

DESTINO DEI RADIONUCLIDI NEGLI IMPIANTI DI DEPURAZIONE DELLE ACQUE REFLUE URBANE

Alida Cosenza¹, Salvatore Rizzo², Antonio Sansone Santamaria³, Gaspare Viviani¹

¹*Dipartimento di Ingegneria Civile, Ambientale, Aerospaziale, dei Materiali (DICAM), Università di Palermo*

²*Dipartimento Energia, Ingegneria dell'Informazione e Modelli Matematici (DEIM), Università di Palermo*

³*Struttura Territoriale di Palermo di ARPA Sicilia*

SOMMARIO

Lo studio presentato in questo lavoro ha avuto come obiettivo il monitoraggio e l'analisi del destino dei radionuclidi negli impianti di depurazione ed è stato condotto in collaborazione tra l'Università di Palermo e ARPA Sicilia. Esso ha previsto lo svolgimento di due fasi sperimentali. Nel corso della prima sono stati monitorati gli impianti di depurazione a servizio dei Comuni di Palermo (in località Acqua dei Corsari e Fondo Verde), Bagheria e Cefalù; nella seconda fase l'indagine è stata limitata al solo impianto di Acqua dei Corsari, nel quale si erano riscontrati in precedenza i maggiori spunti di interesse.

In entrambe le fasi sono stati prelevati campioni istantanei in diverse sezioni degli impianti oggetto del monitoraggio: influente, vasca a fanghi attivi, ricircolo di fango, effluente del sedimentatore secondario e fango disidratato. I campioni sono stati analizzati con l'obiettivo di determinare l'attività dei principali radioisotopi di origine antropica, per via del loro uso medicale, o presenti nell'ambiente. L'identificazione e la quantificazione dell'attività dei radioisotopi nei campioni prelevati sono state condotte mediante tecniche di spettrometria gamma, utilizzando le strumentazioni disponibili presso l'Università di Palermo e il Laboratorio di radioattività della Struttura Territoriale di Palermo di ARPA Sicilia.

Le attività dei radionuclidi rilevate nei vari punti di campionamento sono state utilizzate per la valutazione del rischio radiologico dei lavoratori e verificare il rispetto dei limiti di esposizione.

I risultati ottenuti hanno generalmente evidenziato che il radiosotopo maggiormente presente nei campioni analizzati è risultato lo ¹³¹I, verosimilmente a causa del suo elevato tempo di dimezzamento. Inoltre è stata riscontrata una maggiore affinità dei radionuclidi nei confronti della componente solida presente nelle acque reflue, circostanza questa che comporta il loro progressivo trasferimento nei fanghi di depurazione, con particolare riferimento, per lo ¹³¹I alla frazione organica in essi presente. Tuttavia le attività di ¹³¹I rilevate nei fanghi depurazione sono risultate inferiori ai valori limite imposti dalla normativa vigente (D.Lgs. 230/95, D.Lgs. 241/00), per il loro smaltimento.

1. INTRODUZIONE

La presenza di contaminanti non convenzionali, all'interno di acque superficiali e reflue, costituisce una problematica di notevole interesse in ambito tecnico-scientifico, in relazione agli effetti che tali composti possono produrre sull'ambiente e sulla salute umana. Infatti, a causa delle loro caratteristiche chimico-fisiche, alcuni di essi sono in grado di causare la distruzione del sistema endocrino nonché di incidere sul sistema ormonale di sviluppo degli organismi acquatici e della fauna in generale. Tali contaminanti, i cui limiti per lo scarico nei corpi ricettori sono tutt'oggi ancora non normati o al più in fase di valutazione, comprendono farmaci, droghe, contraccettivi, steroidi, prodotti per l'igiene personale, filtri solari, repellenti per gli insetti, antisettici, detersivi e radionuclidi (Richardson e Ternes, 2011).

In tale contesto, il crescente utilizzo per scopi diagnostici e terapeutici di traccianti radioattivi e di radiofarmaci in medicina nucleare, verificatosi nell'ultimo ventennio, ha incrementato l'interesse del mondo scientifico nei confronti del destino degli scarichi e dei rifiuti liquidi generati e dei

radionuclidi in essi contenuti. Entrambi costituiscono infatti il veicolo attraverso cui viene influenzata l'esposizione alle radiazioni della popolazione. Uno dei percorsi attraverso cui la pratica della medicina nucleare può influenzare tale esposizione è la contaminazione dell'ambiente causata da sospensioni e soluzioni di sostanze radioattive e dai rifiuti biologici escreti dai pazienti trattati. Le sostanze radioattive, una volta somministrate al paziente, vengono infatti immesse nella rete fognaria in modo diretto o indiretto. Il percorso diretto riguarda i reflui prodotti all'interno delle strutture ospedaliere; essi sono generalmente immessi in fognatura previo stoccaggio in vasche di diluizione e/o decadimento aventi l'obiettivo di ridurre l'attività. La via indiretta di immissione in fognatura, meno controllabile, riguarda invece quella delle deiezioni dei pazienti trattati non degenti (Martin and Fenner, 1997; Chapel et al., 2002; Cooper et al., 2003). In ogni caso, i reflui così immessi in fognatura raggiungono gli impianti di depurazione, dove la radioattività contenuta nei reflui alimentati all'impianto può trasferirsi nei due flussi in uscita dall'impianto stesso (effluente depurato e fango disidratato) e da qui immettersi nell'ambiente. Peraltro, poco nota è l'efficacia degli impianti di depurazione nella rimozione di contaminanti non convenzionali, quali i radionuclidi, stante che essi sono progettati per rimuovere inquinanti di tipo convenzionale (carbonio organico, azoto ammoniacale, ortofosfati, etc.) (Krawczyk et al., 2013).

