



1.19

Zannoni D., Cantaluppi C., Ceccotto F.,
Giacetti W., Lovisetto B.

**Fattori ambientali che modulano il contenuto di
 ^{131}I e ^{137}Cs nelle acque reflue urbane in un'area
del nord Italia: il caso delle province di Padova e
Vicenza**

**XXXVII Congresso
Nazionale AIRP
di radioprotezione**

Fattori ambientali che modulano il contenuto di ^{131}I e ^{137}Cs nelle acque reflue urbane in un'area del nord Italia: il caso delle province di Padova e Vicenza

Zannoni¹ D., Cantaluppi¹ C., Ceccotto¹ F., Giacetti² W., Lovisetto² B.

¹CNR-ICMATE (Consiglio Nazionale delle Ricerche – Istituto di Chimica della Materia condensata e di Tecnologie per l'Energia), C.so Stati Uniti 4, 35127 Padova, daniele.zannoni@icmate.cnr.it

²ETRA SpA (Energia Territorio Risorse Ambientali), Largo Parolini 82, 36061 Bassano del Grappa (VI)

Riassunto

I fanghi di depurazione delle acque reflue urbane sono degli ottimi indicatori della contaminazione da radionuclidi nell'ambiente. Una piccola aliquota di fango di depurazione è infatti rappresentativa di svariati metri cubi di acqua reflua trattata. L'obiettivo di questo studio è determinare quali siano i fattori ambientali che governano l'attività dello ^{131}I e del ^{137}Cs nelle acque reflue di un'area di circa 2000 km² tra le province di Padova e Vicenza. Questo lavoro utilizza i risultati di un'attività di monitoraggio nell'ambito di una convenzione tra CNR-ICMATE ed ETRA SpA durata 6 anni (2012-2017). Tale monitoraggio ha visto coinvolti fino a 17 depuratori lungo il bacino del fiume Brenta. Un totale di 624 campioni di fanghi di depurazione sono stati analizzati mediante spettrometria gamma ad alta risoluzione per indagare la concentrazione di attività di ^7Be , ^{40}K , ^{60}Co , ^{67}Ga , ^{111}In , ^{125}I , ^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{192}Ir e ^{201}Tl con la finalità della tutela della salute dei lavoratori, esigenza scaturita inizialmente da episodiche elevate concentrazioni di ^{131}I . Tuttavia, oltre ad alcuni radionuclidi naturali quali ^7Be e ^{40}K , i principali radionuclidi artificiali con valori superiori alla minima attività rilevabile sono stati ^{131}I e ^{137}Cs (56% e 36% dei casi, rispettivamente). Tra questi due, solo ^{131}I si è mostrato non trascurabile per quanto riguarda la radioprotezione data la sua attività media riscontrata nei fanghi ($93 \pm 184 \text{ Bq kg}^{-1}$). In ogni caso, l'attività di ^{131}I è risultata solo di rado superiore a 1000 Bq kg^{-1} (nello 0.5% dei casi). L'attività di ^{131}I , assieme alla sua occasionalità nelle acque reflue, sembra essere legata principalmente alla densità abitativa e al tempo di residenza medio delle acque nel sistema fognario. D'altro canto, l'attività di ^{137}Cs non sembra essere legata alla densità abitativa ma piuttosto al tasso di precipitazione medio e alla distribuzione post-fallout dell'incidente di Chernobyl. La mappa dell'attività di ^{137}Cs nelle acque reflue, ottenuta mediante un modello geostatistico ibrido ($R^2=0.93$), mostra infatti una marcata analogia con precedenti studi sull'attività del suddetto radionuclide nei suoli. Una variazione nella distribuzione spaziale dell'attività di ^{137}Cs tra il 2012 e il 2017 nei fanghi di depurazione mostra inoltre che è presumibile uno spostamento di ^{137}Cs nelle acque reflue da nord verso sud dell'area geografica esaminata.

