

La misura del ^{226}Ra in spettrometria gamma a partire dai figli a vita breve non in equilibrio del radon

Massimo Faure Ragani, Filippo Berlier, Giovanni Agnesod

ARPA Valle d'Aosta, Loc. Grande Charrière 44, 11020 Saint Christophe (AO),
m.faureragani@arpa.vda.it

INTRODUZIONE

La misura del ^{226}Ra in spettrometria gamma può essere effettuata in maniera diretta, tramite la sua emissione gamma principale a 186.2 keV, oppure in maniera indiretta, per mezzo delle emissioni gamma della sua progenie (^{214}Pb e ^{214}Bi). La misura diretta risente del fatto che l' ^{235}U ha una emissione a 185.7 keV e spesso la separazione dei due picchi risulta complessa e causa di una grande incertezza. La misura indiretta risulta scomoda per il fatto che è valida a patto che venga raggiunto l'equilibrio secolare tra la progenie ed il ^{226}Ra . Per ottenere questo equilibrio occorre utilizzare dei contenitori a tenuta radon ed attendere circa 4 settimane (7 tempi di dimezzamento del radon). Viene qui presentato un metodo che, a partire da almeno due misure della concentrazione della progenie del ^{226}Ra non ancora in equilibrio, risale alla concentrazione iniziale di ^{226}Ra nel campione. Tale metodo si basa sulla risoluzione numerica delle equazioni di Bateman, che regolano le attività dei radionuclidi appartenenti ad una catena radioattiva, per ottenere l'attività della progenie in funzione delle attività iniziali del ^{226}Ra e del ^{222}Rn .

LA SITUAZIONE SPERIMENTALE

Si consideri la catena di decadimento del ^{226}Ra fino ai primi figli a vita breve del ^{222}Rn (Figura 1).

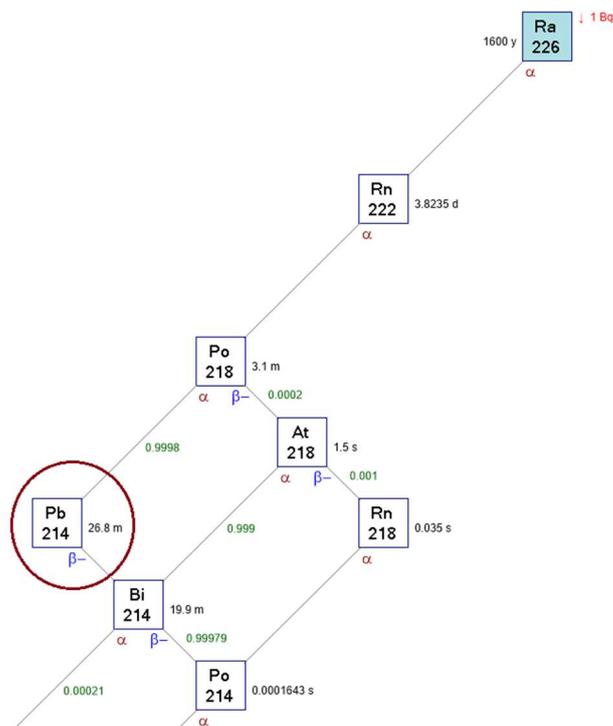


Figura 1 - Catena di decadimento del ^{226}Ra fino ai figli a vita breve del ^{222}Rn . E' evidenziato il ^{214}Pb , oggetto di indagine nel presente metodo

Le attività dei radionuclidi presenti nella catena è regolata dalle equazioni di Bateman: a partire dalle concentrazioni iniziali di ^{226}Ra e ^{222}Rn , l'attività dei discendenti è **univocamente** determinata.