Dallo studio condotto da Montaña et al. (2011), sulla presenza di radionuclidi in 11 impianti di depurazione spagnoli, è emerso che il trattamento convenzionale di depurazione delle acque reflue rimuove efficacemente fino al 91% di emettitori alfa dalle acque di scarico, mantenendo inalterati gli emettitori beta. Gli Autori hanno altresì evidenziato che bassi valori di pH, comportando la diminuzione della solubilità degli emettitori alfa, determinano un maggiore trasferimento degli isotopi radioattivi dalla fase liquida a quella solida, favorendone l'allontanamento dall'impianto di depurazione coi fanghi. In alcuni casi però gli stessi Autori hanno osservato un aumento dell'attività alfa nei campioni liquidi durante il trattamento; tale aumento è stato giustificato dall'elevato grado di incertezza delle misure dovuto alle basse attività. Camacho et al. (2012), al fine di approfondire i risultati relativi all'aumento dell'attività alfa presentati da Montaña et al. (2011), hanno monitorato le singole unità di trattamento di due impianti di depurazione spagnoli al fine di individuare il processo di trattamento in cui tale aumento ha luogo. Gli Autori hanno addebitato l'aumento dell'attività alfa all'incremento degli isotopi di uranio (^{234}U , ^{235}U , ^{238}U) per via della dissoluzione o del desorbimento degli stessi avvenuto all'interno dell'unità di sedimentazione secondaria. Recentemente Sancho et al. (2013) hanno investigato l'efficacia dei trattamenti di separazione a membrana nel trattamento diretto dei rifiuti liquidi prodotti a seguito dell'utilizzo della tecnica del dosaggio radioimmunologico (RIA). La ricerca è stata principalmente dedicata alla valutazione della capacità dei sistemi di ultrafiltrazione (UF) e di osmosi inversa (OI) di rimuovere la radioattività e gli agenti patogeni presenti in tali rifiuti liquidi. Gli Autori hanno individuato nella combinazione di UF e OI (con triplo passaggio dopo trattamento di UF) il ciclo di trattamento ideale per i rifiuti liquidi generati dal dosaggio RIA.

L'analisi bibliografica qui presentata conferma la frammentarietà delle informazioni tutt'ora disponibili sul destino dei radionuclidi negli impianti di depurazione e la scarsa conoscenza dell'influenza che i processi di depurazione hanno sulla radioattività contenuta nei reflui da trattare. Il monitoraggio della presenza di radionuclidi nelle varie unità componenti un impianto di depurazione e l'analisi della ripartizione dei radionuclidi tra le matrici liquida e solida sono di fondamentale importanza, al fine di comprendere quale sia la via preferenziale per il trasferimento della radioattività nell'ambiente.

In tale contesto si inquadra il presente lavoro, il cui obiettivo primario è stato quello di dare un contributo di conoscenza sul ruolo assunto dagli impianti di depurazione nella rimozione e/o nel trasferimento nell'ambiente della radioattività contenuta nelle acque reflue ad essi avviati, attraverso le matrici liquide e solide da essi uscenti. Come casi di studio, sono stati scelti gli impianti di depurazione a servizio dei Comuni di Palermo (in località Acqua dei Corsari e Fondo Verde), Bagheria e Cefalù; essi sono stati oggetto di specifiche campagne di analisi, finalizzate a valutare sia la presenza dei radionuclidi negli affluenti in ingresso e uscita dagli impianti, sia la loro

modificazione in corrispondenza delle principali unità componenti gli impianti; i risultati così ottenuti sono stati altresì messi in relazione con alcuni parametri caratteristici degli impianti, al fine di valutare gli eventuali effetti che le modalità operative di questi possono avere sul destino dei radionuclidi.

2. MATERIALI E METODI

2.1 DESCRIZIONE DELLA CAMPAGNA SPERIMENTALE E DEGLI IMPIANTI MONITORATI

La campagna sperimentale, eseguita nel periodo compreso tra ottobre 2012 e marzo 2013, è stata suddivisa in due distinte fasi. Nel corso della prima fase sono stati monitorati quattro impianti di depurazione ricadenti nella Provincia di Palermo, di cui due a servizio della città di Palermo (in località Acqua dei Corsari e Fondo Verde) e i rimanenti due a servizio delle città di Bagheria e Cefalù; nella seconda fase il monitoraggio è stato limitato al solo impianto di depurazione di Acqua dei Corsari. I quattro impianti sono stati individuati a seguito di un'indagine sulle fonti di pressione sul territorio; in tali impianti recapitano infatti le acque reflue provenienti dalle più grandi strutture sanitarie di Medicina Nucleare della Provincia di Palermo.

Il ciclo di trattamento previsto in tutti gli impianti monitorati può essere schematizzato dal layout riportato in Figura 1; fa eccezione l'impianto di Bagheria, in quanto privo dell'unità di sedimentazione primaria.

