse. E' possibile che, in una determinata situazione, tutte e tre queste tecniche di misura possano essere impiegate anche se, in generale, questo non avviene.

In particolare le tecniche di misura della contaminazione superficiale mediante contaminometro sono idonee a verificare la presenza di contaminazione su superfici lisce come pavimenti, banconi, cappe, eccetera, ma sono più difficilmente utilizzabili su vaste superfici rugose mentre sono del tutto inadatte per misure del suolo. Ciò le rende praticamente assai poco consigliabili per impieghi in monitoraggi “outdoor”, anche se in astratto un loro utilizzo potrebbe essere utile: le difficoltà pratiche di misura, dovute alla grande difficoltà di posizionare in modo corretto e riproducibile il sensore rispetto alla superficie di misura ne rendono di fatto assai poco attendibili i risultati, limitando così l’efficacia e l’utilità pratica della misura stessa in queste circostanze. Essendo il presente documento principalmente indirizzato alle modalità di monitoraggio di aree situate in ambienti “outdoor”, non tratteremo dunque in questa sede dell’impiego e delle prestazioni dei contaminometri per la valutazione della contaminazione superficiale.

Per la stima dei livelli di contaminazione superficiale in ambienti industriali (battuti di cemento, asfalto, altre superfici con limitate asperità) può invece essere utile l’impiego della tecnica dello smear test: pur essendo questo un tale metodo di misura piuttosto grossolano, soprattutto se condotto su superfici non completamente lisce, esso è tuttavia in grado di fornire informazioni semi-quantitative che possono talvolta essere di grande utilità per la caratterizzazione radioisotopica della contaminazione superficiale. Ciò può essere fatto sottoponendo il campione di smear test ad analisi di spettrometria gamma con rivelatori al Germanio iperpuro o, se necessario, con altre tecniche radiometriche (alfa/beta totale, misure radiochimiche).

Per quanto riguarda invece le misure di rateo di dose gamma e di spettrometria gamma in campo, esse hanno un ruolo centrale nella caratterizzazione dei siti contaminati: meritano quindi una discussione più approfondita, che sarà svolta, nel prossimo capitolo..

2.5.2 *Misure in laboratorio: tecniche di misura*

Spettrometria gamma

La maggior parte dei radionuclidi potenzialmente presenti dà luogo ad emissioni gamma che possono essere rilevate da appositi spettrometri. La maggior parte dei radionuclidi potenzialmente presenti in ambiente dà luogo ad emissioni gamma che possono essere rilevate dagli spettrometri gamma. Per questo motivo spettrometria gamma con rivelatori al Germanio iperpuro (HPGe) è una tecnica che è ormai diventata uno standard universale per la misura di bassi livelli di radioattività in matrici sia ambientali che alimentari.

L’analisi gamma di laboratorio in particolare offre sensibilità analitiche variabili in funzione del radionuclide e delle condizioni di misura (quantità di campione analizzato e durata della misura). Pur non avendo la rapidità di esecuzione di molti metodi chimici (come ad esempio l’ICP-MS) la tecnica è sufficientemente versatile e, tra i metodi per la determinazione della radioattività, è certamente tra le più rapide ed adeguate per l’esecuzione di campagne di *screening*.

Nell’analisi di un sito contaminato la spettrometria gamma su campioni di suolo o di altre matrici ad esso legate (particolato risospeso, sedimenti, eccetera) è senza dubbio la tecnica fondamentale, in grado di fornire risposte per gran parte degli scenari di contaminazione.

Pochi sono infatti i radionuclidi di rilevanza ambientale e sanitaria che non possono essere misurati mediante questa tecnica e per i quali è quindi necessario procedere ad ulteriori approfondimenti.

Tra i più importanti ricordiamo i vari radioisotopi del plutonio, in quanto emettitori alfa puri (Pu-239, Pu-240, Pu-238), o beta puri (Pu-241) e l’emettitore beta puro Sr-90, un prodotto di fissione altamente radiotossico disperso nell’ambiente a seguito di incidenti nucleari e fallout globale ma utilizzato anche per la costruzione di sorgenti radioattive di solito di attività medio-bassa, diffuse in ambito industriale e di ricerca.

Anche i radioisotopi dell’uranio U-238, U-235, e il Ra-226, pur non essendo classificabili in senso stretto come alfa emettitori puri (hanno infatti essi stessi o i propri prodotti di decadimento in equilibrio secolare, delle deboli emissioni gamma) non possono essere misurati in modo estremamente accurato con la spettrometria gamma. Nella maggior parte dei casi, tuttavia, essa è in grado di fornire utili indicazioni, spesso sufficienti alle richieste di radioprotezione. In particolare, quando le concentrazioni sono

relativamente elevate ($> 80-100$ Bq/kg) si riescono ad ottenere ottimi risultati anche in presenza di situazioni di disequilibrio tra i vari radioisotopi della catena radioattiva: in questi casi infatti è possibile misurare direttamente anche l'U-238 tramite la riga 1001 keV del Pa-234 (in equilibrio secolare con l'U-238); per quanto riguarda il Ra-226 e l'U-235 invece si può procedere alla deconvoluzione del picco che ingloba le emissioni dell' U-235 (185.7 keV) e del Ra-226 (186.0 keV), contestualmente alla valutazione a parte del picco a 143 keV dell'U-235.

Una stima più grossolana dei livelli di concentrazione di U-238 e Ra-226 può anche essere ottenuta piuttosto facilmente sfruttando le emissioni gamma di Pb-214 e Bi-214; la sensibilità di queste misure è buona (si riescono a valutare facilmente concentrazioni di 10 Bq/kg o anche meno) ma si deve essere consapevoli che non possono essere apprezzate per questa via la presenza di eventuali disequilibri tra i radioisotopi della catena.

Metodi radiochimici

Misura della concentrazione di attività alfa e/o beta totale

La misura della concentrazione di attività e alfa e beta totale fa parte di quei metodi di misura che possono essere definiti di *screening*: grazie ad essi di riesce infatti a limitare l'esecuzione di complesse determinazioni radiochimiche allo stretto necessario.

Questo tipo di misure consentono di verificare con elevatissima sensibilità la presenza di livelli anomali di radioattività nelle acque. Impiegando ad esempio la tecnica della scintillazione liquida si possono infatti raggiungere sensibilità molto spinte, inferiori ai livelli di screening raccomandati a livello internazionale (0,1 Bq/L e 1 Bq/L per alfa e beta totale rispettivamente; Linee Guida OMS). E' quindi un metodo particolarmente indicato per campagne su vasta scala che prevedano la misura di molti campioni di acque potenzialmente contaminate. La misura (in scintillazione liquida) dell'attività alfa e beta totale consente in tempi molto brevi di analizzare molti campioni e di selezionare così quelli che effettivamente necessitano di approfondimenti analitici di tipo più sofisticato.

Limitatamente alla componente beta, la misura dell'attività beta totale in campioni solidi (terreni e sedimenti) consente di verificare la presenza di quantità significative di isotopi beta emettitori puri (privi di emissioni gamma) che sono stati ampiamente utilizzati nel passato in ambito nucleare e industriale, principalmente stronzio 90 ma più in generale tutti gli isotopi con emissioni beta utili, già riportati in tabella 1. Il metodo che consente di fare questo tipo di analisi è descritto nella norma ISO 18589-6 del 2009. Il metodo prevede la polverizzazione del campione a 200 μm e la distribuzione dello stesso su un piattello per la misura beta totale, da eseguirsi con un rivelatore a basso fondo.

La sensibilità effettiva di questo tipo di determinazione può essere aumentata grazie alla seguente considerazione: dall'attività beta totale è possibile sottrarre la quota ascrivibile al potassio 40, la cui concentrazione viene determinata per spettrometria gamma; la parte rimanente (attività beta residua) può essere attribuita agli altri nuclidi beta emettitori presenti nel campione, sia naturali che artificiali, e confrontata con i rispettivi livelli di clearance. Nel caso in cui si ricerchino solo radionuclidi artificiali (ad esempio ^{90}Sr) oltre al K-40 andrà sottratto il contributo di tutti gli emettitori beta delle serie naturali del dell'U-238 dell'U-235 e del Th-232, i cui componenti saranno calcolati a partire da misure di spettrometria gamma con rivelatori HPGe.

La misura beta totale residua così ottenuta (che è estremamente più rapida di qualunque metodo radiochimico) può quindi essere eseguita su un numero significativo di campioni, per quanto più limitato rispetto al numero dei campioni analizzati per spettrometria gamma.

Non è invece raccomandata in questo caso la misura dell'attività alfa totale, in quanto caratterizzata da difficoltà tecniche e da sensibilità analitiche inadeguate allo scopo dell'indagine (rispetto ai livelli di clearance): il forte autoassorbimento della radiazione alfa e le connesse difficoltà ad ottenere condizioni di misura riproducibili innalzano infatti le MAR a livelli di solito non soddisfacenti.

Misura della concentrazione di isotopi del plutonio

Questo tipo di misura, che tra quelle normalmente disponibili è in assoluto la più onerosa in termini di impegno di risorse analitiche di laboratorio, può essere eseguita solo su un numero limitato di campioni; essa è comunque giustificata dalla rilevanza non solo radioprotezionistica dell'eventuale smaltimento in ambiente di materiale contaminato da plutonio. Poiché la tecnica è caratterizzata da sensibilità analitiche elevatissime è possibile in questo caso analizzare campioni ottenuti miscelando aliquote provenienti da diversi prelievi (nello specifico, è possibile ad esempio analizzare i 4 campioni relativi ad ogni sondaggio preparando campione composti rappresentativi della contaminazione dell'intera carota), garantendo così una maggiore rappresentatività dei dati analitici ottenuti pur a fronte di sensibilità analitiche elevatissime. Solo nel caso in cui la misura del campione composto dovesse evidenziare anomalie si procederà all'analisi delle singole aliquote.

Misura della concentrazione degli isotopi del radio e dell'uranio

La determinazione degli isotopi del radio e dell'uranio nei campioni solidi (terreni ecc.) non necessita di norma dell'uso di metodi radiochimici in quanto può anche essere effettuata con discreta sensibilità anche tramite spettrometria gamma.

Tuttavia, se per varie ragioni è richiesta una sensibilità più elevata, l'impiego della radiochimica è necessario. Per quanto riguarda l'uranio le tecniche radiochimiche standard prevedono la dissoluzione del campione, la separazione dell'uranio e il successivo conteggio tramite spettrometria alfa. Si è però ormai affermata, in alternativa alla spettrometria alfa, l'impiego della spettrometria plasma-massa (ICP-MS), molto più semplice e veloce e in grado di raggiungere elevate sensibilità non solo per l'U-238 e l'U-235, ma anche per il Th-232.

Per quanto riguarda invece le acque, ove la concentrazione naturale di questi elementi è più bassa, la spettrometria gamma deve essere senz'altro esclusa; può invece essere utilizzata la tecnica della scintillazione liquida combinata a due specifici pretrattamenti che consentono l'estrazione selettiva degli isotopi dell'uranio in un caso e del radon 222 (figlio del radio 226 ed all'equilibrio secolare con questo) nell'altro. Per quanto concerne in particolare l'uranio, la tecnica della spettrometria plasma-massa (ICP-MS), se è nella disponibilità del laboratorio, è senz'altro da tenere presente sia per la rapidità di esecuzione che per le sensibilità raggiungibili. Meno consigliabile è invece la spettrometria alfa, decisamente più onerosa dal punto di vista dell'impegno degli operatori anche se è comunque in grado di fornire ottimi risultati.

Un cenno a parte merita il problema della ricerca di uranio impoverito. In questo caso vanno determinati i rapporti isotopici tra ^{238}U e ^{234}U (o ^{235}U) con la minor incertezza possibile. In questi casi si valuterà l'opportunità di ricorrere a tecniche non radiometriche quale la spettrometria plasma-massa (ICP-MS) per la valutazione del rapporto $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$, in alternativa alla classica spettrometria alfa dove sarà invece valutato il rapporto $^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$.

Misura della concentrazione di stronzio 90

La misura radiochimica dello stronzio 90 è piuttosto laboriosa e comporta la separazione ed il conteggio per mezzo di un contatore beta totale a basso fondo dell'ittrio 90, prodotto di decadimento dello stronzio 90, in equilibrio secolare con il padre. La presenza di interferenti di origine naturale (Bi-210 in particolare) può essere fonte di problemi soprattutto in caso di analisi di campioni di suolo, dove la concentrazione dei radioisotopi naturali è elevata.

D'altra parte il ricorso alla misura diretta dello Sr-90 mediante separazione radiochimica può essere limitato a pochi campioni, se preventivamente si sono effettuate campagne di *screening* utilizzando la tecnica della misura alfa-beta totale in scintillazione liquida (per le acque) e la tecnica della misura alfa-beta residua (per i suoli). Verrà quindi di norma effettuata l'analisi radiochimica dello Sr-90 solo su un sottoinsieme di campioni, selezionato sulla base dei risultati ottenuti nelle misure di *screening*.