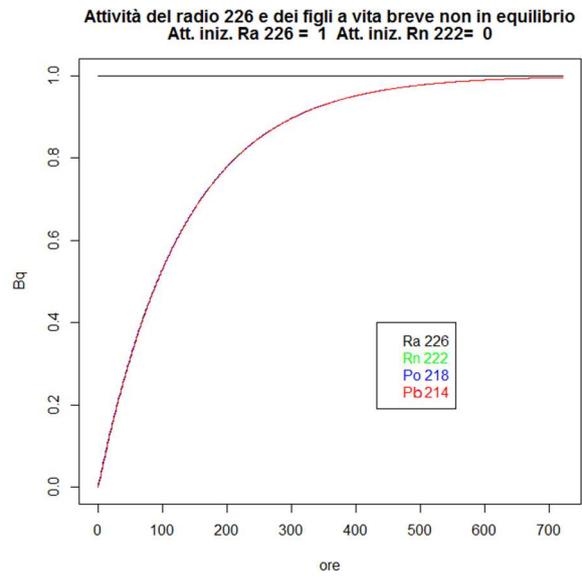
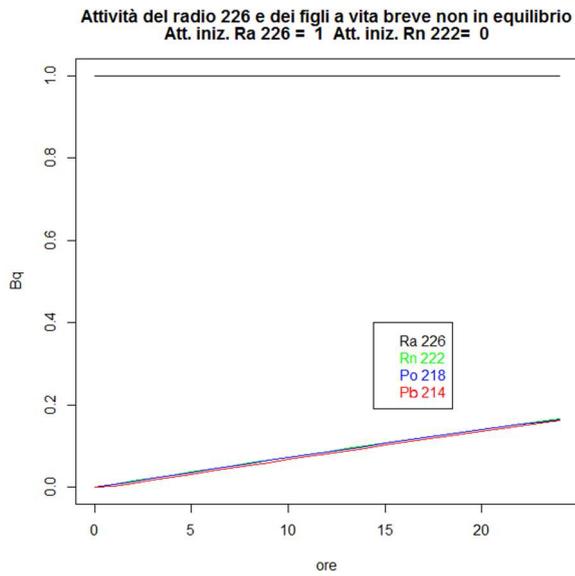


Figura 2 Crescita delle attività dei figli a vita breve del ^{226}Ra nelle prime ore dopo la chiusura del campione. $A_{\text{Ra}226}^0 = 1 \text{ Bq}$, $A_{\text{Rn}222}^0 = A_{\text{Pb}214}^0 = 0 \text{ Bq}$

Figura 3 Crescita delle attività dei figli a vita breve del ^{226}Ra fino al raggiungimento dell'equilibrio con il ^{226}Ra . $A_{\text{Ra}226}^0 = 1 \text{ Bq}$, $A_{\text{Rn}222}^0 = A_{\text{Pb}214}^0 = 0 \text{ Bq}$

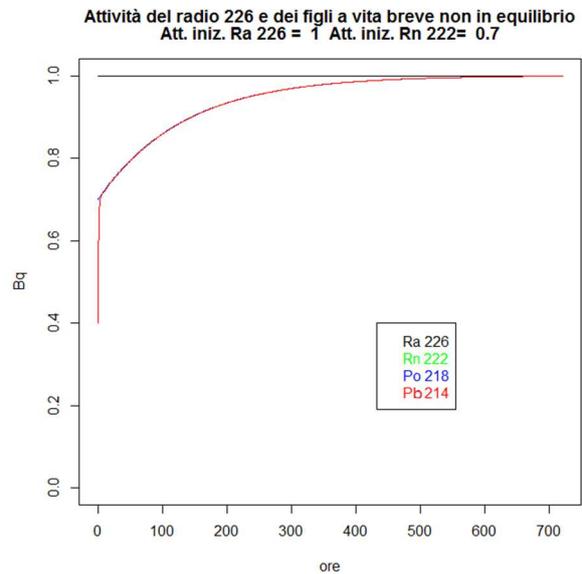
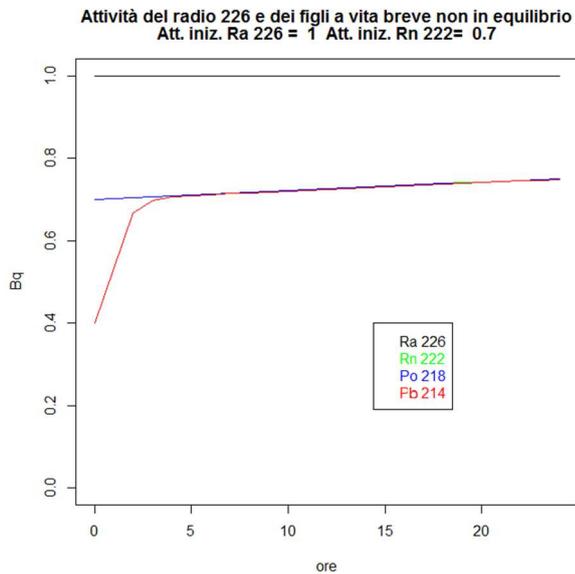