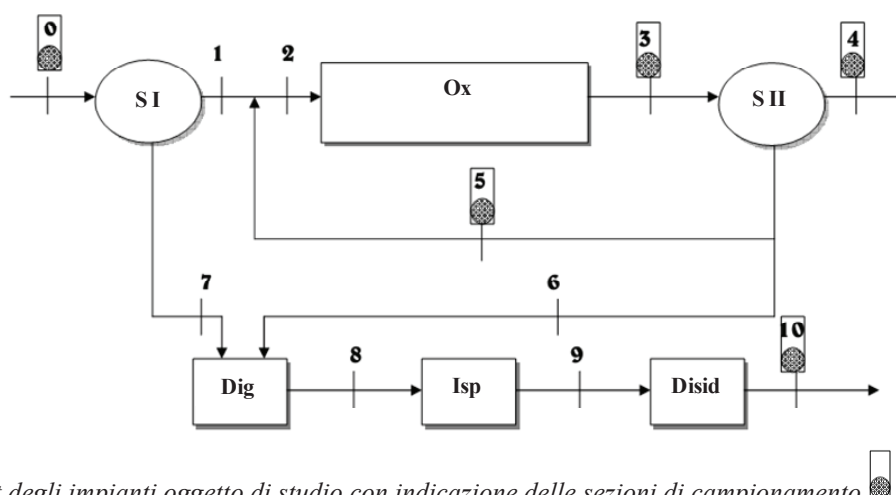


Figura 1. Layout degli impianti oggetto di studio con indicazione delle sezioni di campionamento

In Tabella 1 sono sintetizzate le principali caratteristiche degli impianti oggetto di monitoraggio. Da una sua analisi si rileva che tutti gli impianti comprendono un ciclo depurativo di tipo convenzionale, con una “linea acque” dotata di trattamenti fisico-biologici mirati alla rimozione dal refluo grezzo di: materiale grossolano (unità di grigliatura o stacciatura); materiale inerte (unità di dissabbiatura); sospensioni oleose (unità di disoleatura); sostanze organiche sedimentabili (unità di sedimentazione primaria); sostanze organiche sedimentabili e non sedimentabili (reattore biologico a fanghi attivi e unità di sedimentazione secondaria); azoto (reattori biologici di nitrificazione e di denitrificazione); carica batterica (unità di disinfezione) (Metcalf and Eddy, 2003). I trattamenti facenti parte della “linea fanghi” sono invece mirati a stabilizzare il fango prodotto nella linea acque, a mezzo dell'unità di digestione aerobica, e a ridurre l'umidità e quindi il volume dei fanghi stabilizzati, a mezzo delle unità di ispessimento e disidratazione.

In Figura 1 sono indicate le sezioni di campionamento dei reflui che sono stati sottoposti a successiva analisi di laboratorio. In particolare, nella prima fase è stato eseguito un campionamento in corrispondenza delle sezioni 0 (influyente grezzo a valle dei pretrattamenti), 3 (miscela aerata), 4 (chiarificato del sedimentatore secondario) e 10 (fango disidratato).

Denominazione	Località	Recapito effluente liquido	Linea Acque	Linea Fanghi	Conferimento Fanghi	Potenzialità [a.e.]	Q_{in} [$m^3 h^{-1}$]
Fondo-Verde	Palermo	Fognatura	Gr/Dis/Diso/Preden /Desolf Chim/S II/Disinf	Dig_Aer/Isp/Disid	Discarica	105.000	821
Acqua dei Corsari	Palermo	Mar Tirreno (CS)	Gr/Dis/Diso/S I/ Ox/S II	Dig_Aer/Isp/Disid	Discarica	440.000	6.400
Bagheria	Bagheria	Mar Tirreno (CS)	Gr/Dis/Diso/Equal/ Ox/S II/Disinf	Dig_Aer/Isp/Disid	Discarica	61.000	1.852
Cefalù	Cefalù	Mar Tirreno (CS)	Stac/S I/Ox1/Ox2/S II/Disinf	Dig_Aer/Isp/Disid	Compostaggio	15.000	890

Tabella 1. Caratteristiche principali degli impianti monitorati. CS: condotta sottomarina; Gr: grigliatura; Dis: Dissabbiatura; Preden: predenitrificazione; Desolf Chim: desolfatazione chimica; S I: sedimentazione primaria; S II: sedimentazione secondaria; Ox: ossidazione con trattamento biologico a fanghi attivi; Disinf: disinfezione; Isp: ispessimento; Dig_Aer: digestione aerobica; Disid: disidratazione; Q_{in} : portata media influente.

Nella seconda fase sono state eseguiti invece tredici campionamenti con frequenza quindicinale e con prelievi anche in corrispondenza della sezione 5 (fango di secondario di ricircolo). Nel corso della prima fase sperimentale sono stati ricercati soltanto i radionuclidi di origine artificiale, utilizzati in medicina (^{131}I , ^{111}In , ^{67}Ga , ^{99}Mo - ^{99m}Tc) e presenti nell'ambiente (^{137}Cs); nella seconda fase, sulla base dei risultati ottenuti in precedenza, si è deciso di limitare la ricerca solo al radioisotopo ^{131}I . Per ognuno dei campioni prelevati nel corso della seconda fase è stata determinata la concentrazione di solidi sospesi totali (SST).

Infine, per il solo impianto di Acqua dei Corsari sono state eseguite misure di rateo di equivalente di dose ambientale, fatte mediante scintillatore plastico AUTOMESS 6150 AD-b/H, che sono state messe a confronto con la dose equivalente annua di radioattività a cui i lavoratori sono esposti, appositamente calcolata.