2.6 Definizione del piano di monitoraggio e incertezza di campionamento

In generale, nella definizione di ogni piano di monitoraggio, dovrebbe essere tenuta in conto anche la variabilità nel processo di campionamento. In particolare ciò è di fondamentale importanza quando il piano di monitoraggio è finalizzato alla determinazione del valore della contaminazione presente in un dato sito. In questi casi si può dire che il processo di misurazione comprenda anche il campionamento e, per questo motivo, l'incertezza di misura deve tenere conto anche di questo contributo oltre che quello dell'analisi di tipo strumentale. Questa situazione si verifica se il "misurando", ovvero "la quantità che si intende misurare", è relativo alla proprietà/caratteristica di un insieme che il campione intende rappresentare e da cui il campione è stato prelevato, e non al solo campione di laboratorio. Ogni laboratorio, indipendentemente dal settore di indagine in cui opera, si pone il problema di come poter quantificare tale contributo (singolarmente o insieme alla parte analitica). Le stesse norme internazionali (UNI EN ISO/IEC 17025), in merito ai requisiti di competenza dei laboratori di prova, richiedono di considerare il campionamento e di valutarne la variabilità (punto 5.7 della norma ISO). Aver introdotto questo requisito costituisce un elemento di spinta verso la piena considerazione del campionamento nel processo di misura. La contemporanea introduzione di un inciso "se possibile", riferito alla quantificazione della variabilità di campionamento, conferma tuttavia la perdurante difficoltà dei laboratori a rispondere integralmente a questo requisito. Al contempo, norme internazionali o nazionali di recepimento di direttive fanno sempre più riferimento a requisiti di prestazione dei metodi di misura (incertezza obiettivo, ripetibilità, riproducibilità, recupero per un intervallo di concentrazioni, etc.), ma non considerano ancora adeguatamente la fase di campionamento. La vaghezza con cui le norme internazionali affrontano in campo ambientale tale aspetto si ritrova in frasi quali "il metodo di campionamento applicato deve assicurare che il campione aggregato sia rappresentativo per il lotto da controllare" (Direttiva 2003/78/CE, ed ancora ".....il controllo di qualità del campionamento e della manipolazione del campione è considerata, tenendo conto di guide e norme di riferimento internazionali e, dove i dati sono disponibili, dell'incertezza del campionamento e del trasporto" (Decisione della Commissione su monitoraggio chimico e qualità dei risultati analitici in accordo alla Direttiva 2000/60/CE. Il campionamento e la sua variabilità sono rientrati a pieno titolo tra gli aspetti da considerare ma non ci si spinge a definire i requisiti di prestazione accettabili o tollerati e a come quantificarli.

La varianza analitica/strumentale si lega a quella di campionamento sulla base legge della propagazione degli errori. In accordo a tale relazione, l'incertezza di campionamento è definita da IUPAC come "la parte dell'incertezza di misura attribuibile al campionamento". Studi e guide internazionali relativamente recenti, hanno cercato di sistematizzare i possibili approcci alla valutazione dell'incertezza di misura inclusiva del contributo del campionamento e l'approccio empirico (conosciuto anche come empirical, top-down o olistico) è uno di questi. Secondo questo metodo, l'incertezza di misura è valutata senza necessità di identificare e quantificare ogni singolo contributo ma, a seconda del disegno sperimentale e statistico, ma quantificando quattro componenti legate alla ripetibilità e allo scostamento sia analitico che di campionamento. In linea teorica si presenta come un approccio flessibile e con la più ampia applicazione in diversi campi di misura (sia chimica che fisica) e per diverse matrici.

Lo schema più semplice (con campionamenti replicati ad opera di un singolo campionatore) consente la quantificazione della componente di ripetibilità del campionamento, valutando gli effetti casuali della misura. L'analisi replicata di ogni campione prelevato consente di separare, ricorrendo all'ANOVA, i contributi all'incertezza di misura derivanti, rispettivamente, da campionamento ed analisi. Tale metodo può essere applicato con successo e agevolmente nel campo di studi di radioattività ambientale.

Per considerare la componente sistematica della variabilità associata al campionamento bisogna tuttavia fare un passo ulteriore. Tale valutazione risulta generalmente più complessa ed onerosa dovendo ricorrere, ad esempio, a siti di riferimento per il campionamento (analoghi ai materiali di riferimento per l'analisi) e a circuiti d'interconfronto per il campionamento. I risultati di misure eseguite in circuiti d'interconfronto per il campionamento, oltre ad essere la base per valutare la prestazione di diversi operatori, possono essere utilizzati per la stima di incertezza di misura, inclusiva degli effetti sistematici (analisi e campionamento). Recenti esperienze hanno mostrato che il metodo empirico applicato a tale scopo nell'ambito di circuiti

d'interconfronto tra campionatori, opportunamente strutturati, porta a stime dell'incertezza estesa di misura che raddoppia una volta considerato il contributo degli effetti sistematici del campionamento (variabilità tra operatori/campionatori).

La valutazione dell'incertezza di campionamento è un'informazione che è comunque utile ed interessante anche quando il piano di monitoraggio non è tanto finalizzato alla definizione di un valore caratteristico di contaminazione quanto piuttosto a conoscere se la contaminazione o l'anomalia radiometrica siano eventualmente presenti. In questo caso, dal momento che l'incertezza di campionamento influenza l'incertezza complessiva, si dovrà opportunamente tenerne conto nell'ambito della valutazione dei limiti di decisione e di rilevabilità.

2.6.1 *Criteri di scelta per i piani di campionamento*

In questo paragrafo si accenna al problema della definizione del piano di campionamento. Come è già stato accennato, esso dipenderà fortemente dagli obiettivi del monitoraggio. Tuttavia si possono individuare in astratto quattro diversi approcci:

- a) campionamento “a caso” (*haphazard sampling*)
- b) campionamento soggettivo (*judgement sampling*)
- c) campionamento probabilistico (*probability sampling*)
- d) campionamento di ricerca (*search sampling*)

a) Campionamento “a caso” (*haphazard sampling*)

Questo tipo di campionamento si basa sull'assunzione che qualunque punto di campionamento sia equivalente a un altro. Questo approccio favorisce il campionamento in punti e in momenti secondo modalità opportunistiche (campiono dove è più comodo): può quindi dar luogo a distorsioni più o meno accentuate nella stima delle medie dei parametri e delle altre caratteristiche della popolazione. Può quindi essere appropriato solo se si può assumere con ragionevole certezza che la popolazione di riferimento sia completamente omogenea, nel senso che sia la media che la varianza non variano significativamente all'interno della popolazione stessa. Un'assunzione forte di questo genere è tuttavia da considerarsi piuttosto problematica nella maggior parte dei contesti ambientali

b) Campionamento soggettivo

Il campionamento soggettivo consiste nella selezione dei vari campioni da parte dell'operatore secondo un criterio soggettivo basato sul giudizio dell'operatore stesso. Si tratta di un approccio che presuppone e valorizza la professionalità di chi esegue il campionamento. Se l'individuo che adotta questo approccio ha una conoscenza approfondita del problema e un'elevata professionalità, si possono avere stime dei parametri della popolazione anche molto accurati. Può tuttavia accadere anche il contrario, conducendo quindi a gravi distorsioni. In generale un approccio di questo tipo può dunque anche essere accurato ma il grado di accuratezza non può essere stimato in modo quantitativo. Per questi motivi non è in generale raccomandato.

c) Campionamento probabilistico o statistico (*probability sampling*)

Il campionamento statistico si riferisce a un approccio che prevede uno specifico metodo di campionamento casuale (*random sampling*).

Vi sono al riguardo diversi possibili piani di campionamento. Il più semplice è “campionamento semplice causale” (*simple random sampling*), dove il campione viene estratto da una popolazione costituita da N unità in modo tale che ciascuno degli n campioni selezionati ha eguale probabilità di essere estratto. Tale approccio è appropriato per stimare la media e le altre grandezze statistiche se la popolazione non presenta trend, cicli o pattern di contaminazione.

Un'altra scelta un po' più sofisticata è il "campionamento stratificato casuale". Esso presuppone la suddivisione della popolazione da campionare o dell'area di campionamento in M parti o regioni non sovrapposte chiamate appunto strati. All'interno di ciascuno strato si procede poi a campionare secondo le modalità del "campionamento semplice casuale". Un semplice esempio di questa strategia di campionamento è quello di raccogliere campioni di suolo all'interno dell'area di studio in modo casuale; ciascuno di questi campioni costituisce l'unità primaria all'interno della quale può quindi essere estratta una o più aliquote. La suddivisione della popolazione iniziale o dell'area di studio in strati può seguire vari criteri, sia casuali, come nell'esempio sopra richiamato, che dettati da altri criteri giustificati da considerazioni basate su conoscenze a priori.

Un altro sistema è il cosiddetto "campionamento cluster" (*cluster sampling*), utile quando le unità che compongono la popolazione sono "addensate" in cluster. In questo caso si procede a selezionare casualmente il cluster e quindi a campionare tutti gli elementi del cluster stesso.

Infine abbiamo il "campionamento sistematico", che consiste nel campionare a intervalli prestabiliti nel tempo o spazialmente, seguendo una griglia regolare prestabilita. In quest'ultimo caso, all'interno di ciascuna unità della griglia si può poi ad esempio eseguire un normale campionamento casuale (*random sampling*).

d) Campionamento di ricerca (*search sampling*)

Il campionamento di ricerca o *search sampling*, è utile quando l'obiettivo è quello di trovare una fonte di inquinamento o di localizzare *hot spot* di elevata contaminazione. Un esempio di questo tipo di campionamento sono l'uso di rateometri gamma su mezzi aerei per la ricerca di sorgenti disperse in aree vaste o molto vaste. All'interno di questo tipo di campionamento si va, ad esempio, dal monitoraggio di discariche, effettuato a piedi con rateometro gamma, al monitoraggio aereo di vaste o vastissime aree (fino centinaia o migliaia di km²). Un particolare campionamento di ricerca nel caso di una sorgente sotterranea è trattato in dettaglio nel paragrafo 4.3.4

Per una trattazione dettagliata di questi approcci di campionamento si rimanda a testi specifici sull'argomento (si veda ad esempio in bibliografia, Gilbert, 1987).

3 MISURE DIRETTE IN CAMPO

3.1 Piano di monitoraggio

Trattando delle misure in campo ci limiteremo qui a considerare situazioni dove il termine di sorgente è costituito dal suolo o comunque da una superficie calpestabile “solida”, ad esempio di un’area industriale dismessa o un’ampia area naturale o semi-naturale.. Non tratteremo quindi il monitoraggio diretto su superfici acquose (mare, laghi, fiumi) per quanto, in linea di principio, molte delle tecniche qui discusse possano essere utilmente impiegate, sia pure con alcuni importanti modifiche e avvertenze, anche in questi contesti. Il motivo principale di questa scelta sta nel fatto che spesso in acqua i contaminanti sono presenti in concentrazioni relativamente basse, tali quindi da poter essere difficilmente rilevate con misure dirette di radiazione gamma. Le indagini sui corpi idrici, per questi motivi, devono quindi sempre prevedere il prelievo di un campione e la sua analisi in laboratorio e per questo motivo saranno trattate nel seguente capitolo 4.

Nel caso delle misure in campo il piano di monitoraggio sarà anzitutto influenzato dalla geomorfologia del territorio oggetto dell’indagine. Le condizioni più favorevoli saranno evidentemente quelle in cui il territorio da sottoporre ad indagine è completamente pianeggiante. In queste condizioni “di buona geometria” si possono infatti non solo effettuare in modo più agevole, per ovvi motivi, le varie operazioni sperimentali di misura ma, cosa più importante, l’interpretazione del dato è molto più sicura ed univoca dal momento che le condizioni sperimentali si avvicinano molto alle modellizzazioni teoriche che stanno alla base di questo tipo di misure, le quali di solito prevedono o sottointendono, per il termine di sorgente, la condizione di “piano infinito”.

3.1.1 *Definizione dei punti di misura*

La definizione dei punti di misura è strettamente legata agli obiettivi dell’indagine, già discussi nel precedente capitolo 2. Sarà comunque ovviamente influenzata dalle conoscenze *a priori* disponibili. Se ad esempio lo scopo è quello di misurare l’entità della contaminazione dovuta ad uno specifico radionuclide, e se le caratteristiche di questa contaminazione sono già note con buona approssimazione, i punti di campionamento potranno essere definiti in modo non uniforme, privilegiando alcune aree di maggior interesse rispetto ad altre ritenute meno meritevoli di attenzione. Viceversa, se le informazioni disponibili non sono tali da suggerire scelte di campionamento “privilegiate”, l’approccio da seguire sarà quello della definizione di una maglia o reticolo di misura grosso modo regolare, dove verranno effettuati i rilievi radiometrici. A questo proposito si possono distinguere due casi, a seconda che si stiano effettuando dei rilievi per la misura del rateo di dose gamma oppure di spettrometria gamma in campo.

Nel primo caso, soprattutto se lo scopo dell’indagine è quello di individuare delle sorgenti nascoste o eventuali *hot spot*, converrà in generale disegnare un percorso rettilineo da percorrere lentamente (di solito a piedi) e a velocità costante, con il rivelatore sempre acceso, tenuto ad un’altezza di circa 1 m dal suolo. Il percorso, se possibile, dovrà sistematicamente “coprire” tutta l’area di interesse mediante linee parallele aventi tra loro una distanza d prefissata. Il valore di d , sarà scelto in base all’accuratezza con cui si vuole (o si può) condurre l’indagine. Si tenga tuttavia presente che, per un monitoraggio eseguito a piedi, un valore di $d > 20$ m rischia di essere non adeguato per il riconoscimento di anomalie radiometriche, anche di una certa importanza, come verrà mostrato con alcuni semplici esempi al paragrafo 3.2.3.

Viceversa se ci si trova nel secondo caso, cioè della spettrometria gamma in campo oppure si devono eseguire dei rilevamenti di rateo di dose gamma semplicemente per mappare una certa area, converrà stabilire per i rivelatori un punto fisso di misura, mediante la definizione uniforme di un reticolo di passo d all’interno dell’area di monitoraggio, dove d è appunto la distanza minima tra un punto di monitoraggio e l’altro.

3.1.2 *Scelta della tipologia di strumentazione*

E’ già stato anticipato che due sono sostanzialmente le possibili alternative per un monitoraggio della radiazione gamma in campo:

- la misura del rateo di dose

-
- la spettrometria gamma in campo

La scelta tra queste due alternative dipende essenzialmente dagli obiettivi del monitoraggio. Se l'origine della contaminazione e la sua caratterizzazione è già ben nota e non ci sono motivi per sospettare altre fonti di inquinamento, ci si può senz'altro limitare alle misure di rateo di dose gamma, sicuramente molto più veloci e agevoli. Se viceversa invece si ritiene importante un approfondimento, la spettrometria gamma in campo risulta fondamentale. In questo caso può comunque essere utile abbinare i due metodi, eseguendo ad esempio nello stesso punto definito dal reticolo di misura (vedi paragrafo 3.2.1) sia le misure di rateo di dose gamma che le misure di spettrometria gamma in campo.