Figura 4 Crescita delle attività dei figli a vita breve del ^{226}Ra nelle prime ore dopo la chiusura del campione. $A_{\text{Ra}226}^0 = 1 \text{ Bq}$, $A_{\text{Rn}222}^0 = 0.7 \text{ Bq}$ e presenza di attività iniziale anche dei figli vita breve del radon

Figura 5 Crescita delle attività dei figli a vita breve del ^{226}Ra fino al raggiungimento dell'equilibrio con il ^{226}Ra . $A_{\text{Ra}226}^0 = 1 \text{ Bq}$, $A_{\text{Rn}222}^0 = 0.7 \text{ Bq}$ e presenza di attività iniziale anche dei figli vita breve del radon

Come si vede dalle figure precedenti, l'andamento delle attività dei figli del ^{226}Ra è fortemente condizionato dalle attività iniziali del ^{226}Ra e del ^{222}Rn , fino al raggiungimento dell'equilibrio. Nel caso

di presenza di una certa attività iniziale dei figli a vita breve del radon, occorre aspettare almeno 4 ore (circa otto tempi di dimezzamento del ^{214}Pb) affinché l'attività del ^{214}Pb dipenda esclusivamente dalle attività iniziali del ^{226}Ra e del ^{222}Rn (Figura 4 e Figura 5).

L'obiettivo è quello di risalire alle attività iniziali del ^{226}Ra e del ^{222}Rn , a partire da almeno due misure in spettrometria gamma del picco a 351.9 keV del ^{214}Pb non ancora in equilibrio con il ^{222}Rn .

IL METODO

Il metodo, scritto nel linguaggio R, si basa sui seguenti punti:

- Si è sviluppata una funzione f che risolve numericamente il sistema di equazioni della catena radioattiva e che, a partire dalle concentrazioni di ^{226}Ra e del ^{222}Rn , fornisce, per un determinato spettrometro e una geometria definita, i conteggi per secondo (**cps**) teorici del picco del ^{214}Pb a 351.9 keV per un certo tempo di misura (TL – live time) dopo un tempo TM dalla chiusura del campione.

$$f(A_{Ra226}^0, A_{Rn222}^0) \rightarrow cps_{351.9\ keV}(TL, TM) \quad (1)$$

- La concentrazione iniziale di ^{222}Rn (A_{Rn222}^0) non può essere superiore a quella di ^{226}Ra , pertanto vale la relazione:

$$A_{Rn222}^0 = P * A_{Ra226}^0 \quad (2)$$

dove P è la percentuale iniziale di ^{222}Rn rispetto a ^{226}Ra ($0 < P < 1$) e quindi si può scrivere la (1) nella seguente maniera:

$$f(A_{Ra226}^0, P \cdot A_{Ra226}^0) \rightarrow cps_{351.9\ keV}(TL, TM) \quad (3)$$

- La funzione f , fissato P , è una funzione lineare rispetto alla concentrazione iniziale di ^{226}Ra , cioè per ogni valore di P , se A_{Ra226}^0 raddoppia, allora raddoppiano anche i $cps_{351.9\ keV}(TL, TM)$. Si può quindi calcolare il valore dei $cps_{351.9\ keV}(TL, TM)$ per una miscela iniziale di $1\ \text{Bq}$ di ^{226}Ra e $P * 1\ \text{Bq}$ di ^{222}Rn ($0 < P < 1$), ottenendo così quanti cps **teorici** ci sono nel picco a 351,9 keV per ogni Bq iniziale di ^{226}Ra in una miscela con $P * 1\ \text{Bq}$ iniziali di ^{222}Rn al tempo TM dalla chiusura del campione, per una misura che dura un tempo pari a TL . Dividendo i $cps_{351.9\ keV}(TL, TM)$ **misurati** per il valore appena ottenuto si ottiene l'attività iniziale di ^{226}Ra (e quindi anche di ^{222}Rn) fissato P .
- Il programma quindi pone $P=0$ e calcola per ogni misura l'attività teorica iniziale di ^{226}Ra secondo la relazione