2.2 MISURA DELL'ATTIVITA'

La determinazione qualitativa e quantitativa dei nuclidi radioattivi gamma-emettitori è stata effettuata mediante la tecnica della spettrometria gamma. Con tale tecnica, ove il campione esaminato sia radioattivo ed emetta raggi gamma, i fotoni emessi dal campione possono essere rilevati con opportuni rivelatori che danno luogo ad impulsi elettrici di altezza proporzionale all'energia dissipata dai fotoni. Gli impulsi elettrici emessi vengono dunque amplificati e classificati in base alla loro altezza. Poiché gli impulsi elettrici, dovuti a effetto fotoelettrico, sono caratteristici dell'energia del fotone emesso dal particolare isotopo, tramite la loro determinazione è possibile risalire agli isotopi emettitori e alle loro attività. Il sistema spettrometrico gamma utilizzato nel corso delle misure è schematizzato in Figura 2.

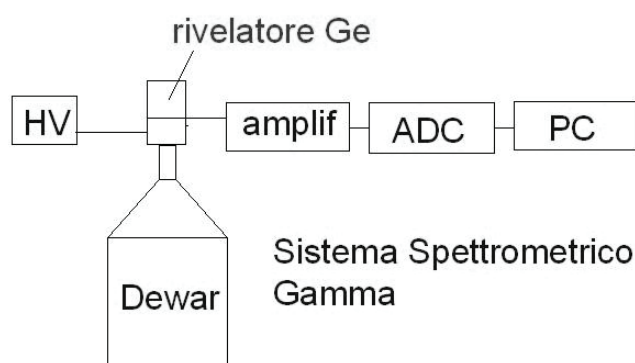


Figura 2. Schema della catena di conteggio per la spettrometria gamma. HV: Alimentatore; Rivelatore Ge: Rivelatore al germanio iperpuro (HPGe); Dewar: criostato; amplif: Amplificatore; ADC: Convertitore Analogico Digitale; PC: Computer.

La catena di conteggio riportata in figura è composta di: un alimentatore (HV) avente la funzione di polarizzare il rivelatore; un rivelatore; un criostato (Dewar) avente la funzione di ridurre la temperatura del rivelatore nel corso dell'acquisizione grazie all'utilizzo di azoto liquido; un amplificatore che origina impulsi di forma gaussiana o triangolare a partire da un segnale che presenta tipicamente un fronte di salita molto rapido ed una curva di discesa molto lunga; un multicanale che attraverso un convertitore analogico digitale (ADC) digitalizza l'ampiezza dell'impulso entrante e incrementa un canale di memoria il cui indirizzo è proporzionale al valore digitalizzato; un computer (PC) che memorizza i dati acquisiti dal multicanale.

L'analisi degli spettri di energia emessi dai fotoni gamma e, nello specifico, dei fotopicchi consente l'individuazione del radionuclide di origine. La determinazione dell'attività del radionuclide individuato richiede la preventiva taratura "in efficienza" della strumentazione e l'acquisizione di uno spettro di fondo. La taratura in efficienza viene effettuata utilizzando una sorgente di riferimento contenente un gruppo di isotopi di attività nota. Una volta acquisito lo spettro della sorgente di riferimento, in corrispondenza delle energie dei picchi, viene determinata l'efficienza di rivelazione (ϵ), ossia la frazione di raggi gamma rivelati per effetto fotoelettrico per ogni raggio emesso dalla sorgente. L'attività A_i del generico radioisotopo i viene calcolata con l'espressione:

$$A_i = \frac{C}{T I \epsilon} \quad [\text{Bq}] \quad [1]$$

dove C rappresenta l'area netta del picco relativo all'isotopo i calcolata decurtando dall'area totale la porzione relativa al fondo Compton ed alle eventuali interferenze, T è il tempo di conteggio, eventualmente corretto, per il decadimento dell'isotopo radioattivo, I è il numero di raggi gamma emessi per ogni disintegrazione (intensità) e ϵ rappresenta l'efficienza di rivelazione. Noto il peso del campione misurato, è possibile determinare l'attività del radionuclide nel campione analizzato in Bq/kg.

2.3 CONDUZIONE DELLE MISURE

I campioni prelevati, senza alcun pretrattamento, venivano inseriti nel beaker Marinelli che, una volta sigillato, era utilizzato direttamente per la misura, in quanto ha una forma adatta al rivelatore utilizzato. Nello studio come rivelatore è stato utilizzato un cristallo di germanio iperpuro (HPGe) avente geometria coassiale; la scelta di adottare un rivelatore a semiconduttore piuttosto che uno a scintillazione è stata dettata dalla necessità di discriminare picchi di energia presenti nello spettro dei raggi gamma molto prossimi (Bruzzi et al., 1990; Knoll, 2000). Il tempo di acquisizione degli spettri di energia nel corso della prova è stato fissato a 80.000 secondi. L'acquisizione dei dati e la successiva elaborazione è stata eseguita adottando il software Gammavision della Ametek. I valori di attività dei radionuclidi rilevati nei campioni analizzati sono stati riferiti sia alla massa totale del campione (Bq/kg_{ww}), sia alla sua massa secca (Bq/kg_{dw}).

Le misure di radioisotopi sono state eseguite presso il Laboratorio di Misure Nucleari del DEIM dell'Università di Palermo e presso il Laboratorio di Radioattività della Struttura Territoriale di Palermo di ARPA Sicilia. Le ulteriori misure delle caratteristiche fisico-chimiche dei campioni prelevati sono state eseguite presso il Laboratorio di Ingegneria sanitaria-ambientale del DICAM dell'Università di Palermo.