3.1.3 *MDR e MAR*

Quando si impiega una qualsiasi tecnica di misura è importante conoscerne le prestazioni tecniche, soprattutto in termini di sensibilità di misura. In ambito laboratoristico è ormai piuttosto consolidato l'impiego dei concetti di Soglia di Decisione (*Decision Limit*) e di Limite di Rivelabilità (*Detection Limit*, indicato spesso anche come Minima Attività Rivelabile, MAR) che sono ormai entrati nell'uso comune. La trasposizione di questi concetti alle misure in campo presenta tuttavia qualche difficoltà pratica. Infatti, se in linea di principio è senz'altro possibile trasferire il formalismo utilizzato in ambito laboratoristico anche per le misure in campo, all'atto pratico ci si trova poi in difficoltà poiché spesso non è semplice conoscere la reale varianza dei fenomeni ambientali. Mentre infatti in laboratorio si può riuscire efficacemente a stimare il fondo e il bianco, in campo tutto è molto più difficile. Per questo motivo, in questa pubblicazione, tratteremo del Limite di Rivelabilità per la misura del rateo di dose (MDR, Minima Dose Rivelabile) in modo molto semplificato mentre per quanto riguarda la spettrometria gamma in campo si farà uso del formalismo e dell'approccio della ISO, sia pure con alcuni aggiustamenti e semplificazioni.

3.2 Misura del rateo di dose

La misura della dose gamma in aria in un'area potenzialmente contaminata deve essere finalizzata al monitoraggio del valore di fondo ambientale e consentire la rapida individuazione di incrementi di livelli di radioattività in aria conseguenti a anomalie radiometriche dovute a diverse cause: rilasci accidentali o interramenti di sostanze radioattive, smarrimento sorgenti, eccetera. Le modalità di misura scelte e le tecniche da impiegare dovranno quindi essere in grado di rispondere efficacemente a questo obiettivo.

3.2.1 *Aspetti operativi*

Vi è un'ampia varietà di strumenti disponibili sul mercato per rilevare i tipici livelli ambientali del rateo di dose gamma in campo e sono quasi tutti idonei allo scopo.

Per la misura dei livelli di radiazione gamma emessi dal suolo lo standard di misura generalmente accettato prevede che la sonda sia posta a 1 metro di altezza rispetto alla superficie. Un'altra tipica modalità di misura, usata soprattutto quando si deve valutare un'emissione anomala di un oggetto contaminato o di una sorgente estesa, prevede la cosiddetta "misura a contatto": la sonda viene cioè avvicinata il più possibile all'oggetto (pochi centimetri), evitando però il contatto fisico con l'oggetto onde evitare possibili contaminazioni della sonda stessa; la misura "a contatto" è solitamente affiancata da una analoga misura effettuata ad 1 metro di distanza. L'insieme delle due valutazioni può infatti fornire delle interessanti informazioni per la caratterizzazione della contaminazione, utili soprattutto quando non si ha a disposizione uno spettrometro.

Le modalità di misura con cui eseguire i rilievi di rateo di dose gamma in campo aperto quando non è stata identificato a priori un oggetto che emette radiazioni sono vari, ma si possono distinguere in generale due diversi approcci:

- 1) Misura del rateo di dose "in continuo"
- 2) Misura del rateo di dose mediante integrazione della dose in un dato intervallo di tempo

Nel primo caso il risultato della misura è semplicemente quello che viene letto immediatamente sul display dello strumento. In questi casi occorre fare attenzione alle fluttuazioni che, a seconda dello strumento impiegato, potranno essere anche molto importanti. E' importante dunque conoscere il tempo di integrazione minimo impiegato dallo strumento stesso: di solito è dell'ordine di qualche secondo ed è spesso pre-impostato dal costruttore. Ad ogni modo le misure effettuate con questa modalità sono sempre da ritenersi indicative e scarsamente precise. Molti sono infatti le fonti di incertezza che possono influenzare la misura, non ultimo il fatto che spesso lo strumento non è posizionato in un punto fisso ma viene semplicemente impugnato dall'operatore che sta eseguendo la misura.

Nel secondo caso, opportuno quando si richiede una misura più precisa, il rivelatore viene invece posizionato alla distanza prefissata grazie a un'opportuna attrezzatura (treppiede, tavolo, eccetera) e la misura stessa viene eseguita acquisendo i conteggi per un tempo prefissato, tipicamente 5 – 10 minuti. Il rateo di dose sarà dunque ottenuto semplicemente dividendo il valore di dose integrata misurato dal rivelatore per il tempo di integrazione. Si ottengono evidentemente così dei risultati molto più precisi, dal momento che si riducono sensibilmente sia le incertezze dovute al posizionamento, sia quelle legate alle fluttuazioni statistiche del fenomeno, importanti soprattutto se si impiegano rivelatori con sonde di piccole dimensioni.

Trattandosi di misure di dose è comunque di particolare importanza che i rivelatori siano stati preventivamente tarati, se possibile presso un centro LAT. In considerazione del fatto che, a seconda del tipo di sonda impiegato, la dipendenza della risposta dall'energia dei fotoni può essere molto differente, è necessario che nel certificato di taratura sia chiaramente indicato a che energia fotonica si riferisce il coefficiente di taratura. L'ideale sarebbe poi avere una certificazione per più punti a diversa energia, entro l'intervallo di interesse ambientale (50 keV – 2000 keV); può anche essere sufficiente un solo punto, a condizione però che sia disponibile una curva che descriva la variazione relativa della risposta della sonda in funzione dell'energia. Normalmente la grandezza con cui sono tarate le sonde è $H^*(10)$ o il Kerma; si ritiene però che nella maggior parte degli impieghi ambientali, in considerazione delle grandi incertezze connesse a questo tipo di misure, questo aspetto squisitamente metrologico non rivesta particolare importanza.

3.2.2 *Strumentazione: caratteristiche e prestazioni*

Come è già stato accennato, quasi tutte le strumentazioni in grado di rilevare i raggi gamma possono essere utilmente impiegate per le misure di rateo di dose gamma: si va infatti dalle camere a ionizzazione a pressione (del tipo Reuter-Stokes) ai contatori proporzionali, ai Geiger-Mueller compensati, agli scintillatori plastici e molti altri. Ciascuno strumento ha i suoi pregi e le sue peculiari caratteristiche che tuttavia non potranno essere discusse in dettaglio in questo testo.

Diciamo solo che, se è vero che lo strumento in linea di principio più idoneo a misurare la radiazione gamma è senza dubbio la camera a ionizzazione a pressione, è altrettanto vero che essa presenta degli inconvenienti in termini di comodità di utilizzo e di costi. Gli scintillatori plastici, a fronte di una più marcata dipendenza dall'energia fotonica possono però vantare un'ottima efficienza e estrema velocità di risposta, molto utile per un monitoraggio finalizzato alla ricerca di sorgenti o di aree ad elevata contaminazione. Non esiste quindi in assoluto una tipologia di strumentazione più idonea di delle altre: la scelta concreta dipenderà dall'impiego richiesto e non da ultimo anche dalla disponibilità economica. Si deve tuttavia sottolineare che, nel contesto del monitoraggio di un sito contaminato la misura del rateo di dose gamma può essere considerata quasi sempre una misura di screening, per la quale quindi può anche essere accettabile un'accuratezza non eccessiva. Si possono quindi senz'altro utilizzare proficuamente anche strumentazioni relativamente poco sofisticate. E' però importante che la sensibilità della strumentazione sia sufficiente a discriminare anche piccole fluttuazioni del fondo ambientale, cioè dell'ordine dei 10 nSv/h.

3.2.3 Stima MDR

Per le motivazioni precedentemente espresse non verrà effettuata una trattazione rigorosa per il calcolo della Minima Dose Rivelabile (MDR) di un determinato strumento impiegato per la misura del rateo di dose gamma. Tuttavia, per fornire l'ordine di grandezza della MDR si può, per analogia con la nota impostazione di Currie, impiegare un'equazione del tipo:

$$MDR = 4.65 \cdot \sigma_{dose}$$

dove σ_{dose} è la fluttuazione tipica del fondo.

Per una generica stima a priori del valore delle MDR si può prendere il valore, spesso fornito dai costruttori degli strumenti, della "sensibilità" della sonda: di solito valori intorno ai 5-10 nSv/h. Si ottengono così MDR dell'ordine di 20 – 50 nSv/h. Considerazioni più puntuali potranno essere fatte nei vari contesti sperimentali in cui ci si trova ad operare.

A partire da questi valori indicativi della MDR si possono comunque fare alcune considerazioni quantitative utili per la verifica dell'efficacia di un monitoraggio finalizzato alla ricerca di sorgenti disperse o di *hot spot*. Ipotizzando infatti la presenza di una sorgente puntiforme in un'area dove viene eseguita la ricerca mediante la misura in continuo del rateo di dose gamma con un percorso che "ricopre" l'area di monitoraggio per linee parallele distanti tra loro di una lunghezza d e assumendo che il nostro sistema di misura abbia una MDR di 40 nSv/h, si può calcolare la Minima Attività Rivelabile (MAR) della sorgente smarrita nel caso più sfavorevole, cioè nel caso in cui si venga a trovare a una distanza minima dal rivelatore pari a $d/2$:

$$MAR = \frac{MDR}{\Gamma} \cdot \frac{d^2}{4}$$

dove Γ è la costante gamma caratteristica del radionuclide. Se $d=10$ m allora dalla formula si ricavano rispettivamente per Co-60, Cs-137 e Am-241 le seguenti MAR:

$$MAR_{Co60} = 3,3 \text{ MBq}$$

$$MAR_{Cs137} = 12,8 \text{ MBq}$$

$$MAR_{Am241} = 385 \text{ MBq}$$

dei valori non propriamente trascurabili, soprattutto per quanto riguarda l'Am-241.

Nel calcolo approssimato qui presentato, a titolo meramente esemplificativo, non si è tenuto conto esplicitamente dell'effetto della velocità dell'operatore. Per una trattazione più approfondita di questo aspetto si rimanda alla bibliografia.

3.3 La spettrometria gamma in campo

L'utilizzo della spettrometria gamma *in situ*, oltre a consentire un'immediata analisi qualitativa, permette anche il calcolo quantitativo dei radionuclidi presenti nel suolo.

Tale calcolo deve in realtà ritenersi una stima piuttosto che una vera e propria misura delle concentrazioni, poiché le incertezze intrinseche alla tecnica di misura non consentono di raggiungere un'elevata accuratezza, come si vedrà in seguito.

Cionondimeno, tali stime sono comunque di grosso interesse poiché consentono di ottenere informazioni mediate su un'ampia area (ciascun rilievo di spettrometria gamma, eseguito a 1 metro dal suolo riceve infatti il contributo da un'area avente un raggio di circa 10 m dal punto di misura), rendendo quindi possibile la valutazione del rischio radiologico complessivo su una vasta area in un tempo relativamente breve.

Ai fini di una corretta analisi degli spettri gamma occorre una stima della concentrazione media dei radionuclidi presenti naturalmente nel suolo. Nei nostri territori ciò vuol dire determinare le concentrazioni dei seguenti radionuclidi:

- radionuclidi naturali della famiglia dell'Uranio-238

-
- radionuclidi naturali della famiglia del Torio-232
 - Potassio-40 (K-40, radionuclide naturale primordiale)
 - Cs-137 (radionuclide artificiale, proveniente dalla fissione dell'Uranio, ubiquitario nei suoli, con concentrazioni variabili da zona a zona, immesso nell'ambiente a seguito dell'incidente di Chernobyl e dei test nucleari in atmosfera eseguiti durante il secolo scorso)

Nelle seguenti figure sono riportati alcuni esempi di tipici spettri gamma in campo rilevati in ambiente con evidenziate le principali emissioni dei radionuclidi normalmente presenti.

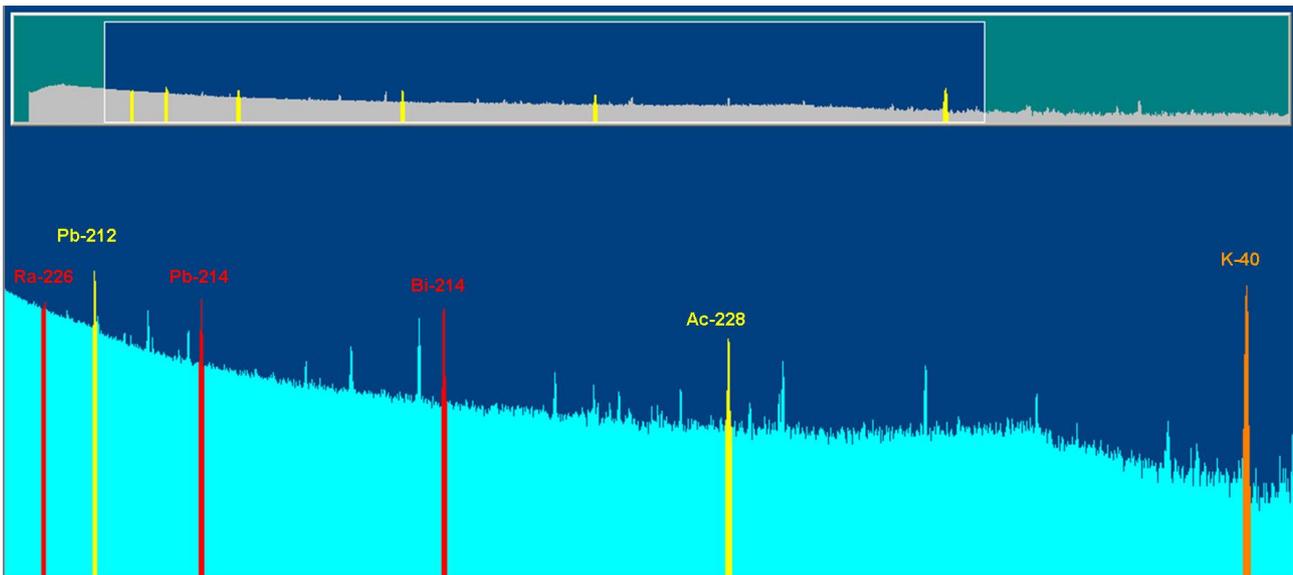


Figura 1 - Spettro acquisito una cava: sono evidenziate le principali emissioni dei radionuclidi naturali