$$A_{Ra226}^0(0) = \frac{cps^{mis}}{f(1,0)} \quad (4)$$

Si ottiene quindi, per ogni misura, la concentrazione ipotetica iniziale di ^{226}Ra nel caso di assenza di ^{222}Rn iniziale ($P=0$). Nel caso in cui questa situazione fosse quella reale, le A_{Ra226}^0 ricavate dovrebbero essere uguali (all'interno dell'incertezza di misura) quindi il

programma si arresta. In caso contrario, il programma aumenta il valore di P (fino ad un massimo di $P=1$ che indica equilibrio tra radon e figli) e per ogni valore di P calcola nuovamente l'attività iniziale di ^{226}Ra secondo la relazione:

$$A_{Ra226}^0(P) = \frac{cps^{mis}}{f(1,P)} \quad (5)$$

Si ottiene quindi, per ogni misura, la concentrazione ipotetica iniziale di ^{226}Ra per il valore di P fissato. Il programma calcola quindi la media $\overline{A_{Ra226}^0(P)}$ delle $A_{Ra226}^0(P)$ e applica la funzione (1)

$$f(\overline{A_{Ra226}^0(P)}, P \cdot \overline{A_{Ra226}^0(P)}) \rightarrow cps^{sim}_{351.9\text{ keV}}(TL, TM)$$

e per ogni misura si calcolano i cps che si otterrebbero con questa ipotetica miscela (cps^{sim}). Il programma sceglie il valore di P ($= P_{vera}$) che minimizza il X^2 tra i cps misurati ed i cps simulati, cioè minimizza:

$$X^2 = \sum_{i=1}^n \frac{(cps_i^{sim} - cps_i^{mis})^2}{\mu_i^2} \quad (6)$$

dove μ_i rappresenta l'incertezza poissoniana dei cps misurati.

Il valore dell'attività iniziale di ^{226}Ra è dato da:

$$\overline{A_{Ra226}^0(P_{vera})} \pm \sigma(A_{Ra226}^0(P_{vera}))$$

LE MISURE

Le misure sono state effettuate utilizzando un HpGe coassiale di tipo p della Ortec con efficienza relativa del 50% e GammaVision come software di analisi. I campioni analizzati sono due:

- Campione A: acqua con sorgente ^{226}Ra , in bicchiere di acciaio da 100cc;
- Campione B: terreno superficiale (La Thuile) secco e vagliato a 2 mm, in beaker di Marinelli da 1000cc.

Le efficienze di taratura sono state ricavate con l'utilizzo del software Montecarlo EFFTRAN [3] a partire da curve sperimentali ottenute con geometrie simili e sorgenti di taratura certificate. Per ogni campione sono state effettuate 10 misure da 60000 sec ciascuna, a partire da almeno 4 ore dalla chiusura del campione, per permettere il decadimento completo del ^{214}Pb presente inizialmente nei campioni

In Figura 6 e Figura 7 sono mostrati i conteggi per secondo misurati (cps^{mis}) nel picco a 351,9 keV del ^{214}Pb per i due campioni analizzati con le relative incertezze di conteggio ($K=1$).