2.4 MISURA DELLA DOSE

Il calcolo della dose equivalente per i lavoratori dell'impianto di depurazione di Acqua dei Corsari è stato effettuato facendo ricorso al codice Montecarlo MCNP4C2 (Briesmeister, 2000). Esso simula il trasporto delle radiazioni emesse da una sorgente e consente la stima del numero di radiazioni che raggiungono un dato volume e l'energia depositata nella sua massa. Il rapporto tra energia depositata e massa del volume rappresenta la dose assorbita. La determinazione della dose

assorbita da un individuo è importante in quanto ad essa è associato il danno radiologico subito dallo stesso.

Il calcolo della dose assorbita dal generico lavoratore è stato eseguito considerando due diversi scenari: 1) il lavoratore rimane a contatto con il cassone di accumulo del fango disidratato per un tempo pari a 1.000 ore in un anno (8 ore al giorno per 25 settimane), col cassone pieno al 50% del suo volume; 2) il lavoratore percorre la passerella tra le vasche di ossidazione e i sedimentatori secondari. Relativamente allo scenario 1) è stato ipotizzato che il cassone fosse largo 2 m, lungo 4 m e alto 1,5 m e che l'attività di ^{131}I presente nel fango fosse pari al valore massimo (150 Bq/kg) riscontrato durante la seconda fase sperimentale. Per quanto riguarda lo scenario 2) è stato invece ipotizzato che il valore di ^{131}I nella miscela aerata fosse pari al valore medio misurato (10 Bq/kg) nel corso della seconda fase sperimentale.

3. RISULTATI E DISCUSSIONE

3.1 PRIMA FASE SPERIMENTALE

I risultati relativi alla prima fase sperimentale sono sintetizzati in Tabella 2. In particolare, nella tabella sono riportati per ognuno dei quattro impianti monitorati: il valore di attività dei radioisotopi individuati (^{131}I , ^{67}Ga , ^{111}In , ^{137}Ce , ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$), espresso in Bq/Kgww,; il valore della minima attività rilevabile (MDA) dallo strumento di misura; il valore percentuale dell'incertezza di misura (Inc.).

Depur.	Matr. amb.	^{131}I			^{67}Ga			^{111}In			^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$			^{137}Ce		
		Att. (Bq/kg)	Inc. (%)	MDA (Bq/kg)	Att. (Bq/kg)	Inc. (%)	MDA (Bq/kg)	Att. (Bq/kg)	Inc. (%)	MDA (Bq/kg)	Att. (Bq/kg)	Inc. (%)	MDA (Bq/kg)	Att. (Bq/kg)	Inc. (%)	MDA (Bq/kg)
Acqua dei Corsari	Sez.0	ND		0.079	ND		0.424	ND		0.586	ND		0.073	ND		0.07
	Sez.3	0.422	21.59	0.134	ND		1.256	ND		0.222	ND		0.285	ND		0.082
	Sez.4	ND		0.157	ND		1.967	ND		0.370	ND		0.459	ND		0.082
	Sez.10	9.887	10.475	0.340	ND		4.415	ND		0.885	ND		1.094	0.329	19.647	0.104
Bagheria	Sez.0	ND		0.077	ND		0.379	ND		0.062	ND		0.055	ND		0.081
	Sez.3	0.273	19.399	0.082	ND		0.397	ND		0.065	ND		0.058	ND		0.087
	Sez.4	ND		0.083	ND		0.416	ND		0.065	ND		0.0587	ND		0.079
	Sez.10	ND		0.127	ND		0.655	ND		0.105	ND		0.0892	ND		0.09
Fondo Verde	Sez.0	ND		0.07	ND		0.5	15.19		0.08	ND		0.08	ND		0.06
	Sez.3	ND		0.30	ND		ND			3.72	ND		4.24	ND		0.08
	Sez.4	ND		0.36	ND		ND			10.10	ND		11.98	ND		0.06
	Sez.10	1.49	26.53	0.56	72.10	32.63	34.29	ND		11.58	ND		13.97	0.38	25.52	0.12
Cefalù	Sez.0	ND		0.09	ND		0.421	ND		0.351	ND		0.044	ND		0.08
	Sez.3	0.59	52.48	0.48	ND		1.24	ND		0.39	ND		25.71	ND		0.06
	Sez.4	ND		0.146	ND		1.85	ND		0.063	ND		0.053	ND		0.06
	Sez.10	10.20	11.52	0.63	ND		153	ND		0.5	ND		40.38	ND		0.08

Tabella 2. Sintesi dei risultati relativi alla prima fase della campagna sperimentale. MDA: Minima Attività Rilevabile, ND: Not Detected. I valori dell'attività e dell'MDA sono espressi in Bq/kgww

Dall'analisi dei valori riportati in Tabella 2 si evidenzia che l'unico isotopo presente nella maggior parte dei campioni analizzati, con attività superiore alla MDA, è lo ^{131}I . Tale risultato è da addebitare sia all'elevato tempo di dimezzamento, sia al grande utilizzo di tale isotopo in medicina nucleare, per il trattamento del carcinoma papillare e follicolare della tiroide. I dati riportati in Tabella 2 evidenziano inoltre una maggiore contrazione di ^{131}I nei campioni di fango disidratato (sezione 10). Tale risultato, in accordo a quanto riscontrato in letteratura, è da addebitare alla capacità dei radionuclidi di aggregarsi al materiale organico particellato, circostanza questa che ne determina di conseguenza l'accumulo nei fanghi (Ipek et al., 2004; Palomo et al., 2010, Montaña et al., 2011).