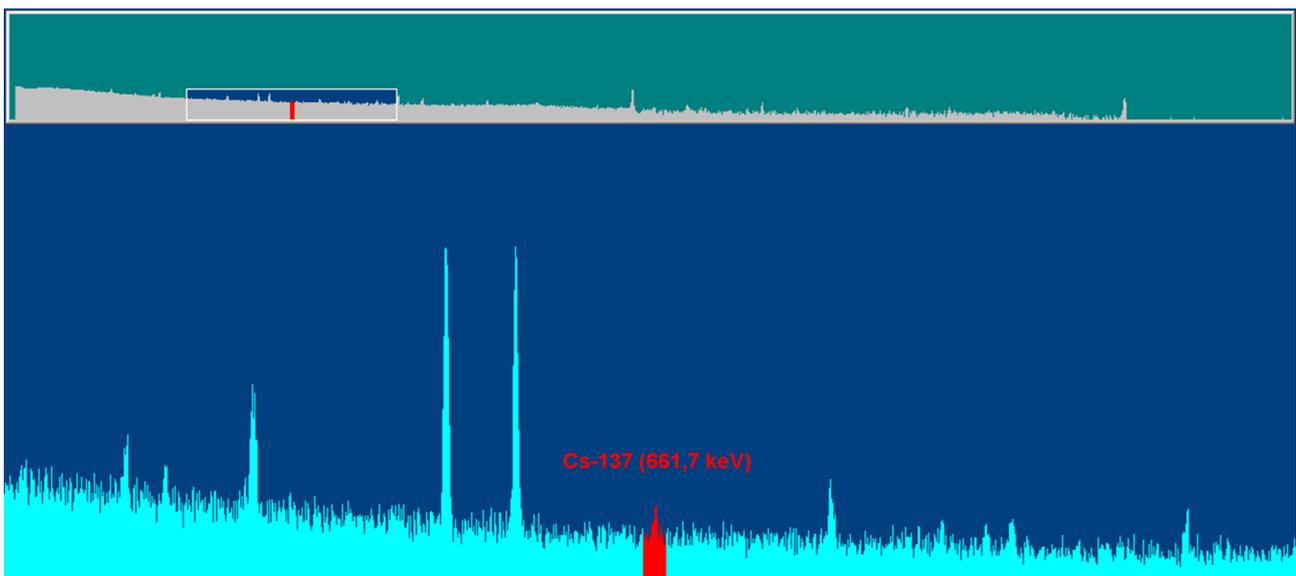


Figura 2 – Spettro acquisito in un ambiente agricolo del Sud Italia, dove la superficie del suolo è stata perturbata da attività umane legate alla coltivazione: si nota, evidenziato in rosso un piccolo picco attribuibile al Cs-137.

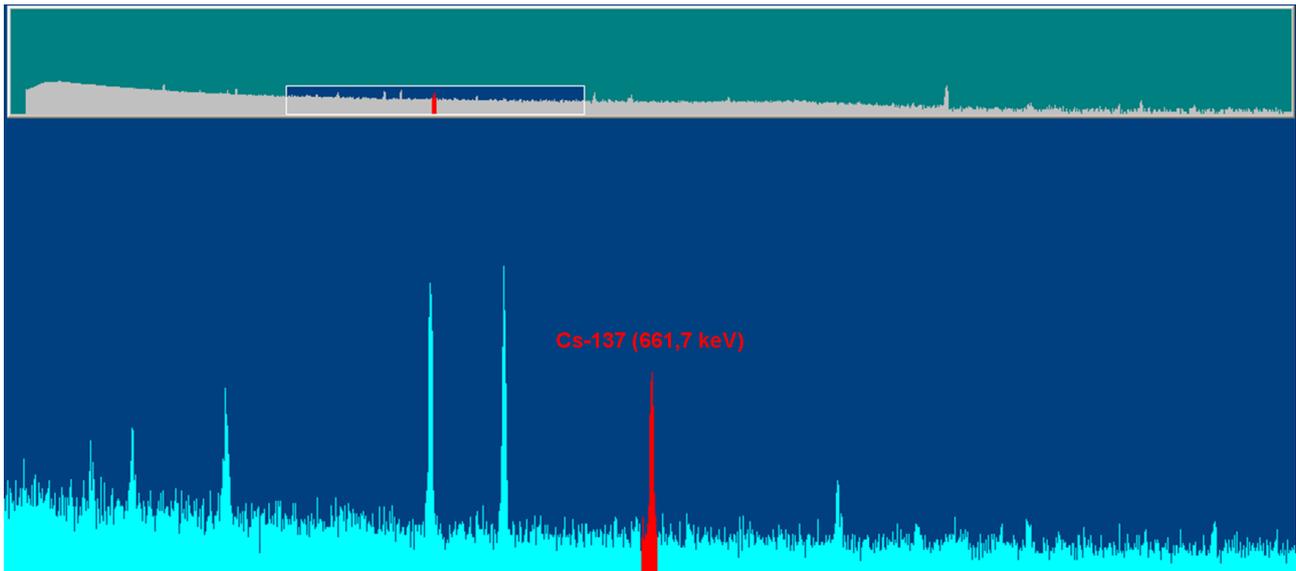


Figura 3 – Spettro acquisito in una zona molto vicina a quella precedente, dove però il terreno è rimasto imperturbato: l'emissione dovuta al ^{137}Cs , rimasto intrappolato nei primi cm di suolo, crea un picco molto più intenso rispetto alla situazione precedente.. Gli altri picchi, dovuti ai radionuclidi naturali, distribuiti nel suolo grosso modo uniformemente, hanno invece intensità pressoché uguali in entrambi i casi.

3.3.1 Aspetti operativi e strumentazione

Per effettuare le rilevazioni di spettrometria gamma *in situ* ed ottenere misure il più possibile accurate dei radionuclidi nel suolo è consigliato l'impiego di un rivelatore al Germanio (HPGe). In linea di principio le misure potrebbero anche essere eseguite impiegando rivelatori inorganici a scintillazione come lo Ioduro di Sodio (NaI(Tl)): i primi lavori pubblicati negli anni Settanta del secolo scorso vennero infatti eseguiti con rivelatori di questo tipo. Le prestazioni sono però molto più scarse, soprattutto in termini di risoluzione, e pertanto l'eventuale scelta del NaI(Tl) deve essere fatta valutando attentamente caso per caso. L'impiego di rivelatori al Bromuro di Lantanio (LaBr), più recentemente immessi sul mercato, potrebbe essere una soluzione di compromesso da valutare: pur non raggiungendo le prestazioni del Germanio è decisamente meno costosa dell' HPGe ma sicuramente migliore e altrettanto comoda di una scelta basata sull'impiego dello NaI(Tl).

Le caratteristiche dei sistemi di misura sono descritte nell'Allegato C della ISO/DIS 18589- 7:2013. Lo strumento deve essere posizionato in un terreno quanto più aperto e uniforme, possibilmente libero da massi o ostacoli fisici.

Il rivelatore si posiziona ad un metro sopra la superficie del terreno, in questa posizione il rivelatore ha un raggio di rivelazione di circa 10 m. Posto sopra un treppiede, esso è affacciato verso il suolo che costituisce pertanto una sorgente a geometria semi-infinita.

La schematizzazione del posizionamento del rivelatore rispetto al suolo è riportata nella figura seguente:

■ Semi-infinite source

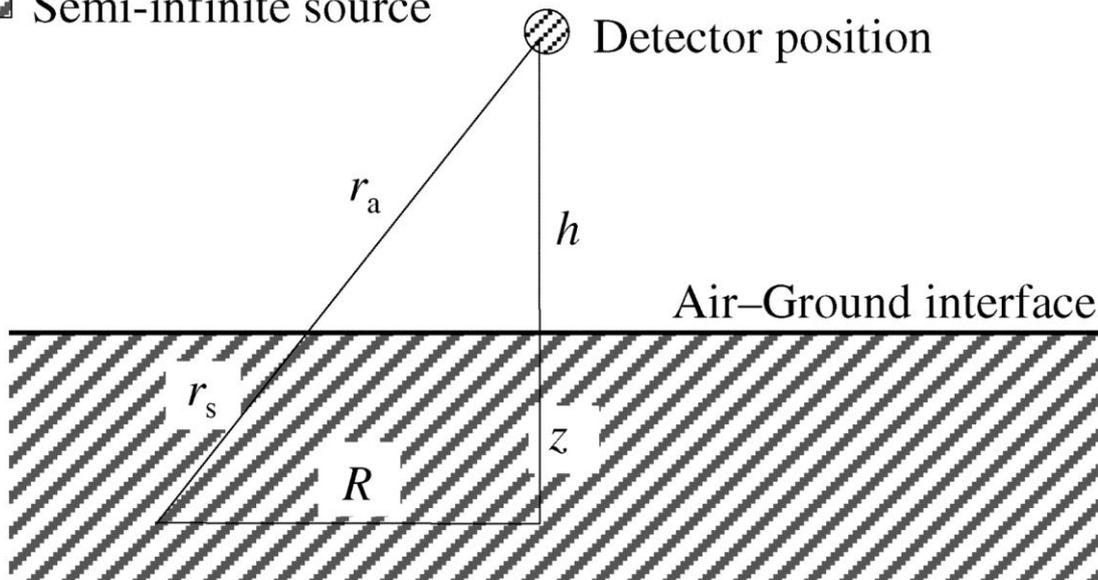


Figura 4 – Schematizzazione della posizione del rivelatore nel caso di sorgente semi-infinita: con h è indicata l'altezza dal suolo del rivelatore. L'elemento di volume del suolo che contribuisce all'irraggiamento è individuato dal vettore $r=r_a+r_s$ e può essere espresso in funzione delle coordinate sferiche (r , θ , ϕ) centrate nel punto dove sta il rivelatore.

Il tempo di acquisizione degli spettri gamma durante una campagna di misura è fissato in ragione delle esigenze: qualora si debba trovare un compromesso tra le opposte esigenze di ottenere buone sensibilità per i radionuclidi artificiali e naturali e, contemporaneamente, consentire l'effettuazione di un congruo numero di misure, è possibile fare rilievi anche per tempi relativamente brevi: 1 ora o anche meno. La scelta del tempo di conteggio influenzerà evidentemente la sensibilità. Tempi di acquisizione eccessivamente lunghi non sono tuttavia in generale raccomandati: l'elevato fondo gamma presente, rispetto alla spettrometria gamma tradizionale in laboratorio, rende infatti meno vantaggioso il guadagno in sensibilità.

In appendice (Capitolo 6) sono riportati in dettaglio gli aspetti tecnici relativi al calcolo delle concentrazioni di attività presenti nel suolo, delle MAR e delle relative incertezze di misura. In generale si dimostra che la componente puramente statistica dell'incertezza, legata ai tempi di misura, risulta quasi sempre, se non trascurabile, comunque poco importante rispetto a tutte le altre fonti di incertezza, intrinseche alla tecnica di misura.

Vengono invece qui di seguito presentate alcuni esempi di impiego della spettrometria gamma in situ in aree dove siano state interrate sorgenti radioattive o del materiale contaminato.

3.3.2 Caso studio: sorgente puntiforme posta a una data profondità

Una interessante applicazione della spettrometria gamma in campo è quella che prevede il suo utilizzo per la ricerca di una sorgente, supposta puntiforme, che sia interrata a una data profondità in un luogo incognito all'interno di un'area vasta. In questi casi l'intervento consisterà nel monitorare in modo sistematico l'area con una serie di misure, eseguite secondo un piano di campionamento caratterizzato da N punti di misura costituenti un reticolo avente passo d . In questo contesto è interessante chiedersi quale sarà la MAR che ci si aspetta al variare delle varie condizioni sperimentali.

La stima di questo parametro è importante poiché tramite esso è possibile valutare le potenzialità della tecnica di misura della spettrometria gamma in campo in ordine alla ricerca di sorgenti radioattive interrate. A tal fine si propone la stima della MAR nel caso in cui si effettui la ricerca di sorgenti radioattive in un'area pianeggiante, mediante misure ripetute di spettrometria gamma in campo su un ideale reticolo.

In questo caso, se si ipotizza che la sorgente sia sotterrata a una profondità h_s , in un punto imprecisato dell'area pianeggiante sottoposta a monitoraggio con punti di misura definiti da un reticolo avente passo d , la distanza massima dal rivelatore a cui tale sorgente potrà trovarsi sarà data da:

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

dove h è l'altezza dal suolo del rivelatore.

Il tragitto in aria dei fotoni sarà invece dato da:

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

da cui si ottiene per differenza il tragitto compiuto nel suolo: $h_{SUOLO} = h_{MAX} - h_{ARIA}$

Si può allora, in analogia con il classico approccio di Currie, stimare la MAR relativa a una sorgente interrata a partire dalla seguente espressione (semplificata rispetto all'approccio della ISO11929) :

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

dove N_b è il rateo dei conteggi di fondo Compton registrati dal rivelatore in corrispondenza del picco, σ_γ è la sezione d'urto del rivelatore per i fotoni di una data energia (che può essere identificata con il fattore di taratura N_0/Φ , determinabile sperimentalmente, si veda in appendice), p è la resa gamma del radionuclide che costituisce la sorgente, t è il tempo di misura, mentre l'esponenziale e il fattore geometrico che sta a denominatore ($4\pi h_{MAX}^2$), descrivono rispettivamente l'attenuazione del flusso fotonico dovuto al passaggio dei fotoni stessi nella materia (suolo-aria) e la sua diminuzione all'aumentare della distanza dalla sorgente.

In base all'equazione proposta, il valore della MAR viene a dipendere fortemente dalla densità e dalle caratteristiche del suolo, dall'entità del passo d del reticolo di monitoraggio, dal fondo ambientale della zona oltre che, ovviamente, dalla tipologia di sorgente e dalla profondità a cui essa si trova.

Applicando la formula a condizioni comuni ossia: fondo ambientale di 100-120 nSv/h; passo del reticolo di monitoraggio di 6 m, tempo di misura 1 ora, si ottengono i seguenti risultati, illustrati in figura 4.3.4: come si vede, passando da una profondità di 50 cm a 300 cm, la MAR varia da un minimo di 10^{10} Bq (10 GBq) a 10^{24} Bq per il Cs-137, e da $3 \cdot 10^8$ Bq (0,3 GBq) a 10^{19} Bq per il Co-60.