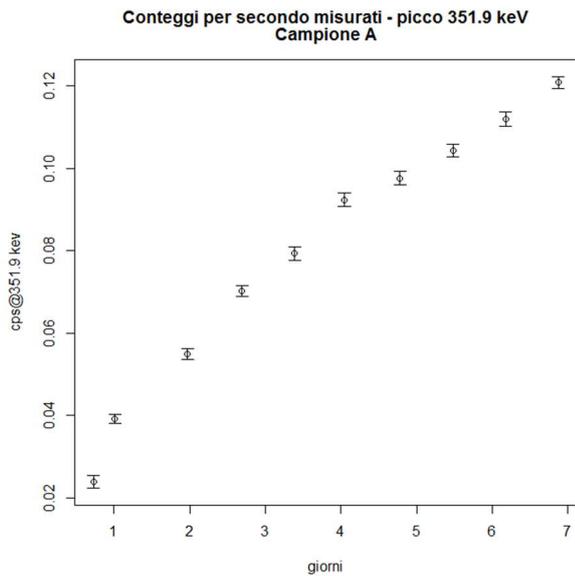


Figura 6 Cps^{mis} relativi al picco a 351,9 keV - campione A (acqua con sorgente ^{226}Ra , in bicchiere di acciaio da 100 cc).

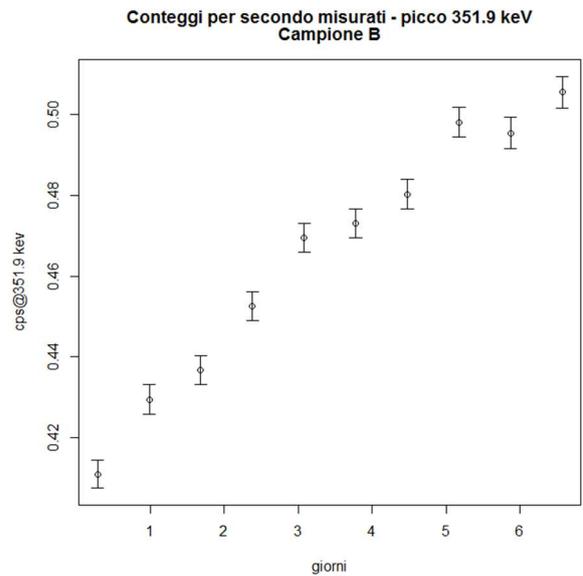


Figura 7 Cps^{mis} relativi al picco a 351,9 keV - campione B (terreno superficiale secco e vagliato a 2 mm, in beaker di Marinelli da 1000 cc).

Per comprendere come lavora il programma, si riportano nelle figure seguenti, i cps^{mis} (in nero) e i cps_P^{sim} (in blu e verde) per ogni P per le 10 misure effettuate. Si può osservare come all'aumentare di P i cps_P^{sim} si avvicinino ai cps^{mis} fino quasi a sovrapporsi quando $P = P_{vera}$.

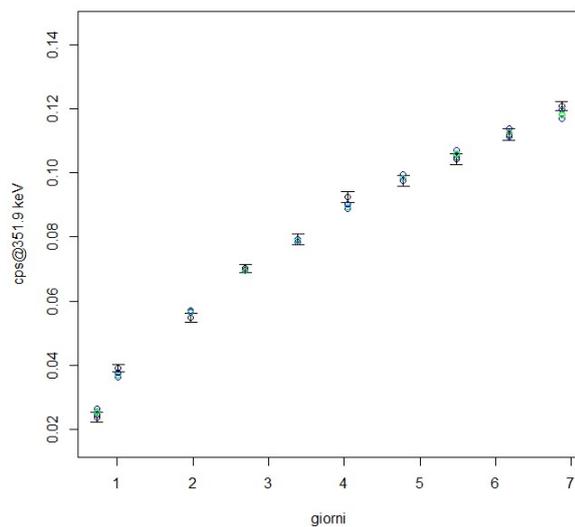


Figura 8 Campione A : cps^{mis} e cps^{sim} (blu fino a che $|P_{vera} - P| > 0.01$, verde quando $|P_{vera} - P| < 0.01$).