Le attività di ^{67}Ga , ^{111}In , ^{137}Ce e ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ sono invece risultate nel 94% dei campioni analizzati inferiori al limite critico di rilevazione dello strumento. Anche la presenza di ^{111}In è da addebitare ad attività di medicina nucleare. Infatti l' ^{111}In è contenuto nella maggior parte dei radiofarmaci utilizzati per le applicazioni scintigrafiche.

3.2 SECONDA FASE SPERIMENTALE

Sulla base dei risultati ottenuti nella prima fase, si è deciso di limitare il monitoraggio al solo impianto di Acqua dei Corsari e di ricercare il solo radionuclide ^{131}I , maggiormente presente nei campioni precedentemente analizzati. In Figura 3 sono sintetizzati i risultati ottenuti nella seconda fase d'indagine, relativi alle attività specifiche di ^{131}I , espresse in termini di Bq/kgdw, misurate nei campioni analizzati. In particolare, nelle Figure 3a e 3b sono rispettivamente riportate le attività relative al refluo influente (sezione 0) e al chiarificato del sedimentatore secondario (sezione 4); in Figura 3c sono invece riportate le attività relative alla miscela aerata (sezione 3), al fango secondario di ricircolo (sezione 5) e al fango disidratato (sezione 10). Va precisato che per i campioni relativi al refluo influente e a quello effluente, stante le basse concentrazioni di SST (in media <100 mg/L), i valori espressi in termini di Bq/kgdw sono prossimi a quelli espressi in termini di Bq/kgww, qui per brevità non riportati.

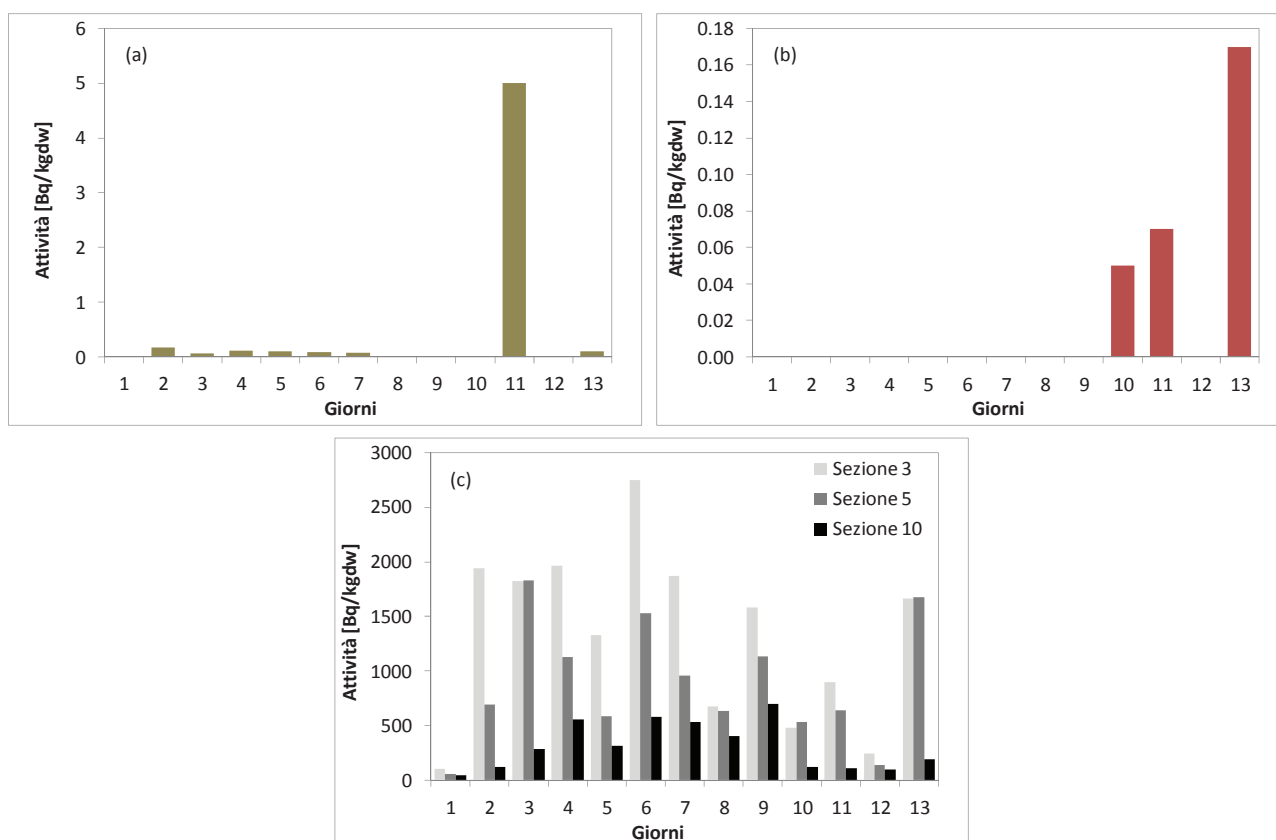


Figura 3. Attività specifica di ^{131}I nei campioni relativi a: refluo influente (sezione 0) (a); effluente chiarificato del sedimentatore secondario (sezione 4) (b); miscela aerata (sezione 3), fango secondario di ricircolo (sezione 5) e fango disidratato (sezione 10) (c). I giorni di campionamento sono da intendersi con cadenza quindicinale. I valori sono espressi in Bq/kgdw