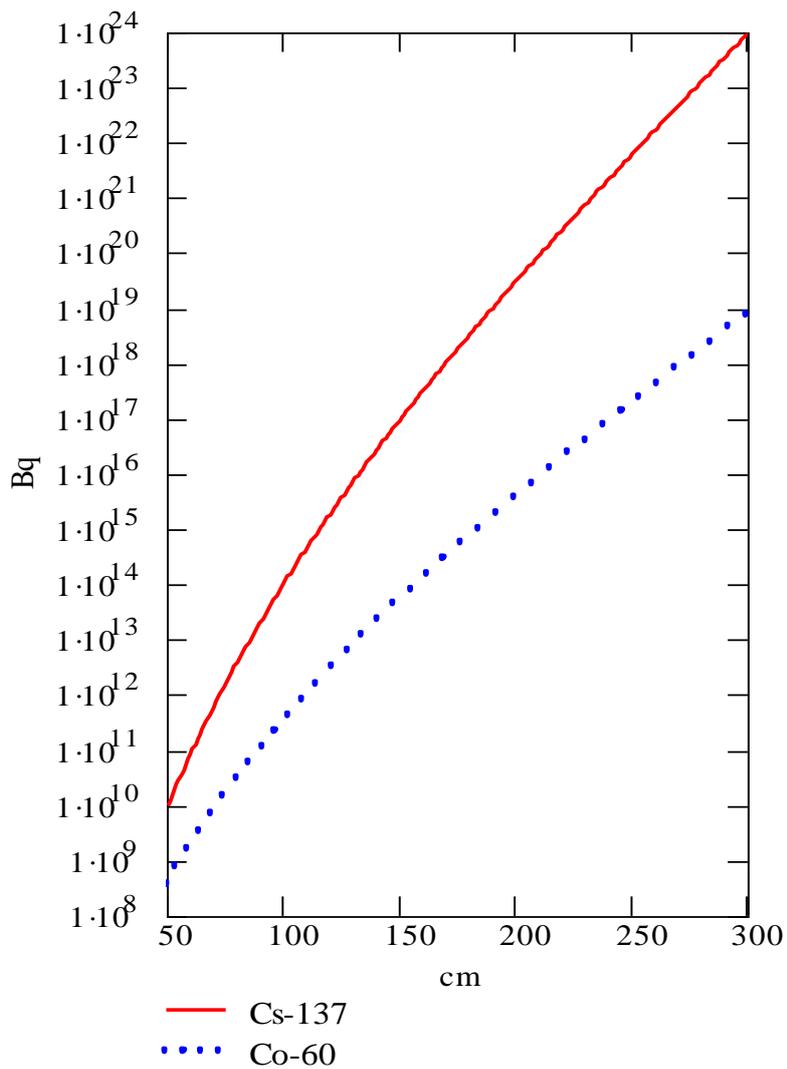


Figura 4 - MAR, espressa in Bq, per sorgenti di Cs-137 e Co-60 interrattate, per campagne di monitoraggio eseguite con misure effettuate su un reticolo avente passo $d=6$ m

Le condizioni migliorano sensibilmente se è noto il punto in cui la sospetta sorgente è stata interrattata. In tal caso si può porre $d=0$ e si ottengono dei risultati più bassi di 1-2 ordini di grandezza (vedi figura 4.3.5).

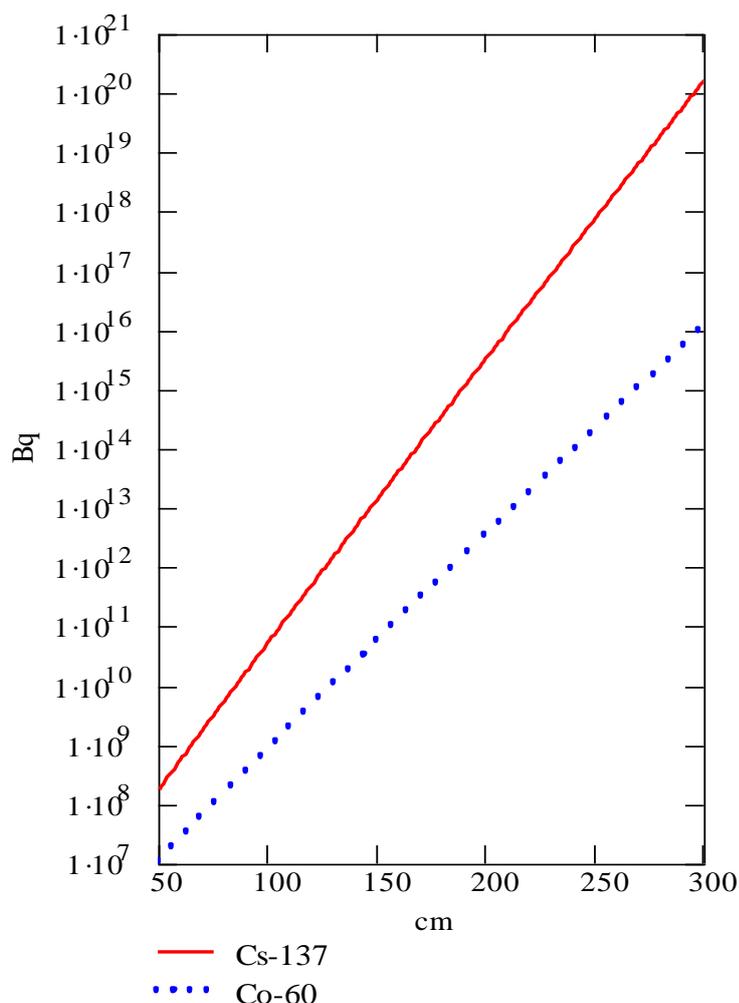


Figura 5 – MAR, espressa in Bq, per sorgenti di Cs-137 e Co-60 interrato, con il rivelatore posizionato sulla verticale della stessa ($d=0$): i valori migliorano di 1-2 ordini di grandezza rispetto al caso precedente

3.3.3 Caso studio: materiale radioattivo contaminato interrato a una data profondità

Un caso particolarmente interessante è quello in cui si tratta di rivelare la presenza di materiale uniformemente contaminato che sia stato sotterrato ad una certa profondità h_s . Anche in questo caso si prenderanno come riferimento i radionuclidi artificiali Cs-137 e Co-60. La possibilità di rivelare la presenza di materiale contaminato interrato con misure di spettrometria gamma in campo è significativamente maggiore rispetto all'uso di semplici misure di rateo di dose. Tuttavia la reale efficacia di questa tecnica dipenderà fortemente dai livelli di fondo ambientale, assai variabili da sito a sito. Mentre per la maggior parte dei radionuclidi artificiali i livelli di fondo che influenzano la MAR saranno dovuti al fondo Compton derivante dall'assorbimento parziale dell'energia dei fotoni emesso dai radionuclidi naturali presenti, per il Cs-137, stante la sua ubiquitaria presenza in ambiente, bisognerà tenere conto anche del "fondo locale", variabile come è noto sia su scala nazionale che regionale.

Con la spettrometria gamma *in situ*, però, non è sufficiente, per un calcolo puntuale della MAR, conoscere con precisione il fondo ambientale. Infatti, come è spiegato in dettaglio nell'appendice tecnica (Capitolo 6), per la spettrometria gamma in campo occorre anche conoscere le dimensioni geometriche della sorgente che, nei casi concreti, sono proprio le informazioni che mancano e che anzi si cercano di ottenere tramite le misure e le indagini radiometriche.

L'approccio pratico che conviene avere in questi casi è dunque il seguente. Una volta determinato con la maggiore accuratezza possibile il fondo ambientale della zona, si ragiona in termini di conteggi netti dei picchi e si valuta se i conteggi sperimentalmente ottenuti nella zona dello spettro corrispondente all'energia del radionuclide ricercato superano la fluttuazione statistica corrispondente alla MAR. Si avrà quindi un

$$N_{spe} > 4.65 \cdot \sigma_{fondo}$$

dato superiore alla MAR se i conteggi netti del picco N_{spe} sperimentalmente misurati verificheranno la seguente disuguaglianza:

dove la deviazione standard del fondo σ_{fondo} , nel caso in cui nel fondo stesso non sia presente alcun picco, potrà essere valutata approssimativamente, assumendo una statistica poissoniana, prendendo quindi la radice quadrata dei conteggi di fondo N_b misurati nella zona dello spettro corrispondente all'energia del picco stesso.

Stimata dunque la σ_{fondo} si potrà poi procedere, a posteriori, al calcolo della MAR vera e propria, una volta che sarà stata determinata o ragionevolmente stimata, la geometria del volume contaminato.

Da quanto detto si capisce come, nel caso della spettrometria gamma in campo, il concetto di MAR debba essere impiegato in modo differente rispetto al caso della spettrometria di laboratorio. Non è quindi una quantità definibile a priori una volta per tutte ma dipende fortemente dai diversi contesti ambientali e operativi. E' tuttavia utile, per esemplificare quelle che sono le potenzialità di questo tipo di misura, definire a priori alcuni scenari di riferimento, molto schematici, e per quelli calcolare le relative MAR.

Verranno pertanto calcolate le MAR nei seguenti casi:

- materiale uniformemente contaminato avente densità pari a quella del suolo, infinitamente esteso e posto ad una profondità $h_s = 50$ cm (MAR espressa in Bq/kg)
- materiale uniformemente contaminato avente densità pari a quella del suolo, infinitamente esteso e posto ad una profondità $h_s = 1$ m (MAR espressa in Bq/kg)
- sorgente superficiale uniformemente distribuita (MAR espressa in Bq/m²)

Il calcolo è stato eseguito seguendo il ben noto approccio descritto da Beck e soci nella loro storica pubblicazione del 1972 (H.L. Beck, J. DeCampo and C. Gogolak, HASL Report 258, 1972; *In situ Ge(Li) and NaI(Tl) γ -ray spectrometry*). E' stato quindi calcolato il flusso fotonico (fotoni/[cm²·s]) a 1 metro dal suolo nei 3 scenari sopra individuati. I relativi integrali di superficie e di volume sono stati valutati numericamente tramite il software Mathcad®.

Per il calcolo delle MAR sono prese come riferimento delle condizioni sperimentali reali e precisamente:

- una che presenta un fondo ambientale di Cs-137 relativamente alto, tipico di alcune aree del Nord Italia
- un'altra con fondo ambientale di Cs-137 molto più basso, tipico del Sud.

La radioattività naturale dovuta ai radionuclidi appartenenti alle serie radioattive e al K-40 è, in entrambi i casi, più o meno sugli stessi livelli. Il rivelatore al Germanio iperpuro impiegato in queste misure è un Canberra tipo n con efficienza relativa del 28%.

I risultati dei calcoli sono sintetizzati nelle seguenti tabelle A e B.

Tabella A

Sud Italia - 50 m slm - Rateo di dose gamma: 100 nSv/h – Deposizione media ¹³⁷Cs: 2000 Bq/m² tempo di conteggio: 2500 – Rivelatore HPGe tipo n, 28% efficienza relativa		
	MAR ¹³⁷ Cs	MAR ⁶⁰ 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 ²	47 Bq/m ²

Tabella B

Nord Italia - 200 m slm - Rateo di dose gamma: 120 nSv/h – Deposizione media ^{137}Cs: 20000 Bq/m² tempo di conteggio: 2500 – Rivelatore HPGe tipo n, 28% efficienza relativa		
	MAR ^{137}Cs	MAR ^{60}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 ²	27 Bq/m ²

Come si vede, i valori delle MAR sono fortemente influenzati dalla profondità a cui si trova la contaminazione e dall'energia dell'emissione gamma: a 1 m di profondità infatti le MAR sono dell'ordine delle migliaia di kBq/kg per il ^{137}Cs e di circa un centinaio di kBq/kg per il ^{60}Co .

Per quanto riguarda il ^{137}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. Bisogna però tenere presente che, a causa dell'elevata variabilità dei livelli di ^{137}Cs sia su scala nazionale che regionale, tali ragionamenti sono da ritenersi puramente indicativi e quindi, per quanto riguarda questo radioisotopo, è buona norma valutare sempre di volta in volta il fondo "locale". Si possono tuttavia ritenere come limiti inferiori per le MAR del ^{137}Cs i valori più bassi riportati nella tabella A, relativa al Sud Italia (estremo sinistro dell'intervallo): 7 kBq/kg per contaminazioni che si trovano a 50 cm di profondità, 6000 kBq/kg per contaminazioni che si trovano a 1 m di profondità e 34 Bq/m² per deposizioni superficiali.

A commento conclusivo di queste valutazioni si può dire che:

- la spettrometria gamma in campo è estremamente sensibile nel valutare la presenza di radioisotopi, soprattutto artificiali, se essi sono distribuiti superficialmente; si raggiungono infatti sensibilità notevoli (qualche decina di Bq/m²) 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.

I valori di MAR qui presentati sono stati valutati per le efficienze intrinseche del rivelatore Canberra impiegato da Arpa Piemonte, cioè per i valori del parametro $(N_0/\Phi)_{ARPA}$ (si veda in appendice) alle energie di emissione dei radioisotopi considerati pari a:

$$(N_0/\Phi)_{661.7} = 5,863 \text{ cps}/(\text{fotoni}/[\text{cm}^2 \cdot \text{s}])$$

$$(N_0/\Phi)_{1332.5} = 3,126 \text{ cps}/(\text{fotoni}/[\text{cm}^2 \cdot \text{s}])$$

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:

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

4 CAMPAGNE DI PRELIEVO E DI MISURA

Nella definizione di un piano di campionamento il punto essenziale è ovviamente la scelta delle matrici da monitorare. E' evidente che per una scelta concreta delle matrici è necessario fare riferimento a un preciso scenario. Si possono tuttavia dare delle indicazioni generali. Come criterio guida per la scelta delle matrici da campionare si può anzitutto fare riferimento alle 3 diverse modalità con cui la presenza di elementi radioattivi nell'ambiente può fornire dose all'uomo:

1. Inalazione
2. Ingestione
3. Irraggiamento

Sulla base di ciò sarà poi facile determinare, nei casi concreti, quali sono le matrici da sottoporre ad analisi. Per quanto riguarda la prima modalità indicata, cioè l'inalazione, la corrispondente matrice da campionare è ovviamente l'atmosfera, o meglio il particolato atmosferico.