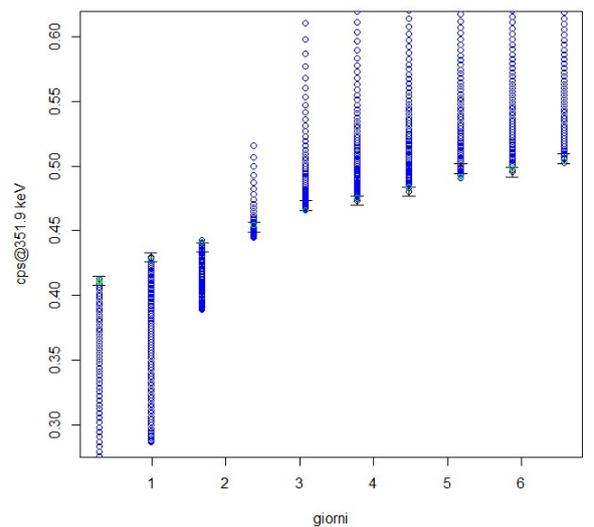


Figura 9 Campione B : cps^{mis} e cps^{sim} (blu fino a che $|P_{vera} - P| > 0.01$, verde quando $|P_{vera} - P| < 0.01$).

In blu sono visualizzate le serie dei cps^{sim} a partire da $P = 0$ fino a che $|P_{vera} - P| > 0.01$, in verde quando $|P_{vera} - P| < 0.01$. Si osserva che, nel caso del campione A, le situazioni simulate sono

numericamente inferiori a quelle relative al campione B e quindi la P_{vera} del campione A sarà inferiore a quella del campione B.

Un'ulteriore caratteristica che offre il programma è la possibilità di visualizzare i valori ipotetici dell'attività iniziale di ^{226}Ra al variare di P . Come si vede dalla Figura 10, avvicinandosi P a P_{vera} , la deviazione standard delle attività iniziali di ^{226}Ra simulate ($\sigma(A_{Ra226}^0(P))$) diminuisce fino a quando $P = P_{vera}$ e quindi anche la $\sigma(A_{Ra226}^0(P))$ risulta minima.

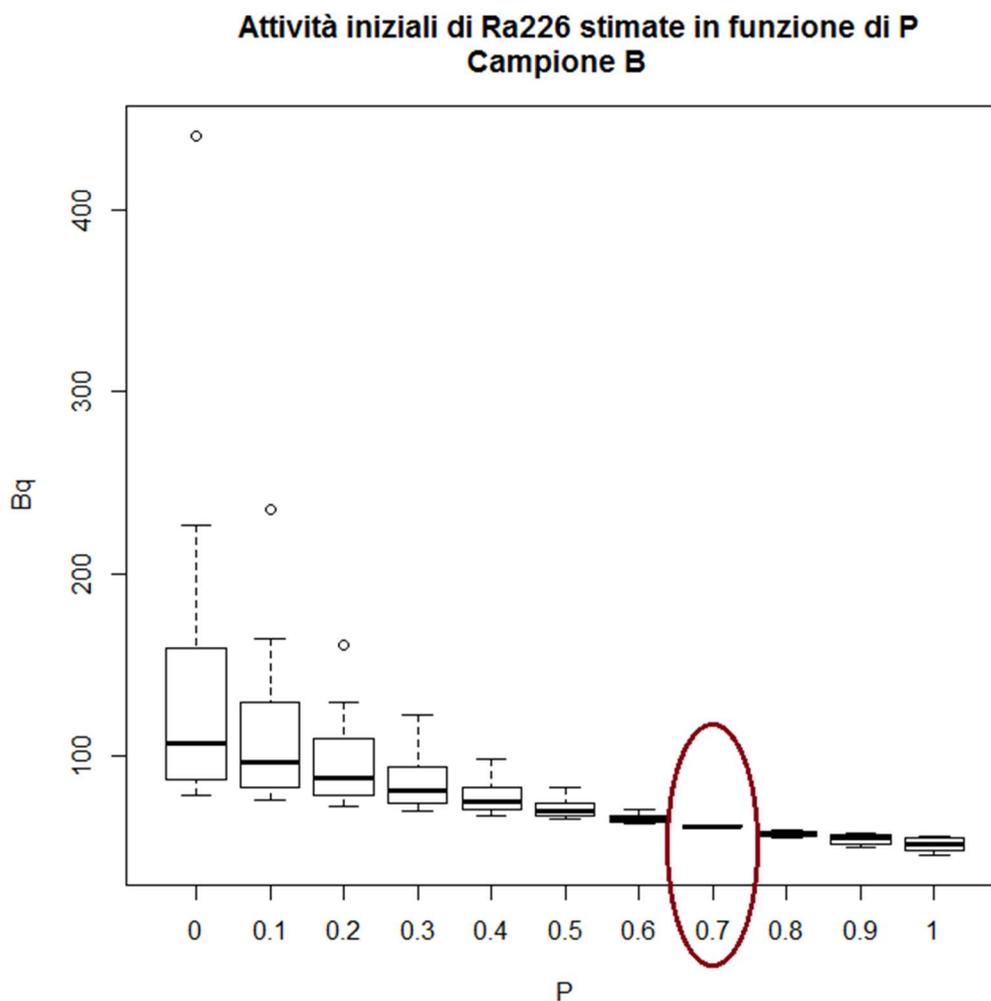
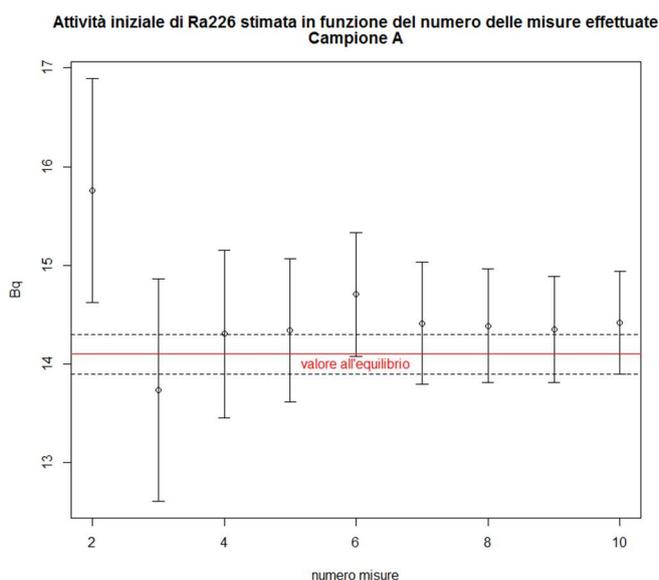