L'attività di ^{131}I nel refluo influente è risultata in media pari a 0.44 Bq/kgdw (Figura 3a). Le variazioni di attività nei tredici campioni analizzati possono essere verosimilmente addebitate alla presenza nei reflui alimentati all'impianto di scarichi saltuari provenienti da strutture di medicina nucleare. A ciò va aggiunto il contributo prodotto dai pazienti non degenti, di difficile previsione. Inoltre, non è stato possibile valutare l'effetto di diluizione dello ^{131}I da parte dei reflui non contenenti tale sostanza, per via della saltuarietà e imprevedibilità con cui questa viene rilasciata in fognatura e avviata all'impianto di depurazione. Dall'analisi dei risultati riportati in Figura 3b si evidenzia che i valori di attività di ^{131}I nell'effluente chiarificato del sedimentatore secondario sono in media pari a 0.02 Bq/kgdw. Tenuto conto dell'istantaneità del campionamento è possibile affermare che il trattamento biologico depurativo ha scarsa incidenza ($<50\%$ escludendo il giorno 11) nella variazione dell'attività presente nella matrice liquida coinvolta.

I dati riportati in Figura 3c evidenziano che in tutti i campioni analizzati i valori di attività di ^{131}I risultano superiori nella miscela aerata (sezione 3). Tale circostanza, maggiormente evidente nei primi nove giorni di analisi, è stata addebitata alla tendenza dei radioisotopi ad aggregarsi alla matrice organica particellata. Tuttavia il maggiore accumulo nella miscela aerata, rispetto ai fanghi di ricircolo e al fango disidratato, è dovuto ai differenti tempi di residenza cellulare (o età del fango) e idraulica che le tre matrici (miscela aerata, fanghi di ricircolo e fango disidratato) hanno all'interno del sistema. Infatti, il tempo di residenza cellulare, che come è noto rappresenta il tempo medio di permanenza del fango nel sistema (Bonomo, 2008), è circa 5 volte superiore nel fango disidratato rispetto a quello della miscela aerata. Tale circostanza determina il maggiore decadimento dei radioisotopi nei campioni di fango disidratato. La maggiore tendenza dello ^{131}I di aggregarsi alla componente organica particellata, riscontrata nei primi nove giorni di analisi, è stata addebitata al fatto che nel corso degli ultimi quattro campionamenti le condizioni operative dell'impianto sono notevolmente cambiate. Infatti nel corso degli ultimi campionamenti a causa dell'impossibilità di procedere allo smaltimento del fango disidratato, le portate del fango di supero avviato alla linea fanghi dell'impianto sono state notevolmente ridotte, con conseguente incremento dell'età del fango da 25 giorni a 40 giorni. Tale circostanza ha determinato l'aumento del tempo di ritenzione del fango all'interno del sistema e il suo maggiore accumulo nella miscela aerata e il conseguente incremento del decadimento di ^{131}I . Infatti, i valori di attività di ^{131}I riportati in Figura 3c sono in alcuni casi perfino superiori al limite normative di 1000 Bq/kg imposto dal D.Lgs 241/00. Tuttavia è necessario precisare che i valori riportati in Figura 3c sono espressi in termini di sostanza secca (Bq/kgdw), mentre il limite introdotto dal D.Lgs 241/00, va riferito al campione tal quale, stante che la norma non fa distinzione tra valore di attività riferito al campione tal quale e alla sostanza secca in esso contenuta. Dall'analisi dei risultati di attività di ^{131}I sui campioni tal quali prelevati nelle sezioni 3, 5 e 10 (aventi un maggiore contenuto di sostanza secca) sono state comunque rilevate attività sempre inferiori al limite di norma.

3.3 VALUTAZIONE DEL RISCHIO RADIOLOGICO

Il risultato relativo al primo scenario di calcolo ha prodotto un valore di dose equivalente annua pari a 3.9 $\mu\text{Sv}/\text{anno}$. Tale valore è risultato insignificante, essendo pari a circa l'1% della dose annua dovuta alle radiazioni naturali in Sicilia al livello del suolo. Analogo risultato si è ottenuto per il secondo scenario di calcolo, in cui la dose equivalente annua è risultata pari a 0,4 $\mu\text{Sv}/\text{anno}$.

I risultati così ottenuti evidenziano quindi che le dosi equivalenti risultano ben inferiori al valore limite di 1 mSv/anno imposto dal D.Lgs.241/00 per discriminare tra lavoratori "esposti" (>1 mSv/anno) e "non esposti" (<1 mSv/anno).

Questi risultati sono in accordo con le misure di rateo di equivalente di dose ambientale, eseguite in diversi punti dell'impianto. Queste infatti non differiscono molto e danno un valore medio 56 nSv/h, con oscillazioni fra 35 e 85 nSv/h. Ciò conferma che le misure eseguite sono dovute al fondo naturale e che l'apporto della radioattività presente nei reflui è trascurabile.