Venendo ora alla seconda modalità di trasferimento della dose dall'ambiente all'uomo, cioè l'ingestione, le matrici da campionare sono ovviamente tutte le matrici alimentari che si trovano nell'area di interesse. L'ottimizzazione delle risorse suggerisce, in generale, di indirizzarsi verso quelle matrici che hanno maggior peso nella dieta tipo della popolazione (il latte, in particolare, ha quasi sempre un ruolo centrale). Al di là della rilevanza dosimetrica, la misura della contaminazione di un alimento in un contesto ambientale contaminato può fornire comunque delle informazioni molto interessanti sulla natura della contaminazione stessa che vanno oltre la significatività radioprotezionistica. Se si guarda quindi alle matrici alimentari in un'ottica non solo meramente radioprotezionistica, molte altre sono le matrici che possono essere prese in considerazione. In generale la loro scelta dipenderà fortemente dalle caratteristiche dell'ambiente sotto indagine. Tra le matrici alimentari più interessanti a questo riguardo si possono citare: i funghi (in particolare le specie notoriamente ipercaptanti), il miele, i frutti spontanei, eccetera.

Una matrice particolare, che sta a cavallo tra le matrici ambientali e quelle alimentari e che ha sempre un'importanza centrale è l'acqua. L'acqua potabile la si può considerare alla stregua di un alimento in quanto è tra le matrici che possono dare un contributo alla dose da ingestione. La matrice acqua, in un sito contaminato, ha tuttavia una rilevanza che va oltre l'eventuale contributo alla dose di ingestione alla popolazione: non è infatti comune che, in un sito contaminato, si trovino sorgenti di captazione dell'acqua potabile vulnerabili alla contaminazione ambientale. E' invece molto più frequente la situazione in cui, in una zona contaminata, la presenza di corsi d'acqua e corpi idrici di varia natura (falde acquifere, ruscelli, torrenti, fiumi, canali, laghi, ecc.) può influenzare la distribuzione della contaminazione su aree vaste, anche molto distanti. Lo studio sistematico dei livelli di concentrazione dei radionuclidi nei corsi d'acqua può infatti essere molto utile per scoprire le fonti di contaminazioni e anche, in taluni casi, per portare alla luce veri e propri incidenti radiologici: l'esperienza storica della ditta Premoli di Rovello Porro (CO) lo attesta. Nel 1990 si scoprì infatti dopo vari mesi di indagini lungo i corsi d'acqua della Lombardia occidentale che l'origine di una lieve anomalia radiometrica registrata nel fiume Po nei pressi di Caorso (PC) era stata la fusione accidentale di una grossa sorgente radioattiva di Cs-137 (600 – 6000 Ci) nell'azienda stessa che trattava rottami di alluminio importato dai Paesi dell'Est.

Considerando infine la terza e ultima fonte di trasferimento della dose alla popolazione, cioè l'irraggiamento gamma, siamo condotti alla matrice più importante per la caratterizzazione di un sito contaminato: il suolo. Il campionamento di campioni di suolo e le successive analisi di spettrometria gamma, eseguita con rivelatori al germanio iperpuro sono senza dubbio le più importanti e fondamentali attività che devono essere intraprese per la valutazione di ogni sito di cui si sospetti la contaminazione radioattiva. Gli approfondimenti di natura radiochimica, molto più onerosi della misura di spettrometria gamma, vanno effettuate, in generale, solo in seconda battuta.

Nei successivi paragrafi verranno sistematicamente approfonditi alcuni aspetti tecnici relativi alla definizione dei piani di monitoraggio per la caratterizzazione di un sito contaminato, relativamente ai seguenti comparti ambientali:

- aria ed atmosfera
- acqua
- suolo e matrici assimilate

4.1 Aria ed atmosfera

La contaminazione atmosferica che ci si può aspettare in un sito contaminato deriva essenzialmente dai fenomeni di risospensione. In questi casi una misura diretta della contaminazione radioattiva in atmosfera è sempre possibile, eseguendo misure radiometriche (spettrometria gamma, conteggi alfa/beta totale, ecc.) su campioni di particolato atmosferico. Ciò presuppone ovviamente il prelievo del particolato (PTS o PM10) filtrando su un supporto cartaceo o in fibra di vetro un adeguato volume d'aria. Per ottenere sensibilità dell'ordine del mBq/m^3 (riferite al ^{137}Cs , supponendo di impiegare un rivelatore HPGe con efficienza relativa del 30%) è necessario filtrare circa 50 – 100 m^3 d'aria. Ciò può essere, in taluni casi, piuttosto disagiata ed oneroso, in particolare nei casi in cui il raggiungimento del sito contaminato presenta difficoltà logistiche.

Conviene comunque tenere presente che una misura diretta della radioattività atmosferica risospesa non è sempre necessaria. In molti casi può infatti essere sufficiente, almeno inizialmente, una stima teorica mediante l'impiego del fattore di risospensione. Noto infatti il valore della deposizione al suolo D (Bq/m^2), che solitamente è determinabile o conoscibile con molta maggior facilità, si perviene a una stima della concentrazione in atmosfera C (Bq/m^3) tramite la semplice relazione:

$$C = D \cdot K$$

dove K è appunto il fattore di risospensione. Le dimensioni di K sono quelle di una lunghezza⁻¹ e si misura di solito in m^{-1} . I valori di K , in funzione delle diverse condizioni sperimentali e del tempo, si possono ricavare dalla letteratura, in varie situazioni e condizioni ambientali. Questo approccio può essere applicato sia all'ambiente esterno a condizioni indoor. Un valore generalmente accettato e ampiamente conservativo per il fattore di risospensione in ambiente è $K=10^{-5} \text{ m}^{-1}$.

Utilizzando il fattore di risospensione si possono così fare delle valutazioni a priori della rilevanza dosimetrica della componente "inalazione" e decidere quindi, sulla base dei risultati ottenuti, se è necessario eseguire anche misurazioni dirette della radioattività effettivamente presente in atmosfera.

4.2 Acque (superficiali e di falda)

Viene adottata come tecnica di screening la misura dell'attività alfa e beta totale tramite scintillazione liquida, in grado di rilevare la quasi totalità degli elementi radioattivi, tra cui anche quelli naturalmente presenti nelle acque. Su alcuni campioni selezionati a priori verranno effettuati approfondimenti volti alla determinazione specifica di alcuni radionuclidi (isotopi dell'uranio, radio-226, stronzio-90 e isotopi del plutonio). Questi approfondimenti verranno anche effettuati su tutti i campioni di acqua che mostreranno valori di attività alfa o beta superiore a quella naturalmente presente nelle acque.

La seguente tabella 5 mette a confronto le sensibilità analitiche in condizioni di misura tipiche con i rispettivi valori di riferimento.

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 CONDIZIONI TIPICHE (BQ/KG)	VALORI DI RIFERIMENTO (CLASSE D'ETÀ: ADULTI) (BQ/KG)
Alfa totale	Scintillazione liquida (LSC)	0,02	0,1
Beta totale	Scintillazione liquida (LSC)	0,1	1
Pu-238	Separazione - spettrometria alfa	0,001	0,6
Pu-239 ⁽¹⁾	Separazione - spettrometria alfa	0,001	0,55
Pu-240 ⁽¹⁾	Separazione - spettrometria alfa	0,001	0,55
Ra-226	Scintillazione liquida (LSC)	0,01	0,49
Sr-90	Separazione - conteggio □ totale	0,02	4,9
U-238	Scintillazione liquida (LSC)	0,001	3

(1): somma delle concentrazioni di Pu-239 e Pu-240

Si ritiene che non sia utile analizzare i campioni di acque mediante spettrometria gamma in quanto tutti i radionuclidi gamma emettitori sono comunque certamente individuabili anche attraverso le misure alfa e beta con sensibilità analitiche ampiamente sufficienti a garantire il rispetto dei valori di riferimento (tabella 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

4.3 Suolo e matrici assimilate (terreni/sedimenti, sedimenti superficiali, top soil)

In questo caso la tecnica principale consiste nella spettrometria gamma, che sarà effettuata su terreni opportunamente pretrattati e che consente di individuare l'eventuale presenza di contaminanti con

le sensibilità riportate in tabella 7. E' anche necessario premettere che molte sostanze radioattive sono naturalmente presenti nelle matrici sotto indagine, pertanto le sensibilità analitiche devono essere confrontate sia con le quantità mediamente presenti nella matrici naturali indisturbate (tabella 2) che, per i radionuclidi artificiali, con i Clearance Levels definiti dalla Commissione Europea (EC, 2000) e nuovamente riportati nell'ultima colonna della tabella 7.

Si osserva che la sensibilità analitica del metodo (intesa come minima concentrazione di attività rivelabile o MAR) è sempre significativamente migliore (da uno a tre ordini di grandezza) dei livelli di riferimento per la maggior parte dei radionuclidi. Quando ciò non avviene (Ra-226 diretto e Th-232) si osserva comunque che si tratta di radionuclidi naturalmente presenti in natura in concentrazioni confrontabili o maggiori dei livelli di riferimento (tabella 2), e che in questi casi il termine di paragone più significativo è rappresentato dal valore medio della concentrazione di fondo naturale assunta come riferimento.

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

RADIONUCLIDE	SENSIBILITÀ ANALITICA		VALORI DI RIFERIMENTO BQ/KG
	(HPGE 30%, V=100 CC, T=1000 MIN) BQ/KG	(HPGE 30%, V=1000 CC, T=1000 MIN) 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) ⁽¹⁾⁽²⁾	2,5	1	8
Th-232 (Ac-228) ⁽³⁾	5	1	14
U-235 ⁽⁴⁾	1,5	0,5	710
U-238 (Th-234) ⁽⁵⁾	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

La spettrometria gamma consente, in alcuni casi, anche l'identificazione della presenza di uranio impoverito (la ricerca si basa sulla misura dei rapporti isotopici tra i diversi isotopi dell'uranio). Quando ciò non fosse possibile per motivi legati alla sensibilità analitica del metodo, che può variare da campione a campione, si possono applicare tecniche alternative, nello specifico la spettrometria alfa ad alta risoluzione o la spettrometria di massa (ICP-MS).

Poiché l'analisi gamma non consente di individuare alcuni dei radionuclidi di interesse (nello specifico beta emettitori puri – come lo stronzio-90 – ed alfa emettitori puri – come gli isotopi del plutonio), si è può scegliere in questo caso di individuare un numero di campioni rappresentativo della situazione ambientale (sulla base del posizionamento dei punti di misura a monte o a valle delle zone potenzialmente contaminate) sui quali eseguire:

- isotopi del plutonio (indicativamente il 25% circa dei campioni solidi)
- determinazioni radiometriche di attività beta residua (80% circa dei campioni solidi)

La tabella 8 riporta le sensibilità analitiche ed i corrispondenti valori di riferimento per i principali isotopi determinabili per spettrometria alfa (isotopi del plutonio).

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+ (1)	Beta residuo	200	1100

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

5 CONCLUSIONI

5.1 Valutazioni generali di contaminazione

Una volta completate tutte le indagini radiometriche pianificate, si deve passare alla valutazione complessiva dei livelli di contaminazione riscontrati nel sito oggetto dell'indagine.

In radioprotezione, si parla genericamente di contaminazione ogniqualvolta si verifica la dispersione incontrollata di sostanze radioattive. Si ha quindi contaminazione allorché le sostanze radioattive disperse possono causare un'esposizione alle radiazioni ionizzanti di lavoratori e popolazione mediante inalazione e/o ingestione. In questo contesto, il concetto di contaminazione è dunque di solito utilizzato strumentalmente per la stima della dose. In realtà si può parlare di contaminazione anche in astratto, senza necessariamente passare attraverso la valutazione della dose.

A questo proposito però la norma non ci viene molto in aiuto. Infatti, nonostante che, per talune specifiche operazioni, come ad esempio per i trasporti di sostanze radioattive, vengano definiti (perlopiù da Guide Tecniche) dei precisi livelli di contaminazione superficiale sui colli, a livello legislativo, il concetto di contaminazione radioattiva non è ben definito: nel senso che per un sito o per un'area non sono indicati esplicitamente i valori al di sopra dei quali essi devono considerarsi contaminati.

Si potrebbe quindi legittimamente sostenere che ci si trova in presenza di contaminazione ogniqualvolta si riscontra in un dato sito o ambiente la presenza di sostanze radioattive "che non dovrebbero esserci". Possiamo quindi intendere molto semplicemente la contaminazione come la condizione di un sito o un'area in cui si riscontra un'anomalia rispetto ai "normali" livelli di fondo.

Per l'identificazione di tali anomalie, laddove esse non siano molto evidenti, è necessario far uso delle usuali tecniche statistiche, tra cui ricordiamo per la sua importanza l'analisi della varianza ANOVA, eseguita sui vari set di dati. A questo proposito si deve sottolineare l'importanza di disporre come riferimento per il giudizio di contaminazione di un'adeguata definizione del valore di fondo o di bianco. Questo aspetto, apparentemente banale, può esser in realtà, in talune circostanze, assai delicato; ciò accade soprattutto quando si deve valutare la contaminazione da radionuclidi naturali (NORM, Uranio Impoverito, ecc.): per la radioattività naturale infatti è talvolta arduo definire in maniera univoca i valori di fondo, dal momento che la concentrazione dei radionuclidi possono facilmente variare di un ordine di grandezza o anche di più in corrispondenza del mutare delle caratteristiche geologiche.