Figura 10 Attività iniziali di ^{226}Ra , in funzione di P (tra 0 e 1 a step di 0.1). E' evidenziato il valore di P vicino a cui la $\sigma(A_{Ra226}^0(P))$ risulta minima

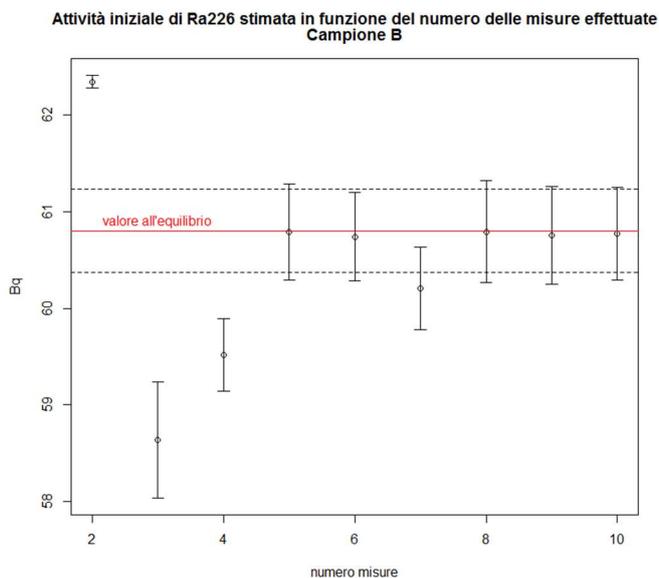
I RISULTATI

Nelle figure seguenti sono presentati i valori delle attività iniziali stimate di ^{222}Rn $\overline{A_{Ra226}^0(P_{vera})} \pm \sigma(A_{Ra226}^0(P_{vera}))$ in funzione del numero di misure effettuate per i due campioni misurati. L'incertezza considerata è solamente quella di conteggio con un fattore di copertura $K=1$, in quanto le altre componenti (efficienza, autoassorbimento, decadimento) incidono alla stessa maniera sia prima sia dopo il raggiungimento dell'equilibrio.