4. CONCLUSIONI

Dai risultati del monitoraggio è emerso che il livello di contaminazione da sostanza radioattive nei quattro impianti monitorati è basso e non costituisce un rischio per l'esposizione esterna della popolazione, dei lavoratori e dell'ambiente. Infatti le attività specifiche di radioisotopi riscontrate nei campioni tal quali sono sempre inferiori al limite normativo di 1000 Bq/kg (D.Lgs. 241/00). Contrariamente allo ^{131}I , le attività di ^{67}Ga , ^{111}In , ^{137}Ce e $^{99\text{m}}\text{Tc}$ dei campioni prelevati nel corso della prima fase sperimentale sono risultate nel 94% dei campioni analizzati inferiori al limite critico di rilevazione dello strumento.

I risultati della seconda fase sperimentale hanno evidenziato un'influenza trascurabile dei processi depurativi per quanto attiene la frazione liquida nei confronti dei raggi gamma. Non sono infatti state rilevate variazioni sensibili di attività di ^{131}I tra i campioni relativi all'influente e

all'effluente dell'impianto di depurazione. E' stata invece riscontrata una spiccata tendenza dello ^{131}I ad aggregarsi alla matrice organica particellata e a trasferirsi dalla fase liquida a quella solida; l'attività di ^{131}I è risultata infatti molto maggiore nella miscela aerata e nei fanghi, rispetto ai valori rilevati nei reflui alimentati. Infine, in termini di dose equivalente annua, dalle misure effettuate i lavoratori dell'impianto di Acqua dei Corsari rientrano nella categoria di lavoratori "non esposti" in accordo alla classificazione del D.Lgs. 241/00.

RIFERIMENTI BIBLIOGRAFICI

- Bonomo, L. (2008). Trattamenti delle acque reflue. McGraw-Hill, 1st Edition, Milano.
- Briesmeister, J F (2000) MCNPTM—a general Monte Carlo N-particle transport code: version 4C Report LA- 13709-M (Los Alamos, NM: Los Alamos National Laboratory).
- Bruzzi, L., Cazzoli, S., Bolognini, C., Lorenzelli, R. (1990). Misure di radioattività naturale in materiali da costruzione. *Ceramica Acta* 2, 311-43.
- Camacho, A., Montaña, M., Vallés, I., Devesa, R., Céspedes-Sánchez, R., Serrano, I., Blázquez, S., Barjola, V. (2012). Behavior of natural radionuclides in wastewater treatment plants. *Journal of Environmental Radioactivity* 109, 76-83.
- Chapel, M., Ferrer, N., Ramos, L., Sánchez, M. (2002). Report of activities of the effluents group from radiation protection in medical facilities forum. Spanish Society on Medical Physics <http://www.sefm.es/docs/actsefm/INFORMEFINALGRUPOEFLUENTES.pdf>
- Cooper, J.R., Randle, K., Socki, R.S. (2003). Radioactive releases in the environment, impact and assessment. Wiley, Chichester.
- Decreto Legislativo 17 marzo 1995, n. 230. Attuazione delle direttive 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 2006/117/Euratom in materia di radiazioni ionizzanti e 2009/71/Euratom, in materia di sicurezza nucleare degli impianti nucleari. Gazzetta Ufficiale n. 136 del 13 giugno 1995 - Supplemento Ordinario n. 74.
- Decreto Legislativo 26 maggio 2000, n. 241. Attuazione della direttiva 96/29/EURATOM in materia di protezione sanitaria della popolazione e dei lavoratori contro i rischi derivanti dalle radiazioni ionizzanti. Gazzetta Ufficiale n. 203 del 31 agosto 2000 - Supplemento Ordinario n. 140.
- Ipek, U., Arslan, E.I., Aslan, S., Drogu, M., Baykara, O. (2004). Radioactivity in municipal wastewater and its behavior in biological treatment. *B. Environ. Contam. Tox.* 7(2), 319 - 325.
- Knoll, G.F. (2000). Radiation detection and measurement. 3rd Edition. John Wiley & Sons, Inc.
- Krawczyk, E., Piñero-García, F., Ferro-García, M.A. (2013). Discharges of nuclear medicine radioisotopes in Spanish hospitals. *Journal of Environmental Radioactivity* 116, 93-98.
- Martin, J.E., Fenner, F.D. (1997). Radioactivity in municipal sewage and sludge. *Public Health Reports* 112, 308-316.
- Metcalf & Eddy (2003). Wastewater Engineering, Treatment and Reuse. G. Tchobanoglous, F. L. Burton and H.D. Stensel. Fourth Edition, McGraw Hill Education.
- Montaña, M., Camacho, A., Devesa, R., Vallés, I., Céspedes, R., Serrano, I., Blázquez, S., Barjola, V. (2011). The presence of radionuclides in wastewater treatment plants in Spain and their effect on human health. *Journal of Cleaner Production* (in press), 1-6 doi:10.1016/j.jclepro.2011.07.007.
- Palomo, M., Peñalver, A., Aguilar, C., Borrull, F. (2010). Presence of naturally occurring radioactive materials in sludge samples from several Spanish water treatment plants. *J.Hazard. Mater.* 181, 716-721.
- Richardson, S.D., Ternes, A.T. (2011). Water Analysis: Emerging Contaminants and Current Issues. *Analytical Chemistry* 82, 4614-4648.
- Sancho, M., Arnal, J.M., García-Fayos, B. (2013). Treatment of hospital radioactive liquid wastes from RIA (radioimmunoassay) by membrane technology. *Desalination* 321, 110-118.