La rappresentazione cartografica dei livelli di contaminazione può essere utile e appropriata soprattutto nel caso di estesa contaminazione ambientale (tipico è ad esempio il caso del Cs-137 nei suoli). L'impiego delle tecnologie informatiche del tipo WEB-GIS possono fornire prodotti che, accanto al rigore scientifico, hanno anche una notevole efficacia comunicativa. Si deve però fare attenzione, a questo riguardo, all'uso consapevole delle tecniche di interpolazione dei dati spazialmente georiferiti. L'utilizzo del kriging e di metodi similari si è ormai diffuso ed è implementato in modo quasi automatico in molti pacchetti software, con indubbi vantaggi per l'operatore in termini di semplicità e comodità, ma con l'inconveniente di poter effettuare operazioni complesse anche in modo poco consapevole e, spesso, senza la possibilità di controllare i parametri dell'interpolazione. Occorre quindi molta cautela in questi casi, dal momento che le operazioni di interpolazione spaziale, se non sono correttamente eseguite, possono poi condurre a risultati anche gravemente distorti, tali da inficiare l'esito complessivo della valutazione, a dispetto magari di un ottimo lavoro sperimentale eseguito a monte.

5.2 Considerazioni dosimetriche

Per quanto non siano sempre strettamente necessarie in tutte le circostanze, di solito le valutazioni di contaminazione di un sito o di un territorio non si possono considerare complete se ad esse non si affiancano delle valutazioni dosimetriche. In molti casi per stimare la rilevanza dosimetrica di una contaminazione, piuttosto che eseguire esplicitamente il calcolo della dose per il gruppo critico dei lavoratori o della popolazione, si preferisce ricorrere al criterio di non rilevanza radiologica (10 μ Sv/anno), riferendosi a pubblicazioni tecniche quali ad esempio la Radiation Protection 122 (si veda in bibliografia). Tuttavia se si intende comunque eseguire una stima puntuale della dose efficace alla popolazione e/o ai lavoratori si deve seguire il solito approccio che consiste nel considerare separatamente le tre vie più usuali di rilascio della dose all'uomo:

-
- 1) Inalazione
 - 2) Ingestione,
 - 3) Irraggiamento

1) Inalazione

Se l'evento che ha determinato la contaminazione è avvenuto molto lontano nel tempo (cioè, da più di 6 mesi), è molto poco probabile che l'inalazione giochi in ruolo importante nel fornire un significativo contributo alla dose complessiva. Questo perché, esaurita la fase di contaminazione atmosferica con la deposizione della radioattività al suolo o sulle superfici, il contributo all'inalazione può derivare solo dalla risospensione. D'altra parte i valori del fattore di risospensione sia in ambiente che nei luoghi confinati tende a diminuire in modo drastico col passare del tempo. Per questo motivo, affinché si ottengano valori consistenti di inalazione tramite risospensione, è necessario che la quantità di radioattività depositata sia molto elevata; in queste situazioni però, si verifica immediatamente con alcuni calcoli che, per la stragrande maggioranza dei radioisotopi, il contributo di dose di gran lunga maggiore è dovuto all'irraggiamento, tanto da rendere del tutto trascurabile questa via di introduzione.

Questa condizione non è ovviamente sempre generalizzabile, ma vale pressoché sempre nel caso di radionuclidi emettitori beta/gamma (per il Cs-137, ad esempio). Un'analisi preventiva delle caratteristiche della contaminazione così come sono emerse dall'indagine svolta, può dunque permettere di evitare, in moltissimi casi, qualunque stima di dose da inalazione, con congruo risparmio in termini di risorse impiegate.

Queste considerazioni non valgono evidentemente, però, per gli emettitori alfa e beta puri. Un caso tipico è rappresentato ad esempio dal plutonio e dall'uranio impoverito: poiché per questi radionuclidi le emissioni gamma e X sono nulle o trascurabili, l'irraggiamento non è quasi mai importante e il rischio radiologico è dominato dall'inalazione.

Per la stima della dose da inalazione, laddove sia necessaria, si possono seguire due vie: o la stima tramite il fattore di risospensione, conoscendo la deposizione superficiale (Bq/m^2) e applicando il valore corretto del fattore di risospensione stesso, oppure la misura diretta dei radionuclidi, tramite misure (spettrometria gamma o radiochimica) di campioni di particolato atmosferico prelevati su filtri.

2) Ingestione

Anche per l'ingestione valgono, in parte, le considerazioni sopra svolte per l'inalazione. Un contributo di dose per ingestione consistente si ha infatti normalmente solo nel periodo immediatamente successivo all'evento di contaminazione. Con il passare del tempo infatti, anche l'ingestione diviene ben presto trascurabile rispetto all'irraggiamento (ovviamente solo nel caso di radionuclidi beta+gamma e alfa+gamma).

Vi sono però alcune eccezioni: talune matrici, come i funghi e la selvaggina, possono infatti continuare a presentare livelli di contaminazione molto elevati anche parecchi anni dopo l'evento che ha generato la contaminazione. In questi casi la stima della dose da ingestione può dunque fornire valori importanti, confrontabili o anche superiori a quelli dell'irraggiamento. Per ottenere stime di dosi realistiche in questi frangenti, bisogna disporre di informazioni affidabili sulle abitudini alimentari della popolazione (o dei lavoratori) esposti al rischio ingestione.

Per la valutazione della dose da ingestione sono necessarie ovviamente misure in laboratorio di campioni rappresentativi degli alimenti che costituiscono la dieta della popolazione interessata. Trattandosi di un'attività particolarmente onerosa deve essere adeguatamente dimensionata. In talune situazioni, se si può ritenere accettabile una stima di dose grossolana, cioè variabile entro un paio di ordini di grandezza, può essere considerata l'opzione della valutazione della dose tramite i fattori di trasferimento; in questi casi, ovviamente, il presupposto è una conoscenza molto dettagliata della deposizione al suolo.

3) Irraggiamento

Nei casi in cui l'evento che ha determinato la contaminazione abbia coinvolto anche radionuclidi emettitori gamma, l'irraggiamento è senza dubbio la via che, nel medio-lungo termine, è quella dominante per il rilascio di dose a popolazione e lavoratori.

La stima della dose da irraggiamento è normalmente la più semplice da effettuare. Campionamenti sistematici su griglie predefinite del rateo di dose gamma con camere a ionizzazioni o rivelatori plastici a scintillazione possono infatti fornire, in tempi relativamente brevi, valori assai affidabili.

L'impiego di tecniche più sofisticate, come la spettrometria gamma in campo o il campionamento e l'analisi di campioni di suolo, non sono strettamente necessarie allo scopo. Possono tuttavia essere molto utili per avere un quadro di dettaglio della situazione che consenta poi l'extrapolazione dei valori anche nel futuro. La conoscenza dei radionuclidi responsabili della contaminazione e soprattutto della loro distribuzione nel suolo può infatti permettere, tramite modelli, il calcolo del rateo di dose atteso nei decenni a venire.

6 APPENDICE – SPETTROMETRIA GAMMA IN SITU

6.1 Calcolo della concentrazione di attività e delle MAR

Efficienza di rivelazione

Il calcolo dell'attività di un radionuclide per unità di superficie o per massa, si esegue tramite l'approccio previsto dalla teoria di Beck e soci (H.L. Beck, J. DeCampo and C. Gogolak, HASL Report 258, 1972; *In situ Ge(Li) and NaI(Tl) γ -ray spectrometry*), che si fonda sulle seguenti assunzioni:

- profilo di concentrazione uniforme per i radionuclidi naturali (radionuclidi delle famiglie dell'Uranio e del Torio, K-40)
- profilo di concentrazione esponenziale per il Cs-137 (con parametro tipico di un fallout "vecchio", cioè, seguendo la notazione di Beck, con l'inverso della *relaxation length* α/ρ (cm²/g), compreso nell'intervallo 0,0625 a $+\infty$)

Inoltre, per i singoli radionuclidi appartenenti alle famiglie radioattive naturali, si può fare l'ulteriore assunzione della sussistenza dell'equilibrio secolare tra tutti i componenti all'interno di una stessa famiglia radioattiva, cioè l'uguaglianza dell'attività dei singoli componenti di una stessa famiglia radioattiva; si trascurano pertanto disequilibri dovuti a cause geochimiche e all'emissione del radon.

Tali assunzioni relative alle serie radioattive naturali, che di primo acchito possono apparire eccessivamente drastiche, sono in realtà piuttosto ragionevoli e normalmente sono, almeno in prima approssimazione, verificate quasi ovunque. Alterazioni geochimiche che determinano grossi disequilibri nelle catene radioattive sono infatti relativamente rare anche se non possono essere a priori escluse; l'emissione del radon non è invece di per sé trascurabile: la sua emanazione dal suolo determina infatti un impoverimento "locale" (cioè negli strati superiori del suolo) dei figli del radon a vita breve, che viene stimato nel 20-30% ma che tuttavia, per effetto dell'elevato libero cammino medio dei raggi gamma, influenza la stima complessiva delle concentrazioni delle famiglie radioattive in misura decisamente inferiore e in definitiva trascurabile.

In ogni caso, in assenza di precise informazioni al riguardo, le ipotesi fatte paiono essere l'unico approccio ragionevole e non arbitrario. D'altra parte le assunzioni stesse non sono impostazioni definitive, che precludano qualsiasi opzione alternativa, ma piuttosto un'ipotesi di lavoro che richiede di essere confermata dai dati sperimentali. Eventuali significative deviazioni che dovessero emergere potranno poi essere convenientemente interpretate e condurre eventualmente a rigettare le assunzioni fatte e a proporre altre ipotesi.

La scelta dei radionuclidi e delle emissioni da considerare viene guidata non solo da ragioni teoriche ma anche dall'analisi degli spettri gamma e da valutazioni sui picchi e sulla loro significatività statistica.

Più in dettaglio, nelle valutazioni qualitative e quantitative possono essere considerati i seguenti radionuclidi ed emissioni gamma, delle quali è indicata l'energia, espressa in kiloelettronVolt (keV):

- Radionuclidi artificiali
 - Cs-137 661,7 keV
- Radionuclidi primordiali
 - K-40 1460,8 keV
- Famiglia dell'U-238
 - Ra-226 186,0 keV
 - Pb-214 352,0 keV
 - Bi-214 609,4 keV e 1764,5 keV

○ Famiglia del Th-232

- Pb-212 238,6 keV
- Ac-228 911,0 keV

In base a questo approccio, l'efficienza di rivelazione può essere descritta dalla seguente formula generale:

$$\varepsilon = \left(\frac{N_0}{\Phi} \right) \left(\frac{N_f}{N_0} \right) \left(\frac{\Phi}{A} \right)$$

L'efficienza ε per il calcolo della concentrazione di attività (Bq/kg) o l'inventario (Bq/m²) del radionuclide risulta il prodotto di 3 fattori, che devono essere calcolati separatamente e che dipendono non solo dal rivelatore in uso, analogamente a quanto avviene con la spettrometria gamma di laboratorio, ma anche, come vedremo, dalla geometria del caso di studio.

Tenendo conto che con Φ si indica il flusso di fotoni incidenti sul rivelatore per unità di tempo e superficie [fotoni/(cm²·s)], i 3 fattori che compongono l'efficienza ε sono:

- N_0/Φ (cps/fotoni/[s·cm²]): è il valore della efficienza intrinseca del rivelatore relativo ed è calcolato sperimentalmente come il rapporto tra il rateo di conteggi (N_0) misurato dal rivelatore e il flusso Φ di fotoni che incidono normalmente sulla superficie del rivelatore stesso; può essere determinato sperimentalmente in modo relativamente semplice eseguendo misure a distanza nota con sorgenti puntiformi nell'intervallo di energia di interesse; esso dipende fortemente dall'energia dei fotoni incidenti; è di fatto la sezione d'urto σ_γ del rivelatore rispetto ai fotoni di una data energia;
- N_f/N_0 : è un termine che tiene conto di eventuali anisotropie nella risposta angolare del rivelatore; per rivelatori standard (cioè con un cristallo cilindrico avente il diametro più o meno delle stesse dimensioni dell'altezza) in prima approssimazione, soprattutto per fotoni > 100 keV, può essere preso come uguale a 1;
- Φ/A (fotoni/[s·cm²]/Bq/kg o fotoni/[s·cm²]/Bq/m²): è il parametro chiave della spettrometria gamma in campo: esso mette in relazione il flusso di fotoni non diffusi che giungono sul rivelatore provenienti da un particolare radionuclide e aventi una data energia, con la concentrazione di attività (o l'inventario) dello stesso radionuclide nel suolo o nella sorgente incognita; questo parametro è stato calcolato per la prima volta da Beck per i radionuclidi nel suolo e dipende fortemente dalla geometria della sorgente, cioè nel nostro caso dalla distribuzione dei radionuclidi nel suolo.

Da quanto sopra discusso appare chiaro che mentre i parametri N_0/Φ e N_f/N_0 possono essere calcolati una volta per tutte in fase di taratura dello spettrometro, l'ultimo, il Φ/A , muta al cambiare delle condizioni sperimentali.

Quest'ultimo parametro è evidentemente quello più delicato ed importante. Come infatti si può verificare eseguendo i calcoli (o semplicemente consultando le tabelle di Beck) il suo valore varia fortemente al variare dalla distribuzione dei radionuclidi nel suolo. Si viene così a creare la situazione piuttosto imbarazzante che il risultato della misura, che dovrebbe fornire delle indicazioni oggettive sulla situazione radiometrica, viene a dipendere da una assunzione a priori sulla geometria della sorgente, assunzione che lo sperimentatore è costretto comunque a fare e che deve quindi essere giustificata sulla base delle conoscenze disponibili. Questo fatto costituisce una delle principali limitazioni della spettrometria gamma in campo poiché rende i risultati che si ottengono fortemente dipendenti da scelte che, entro certi limiti, possono sembrare o rischiano di essere considerate arbitrarie. Non c'è, a questo riguardo, una precisa indicazione o regola da seguire per limitare questi inconvenienti. Può essere utile, in taluni casi, eseguire nell'area di interesse delle misure approfondite su campioni di suolo prelevati a varie profondità, con lo scopo di

caratterizzare la geometria della sorgente e quindi di essere in grado scegliere il valore corretto di Φ/A : tale strategia non può però, in tutta evidenza, essere estesa a tutta l'area di interesse per l'eccessiva onerosità e perché un'estesa campagna di misura con campionamenti ed analisi di laboratorio renderebbe poi del tutto superflue le successive misure di spettrometria gamma in campo. Vi sono comunque delle situazioni in cui la conoscenza della geometria della sorgente può essere ritenuta nota con un sufficiente grado di affidabilità: è il caso del fallout recente o di aree già precedentemente caratterizzate. La delicatezza di questo punto deve ad ogni modo essere sempre ben tenuta in considerazione quando si andranno poi a valutare i risultati sperimentali e, in particolare, si dovrà tenere conto di ciò nel calcolo dell'incertezza.