Numero misure	P_{vera}	$\overline{A_{Ra226}^0(P_{vera})}$	$\sigma(A_{Ra226}^0(P_{vera}))$
2	0	15.7	1.1
3	0.03	13.7	1.1
4	0.02	14.3	0.8
5	0.02	14.3	0.8
6	0.01	14.7	0.6
7	0.02	14.4	0.6
8	0.02	14.4	0.6
9	0.02	14.3	0.5
10	0.02	14.4	0.5

Figura 11 Campione A: $\overline{A_{Ra226}^0(P_{vera})} \pm \sigma(A_{Ra226}^0(P_{vera}))$ in funzione del numero di misure. In rosso il valore ricavato dal picco a 351,9 keV una volta raggiunto l'equilibrio tra ^{226}Ra e ^{222}Rn . Le incertezze sono quelle di conteggio con un fattore di copertura $K=1$



Numero misure	P_{vera}	$\overline{A_{Ra226}^0(P_{vera})}$	$\sigma(A_{Ra226}^0(P_{vera}))$
2	0.7	62.3	0.1
3	0.8	58.1	0.6
4	0.74	59.6	0.4
5	0.72	60.8	0.5
6	0.72	60.7	0.5
7	0.73	60.2	0.4
8	0.72	60.8	0.5
9	0.72	60.7	0.5
10	0.72	60.8	0.5

Figura 12 Campione B: $\overline{A_{Ra226}^0(P_{vera})} \pm \sigma(A_{Ra226}^0(P_{vera}))$ in funzione del numero di misure. In rosso il valore ricavato dal picco a 351,9 keV una volta raggiunto l'equilibrio tra ^{226}Ra e ^{222}Rn . Le incertezze sono quelle di conteggio con un fattore di copertura $K=1$.

I valori di concentrazione del ^{226}Ra ricavati dal picco a 351,9 keV del ^{214}Pb una volta raggiunto l'equilibrio ^{226}Ra e ^{222}Rn sono:

CAMPIONE A	14.1 ± 0.2 Bq
CAMPIONE B	60.7 ± 0.4 Bq

Si osserva che:

- A partire dalla terza misura per il campione A e dalla quinta per il campione B, i risultati forniti dal programma sono coerenti con il risultato ottenuto tramite la misura effettuata dopo aver atteso che si raggiungesse l'equilibrio tra il ^{226}Ra e ^{222}Rn .
- Rimane da approfondire la presenza di alcuni outlier relativi alle prime misure del campione B. Le prime due misure forniscono praticamente la stessa stima dell'attività iniziale di ^{226}Ra che però differisce da quella all'equilibrio del 2.6%, scostamento non ricompreso nelle relative incertezze. Si potrà approfondire il calcolo dell'incertezza sull'attività iniziale di ^{226}Ra stimata, che in questo lavoro è considerata pari alla deviazione standard (corretta per piccoli campioni) delle $A_{Ra226}^0(P_{vera})$.
- In tutte e due le serie di misure, il valore stimato di A_{Ra226}^0 in funzione del numero di misure è prima sovrastimato (per $n=2$), successivamente sottostimato (rispettivamente per $n=3$ e $n=3,4$) per poi assestarsi sul valore corretto. Sarà da approfondire se questo andamento è legato al numero di misure oppure al fatto che queste misure sono state effettuate nei primi giorni di chiusura del campione.

CONCLUSIONI

Il metodo presentato e oggetto di sperimentazione e verifica, costituisce un utile strumento per la misura della concentrazione di attività del ^{226}Ra in matrici di varia natura in tempi relativamente brevi. Esso può essere di particolare utilità per situazioni in cui è richiesta una valutazione in tempi brevi, come nel caso di rinvenimento di scorie o rifiuti.

BIBLIOGRAFIA

- [1] Qi Li et al. *Determination of ^{226}Ra Activity Using Gamma Spectrometry with ^{226}Ra - ^{222}Rn Disequilibrium*, Health Phys. 2015 Aug;109(2):113-6
- [2] D. S. Pressyanov, *Short solution of the radioactive decay chain equations*, Am. J. Phys. 70, 444-445 [2002]
- [3] Vidmar, T. *EFFTRAN - a Monte Carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry*, Nuclear Instruments and Methods A 550, 603-608 [2005]