Calcolo attività e stima dell'incertezza

Il calcolo dell'attività di un radionuclide per unità di superficie o per massa è quindi determinata dalla seguente equazione:

$$A = \frac{N_f / t}{p \cdot \varepsilon} \quad (*)$$

N_f = conteggi netti

ε = efficienza di rivelazione

p = probabilità di emissione

t = tempo di misura

L'accuratezza della stima delle concentrazioni (o dell'inventario) dei radionuclidi presenti nel suolo tramite l'impiego dell'equazione è dunque legato all'accuratezza con cui possono essere calcolati i 3 fattori tra parentesi in cui può essere scomposta l'efficienza ε .

Per quanto riguarda il fattore N_0 / Φ , si può raggiungere una accuratezza tale da rendere l'incertezza sostanzialmente pari al valore di incertezza dell'attività delle sorgenti puntiformi con le quali si effettua la taratura (di solito circa il 5%).

Il parametro N_f/N_0 invece, per quanto complicato da determinare sperimentalmente, è stato tabulato da Helfer e Miller (si veda in bibliografia) in funzione dell'efficienza relativa e delle dimensioni del rivelatore e risulta corretto entro il 4-5%. Come già detto però, per la maggior parte dei rivelatori tale parametro può essere trascurato per energie > 100 keV.

Più difficile è stimare a priori l'incertezza per il fattore Φ/A che, per quanto già detto, possiamo immaginare che debba essere quello che ha il peso maggiore tra i 3 che concorrono a determinare l'incertezza complessiva sull'efficienza ε di rivelazione.

Per cercare di stimare tale incertezza sono stati calcolati *ex novo* per varie energie i valori di Φ/A (impiegando il software Mathcad®), calcolando nel contempo le relative incertezze al variare della densità del suolo, cioè il parametro identificato a priori come quello che più può influenzare il valore di Φ/A . Nella tabella seguente, a titolo esemplificativo, sono riportati i valori calcolati di Φ/A e la relativa incertezza, ottenuta considerando una distribuzione rettangolare della densità tra 1.1 e 1.6 g/cm³.

Energia [keV]	Φ/A [$\gamma/cm^2 \cdot s/(Bq/g)$]					
	Φ/A per $\rho(=1.1 \text{ g/cm}^3)$	Φ/A per $\rho(=1.6 \text{ g/cm}^3)$	Φ/A medio	Δ	$u(\Phi/A)$	$u(\Phi/A) \%$
238	3.65E+00	2.51E+00	3.08E+00	1.14E+00	3.29E-01	10.69%
352	4.30E+00	2.96E+00	3.63E+00	1.35E+00	3.88E-01	10.69%
609	5.47E+00	3.76E+00	4.61E+00	1.71E+00	4.93E-01	10.69%
661.66	5.65E+00	3.89E+00	4.77E+00	1.77E+00	5.10E-01	10.69%
911	6.55E+00	4.50E+00	5.52E+00	2.05E+00	5.91E-01	10.69%
1000	6.87E+00	4.72E+00	5.80E+00	2.15E+00	6.20E-01	10.69%
1461.1	8.38E+00	5.76E+00	7.07E+00	2.62E+00	7.56E-01	10.69%
1764.5	9.24E+00	6.35E+00	7.80E+00	2.89E+00	8.33E-01	10.69%

Come si vede, per l'incertezza non si osserva alcuna dipendenza dall'energia; inoltre, le variazioni di densità introducono una variabilità tutto sommato non eccessiva (deviazione standard di poco superiore al 10%).

Questo risultato sembrerebbe tuttavia in contraddizione con i risultati degli interconfronti, i quali illustrano che, anche nelle migliori condizioni sperimentali possibili (“buona geometria”), complessivamente non ci si possono aspettare per questo tipo di misure incertezze inferiori al 30-40%. E’ quindi evidente che un approccio di questo genere alla stima dell’incertezza non risulta completamente adeguato: vi sono in tutta evidenza delle componenti importanti che sfuggono ad un approccio puramente metrologico. Molte sono infatti le assunzioni su cui si basa la teoria della spettrometria gamma in campo che non possono essere verificate sperimentalmente in modo semplice, ma che introducono invariabilmente notevoli incertezze. Se il calcolo rigoroso di tale incertezze è molto difficoltoso, l’individuazione di esse è tuttavia abbastanza semplice e ovvia.

Tali incertezze sono dovute essenzialmente al fatto che, nei casi pratici, è impegnativo se non impossibile verificare la fondamentale ipotesi di omogeneità della sorgente, sia nelle caratteristiche chimico-fisiche del suolo sia nella distribuzione dei radionuclidi. Le variazioni di densità del sottosuolo, le variazioni di composizione chimica, la presenza variabile di umidità nonché il parziale (e variabile) disequilibrio radioattivo dovuto all’emanazione del radon rendono particolarmente difficoltosa una scelta ottimale e calibrata dei coefficienti di attenuazione massica per i fotoni, dai quali dipende in definitiva il valore di Φ/A .

D’altra parte, il tempo e le risorse che sarebbero necessarie per una conoscenza dettagliata delle caratteristiche del suolo, sono in contrasto con quelle che sono le caratteristiche tipiche della spettrometria gamma in campo e che, in definitiva, sono la sua ragion d’essere: cioè il monitoraggio di vaste aree in modo rapido ed economico. Quello che i teorici della spettrometria gamma in campo hanno fatto è dunque stato semplicemente la scelta di un “suolo standard medio” per il quale definire i parametri fisici e quindi calcolare Φ/A .

Per una stima complessiva dell’incertezza sull’attività A , oltre ai fattori che compaiono nell’equazione (*) occorre prevedere un termine, di gran lunga preponderante rispetto agli altri, ma purtroppo di problematica quantificazione.

Per tenere conto di questa incertezza, possiamo formalmente procedere nel seguente modo: prendere l’equazione (*) e sostituirla con la seguente (**):

$$A = \frac{N_f / t}{p \cdot \varepsilon} \cdot w \quad (**)$$

dove rispetto alla (*) è stato aggiunto un termine moltiplicativo avente un valore unitario ($w=1$) ma che presenta un’incertezza elevata. Si può stimare infatti $u_{rel}(w) \approx 25 - 30\%$.

Pertanto, se si trascurano i contributi delle incertezze relative al tempo di conteggio t e alla resa gamma del radionuclide p , l’incertezza relativa di A sarà data dalla seguente formula:

$$u_{rel}(A) = \sqrt{\left(u_{rel}^2(N_f) + u_{rel}^2(\varepsilon) + u_{rel}^2(w)\right)}$$

Inserendo quindi i valori delle incertezze in questa espressione si ottiene una stima dell’incertezza complessiva su A : i valori tipici che si ricavano sono dell’ordine del 35%.

Come è stato però più sopra sottolineato si tratta comunque più di una stima che di un calcolo vero e proprio: considerazioni e calcoli più rigorosi attorno a questo problema potranno essere sviluppate solo trattando specifiche situazioni nei quali le ipotesi di omogeneità del termine di sorgente sono verificate e quantificate. Diversamente, allo stato attuale, la stima dell’incertezza per una misura di spettrometria gamma in campo non potrà discostarsi molto dai valori qui proposti.

Calcolo Soglia di Decisione e Limite di Rivelazione (MAR)

In accordo con la ISO11929, e seguendo il suo formalismo, si possono definire la Soglia o Limite di Decisione LD (*Decision Limit*) nel seguente modo:

$$LD = k \cdot \sqrt{c_0}$$

e il Limite di Rivelabilità (Detection Limit), più familiarmente conosciuto come Minima Attività Rivelabile:

$$MAR = \frac{2 \cdot LD + k^2 \cdot c_1}{1 - k^2 \cdot c_2}$$

in cui c_0 , c_1 e c_2 sono parametri che assumono valori opportuni in funzione del bianco, dell'efficienza e delle loro incertezze.

Il parametro k nell'espressione che definisce LD rappresenta invece il quantile $(1-\alpha)$ della distribuzione normale, in cui α è il livello di significatività, cioè la probabilità di commettere un errore del I tipo (falso positivo).

Nel caso della MAR invece, k rappresenta il quantile $(1-\beta)$ della distribuzione, con β che rappresenta la probabilità di commettere un errore del II tipo (falso negativo).

Se, come di consueto si pone $\alpha=\beta=5\%$, si ha corrispondentemente:

$$k_{1-\alpha} = k_{1-\beta} = k_{95} = 1.645$$

Si possono allora ottenere delle espressioni semplificate per la Soglia di decisione:

$$LD = 2.33 \cdot \frac{\sqrt{N_b}}{\varepsilon \cdot p \cdot t}$$

e anche per la MAR:

$$MAR = \frac{4.65 \sqrt{N_b}}{\varepsilon \cdot p \cdot t \cdot (1 - 2.71 \cdot u_{rel}^2(\xi))}$$

dove N_b sono i conteggi del bianco (il fondo Compton corrispondente al picco) mentre $u_{rel}(\xi)$ è dato dalla seguente relazione:

$$u_{rel}(\xi) = \sqrt{(u_{rel}(\varepsilon))^2 + u_{rel}(w)^2}$$

Se si riesce a contenere l'incertezza sull'efficienza a valori $< 5\%$ e in condizioni di perfetta omogeneità della distribuzione dei radionuclidi nel terreno (per cui cioè $u_{rel}(w) \rightarrow 0$), si può utilizzare per la MAR la seguente formula, ulteriormente semplificata rispetto alla precedente:

$$MAR = \frac{4.65 \sqrt{N_b}}{\varepsilon \cdot p \cdot t}$$

7 BIBLIOGRAFIA

1. Barbizzi, S., Pati, A., 2008, Sampling in freshwater environments: suspended particle traps and variability in the final data. *Appl.Rad.Isotopes*, 66, 1595-1598.
2. de Zorzi, P., Barbizzi, S., Belli, M., Ciceri, G., Fajgelj, A., Moore, D., Sansone, U., and Van der Perk, M., 2005. Terminology in soil sampling (IUPAC Recommendation 2005). *Pure Appl. Chem.*, 77, 5, 827–841.
3. Decisione della Commissione su monitoraggio chimico e qualità dei risultati analitici in accordo alla Direttiva 2000/60/CE.
4. Direttiva 2003/78/CE dell'11 agosto 2003 relativa ai metodi di campionamento e di analisi per il controllo ufficiale dei tenori di patulina nei prodotti alimentari.
5. DOE/EH-0624 Rev. 1
6. EPA 402-R-97-016, Rev. 1
7. Gilbert, *Statistical Methods for Environmental Pollution Monitoring*, 1987 VAN NOSTRAND REINHOLD COMPANY – NEW YORK.
8. H.L. Beck, J. DeCampo and C. Gogolak, HASL Report 258, 1972; In situ Ge(Li) and NaI(Tl) γ -ray spectrometry.
9. ISO FDIS 18589- 7 Measurement of radioactivity in the environment – soil. Part 7 :in situ measurement of gamma-emitting radionuclides.
10. ISO/IEC GUIDE 99: 2007 – International vocabulary of metrology – Basic and general concepts and associated terms (VIM). International Organization for Standardization (ISO), Geneva.
11. ISO 11929 – Determination of the characteristic limits (decision threshold, detection limit and limits of the confidence interval) for measurements of ionizing radiation – Fundamentals and application – (2010)
12. M. Magnoni, La ricerca di sorgenti radioattive disperse nell'ambiente mediante l'impiego di mezzi aerei: aspetti teorici e sperimentali, Atti del Convegno Nazionale di Radioprotezione "Sicurezza e Qualità in Radioprotezione", 1-3 ottobre 2007, Vasto Marina (CH).
13. M. Marga, S. Bertino, M. Ghione e M. Magnoni, Impiego della spettrometria gamma in campo per la stima della deposizione e della concentrazione dei radionuclidi nel suolo: valutazione critica dei fattori ambientali che influenzano maggiormente i risultati. Atti del V Convegno Nazionale Agenti Fisici, "Il controllo degli agenti fisici: ambiente, salute e qualità della vita", Novara, 6-8 giugno 2012.
14. MULTI-AGENCY RADIATION SURVEY AND SITE INVESTIGATION MANUAL (MARSSIM) AUGUST 2000 REVISION 1
15. NUREG-1575, Rev. 1
16. RADIATION PROTECTION 122, Practical use of the concepts of clearance and exemption – Part I, European Commission, 2000.
17. RADIATION PROTECTION 122, Practical use of the concepts of clearance and exemption – Part II, European Commission, 2002.
18. RADIATION PROTECTION 135, Effluent and dose control from European Union NORM industries: assessment of current situation and proposal for a harmonised Community approach, European Commission, 2000.
19. Ramsey, M.H., 1998. Sampling as a source of measurement uncertainty: techniques for quantification and comparison with analytical sources. *J. Anal. Atom. Spectrom.* 13, 97–104.
20. Ramsey, M.H., Ellison, S.L.R., 2007. Eurachem/EUROLAB/CITAC/Nordtest/AMC Guide, Measurement uncertainty arising from sampling: a guide to methods and approaches.
21. Ramsey, M.H., Geelhoed, B.; Wood, R., Damant, A.P., 2011. Improved evaluation of measurement uncertainty from sampling by inclusion of between-sampler bias using sampling.
22. UNI CEI 70099:2008 - Vocabolario Internazionale di Metrologia - Concetti fondamentali e generali e termini correlati.
23. UNI CEI EN ISO/IEC 17025:2005 – Requisiti generali per la competenza dei laboratori di prova e di taratura.
24. UNICHIM, 2009. Campionamento ed analisi in campo ambientale. Stima dell'incertezza di misura, Manuale n°202, Edition 2009.