INTRODUZIONE

Gli impianti di depurazione delle acque reflue sono infrastrutture essenziali per la comunità. Il prodotto di scarto degli impianti di depurazione, definito fango di supero o fango di depurazione, è definito dalla legge italiana (DLGS 152/2006) un rifiuto e deve pertanto essere trattato e smaltito secondo normativa. In un'ottica di riuso, il fango di depurazione può essere utilizzato in agricoltura purché rispetti alcune caratteristiche fisiche, chimiche e biologiche per limitare al massimo l'impatto sulla salute umana e sull'ambiente (Montaña et al., 2013).

Le acque reflue urbane possono contenere diversi elementi radioattivi, sia naturali (Camacho et al., 2012) che artificiali (Pratama et al., 2018a). Ne consegue che i fanghi di depurazione concentrano tali elementi e risultano essere anche degli ottimi indicatori ambientali (Puhakainen and Suomela, 1999). In letteratura sono molti gli studi che affrontano il problema legato al contenuto di radionuclidi nei fanghi di depurazione, sia con finalità ingegneristiche (Cosenza et al., 2015) che per determinare le sorgenti di immissione nelle acque reflue (Pratama et al., 2018b). Manca tuttavia uno studio a scala nazionale/regionale su quale sia l'andamento dei principali radionuclidi nei fanghi di depurazione sul territorio italiano e quali siano i principali fattori che ne modulano la concentrazione di attività. Questo è importante per due motivi. Innanzitutto, per la sicurezza dei lavoratori degli impianti e, in secondo luogo, per contribuire alla conoscenza del livello di background della radioattività ambientale in caso avvenissero incidenti con relativa immissione di materiale radioattivo nell'ambiente.

In merito alle succitate esigenze, questo studio si pone il seguente obiettivo: determinare quali sono i fattori ambientali che modulano la concentrazione di attività di due dei radionuclidi più diffusi

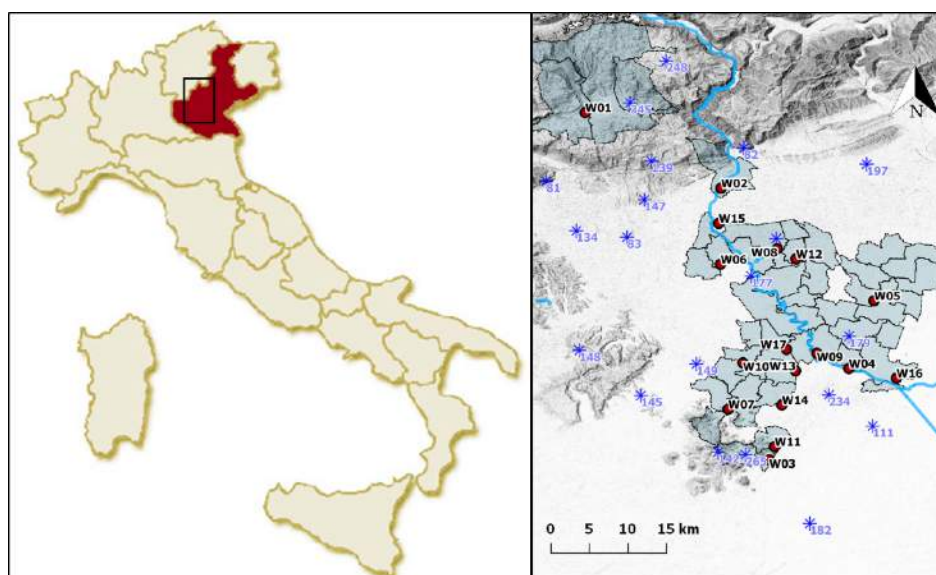
nei fanghi di depurazione: ^{131}I e ^{137}Cs . Dato che il primo è un elemento radioattivo largamente utilizzato in medicina nucleare (Willegaignon et al., 2011) l'ipotesi di partenza è che la sua concentrazione nei fanghi sia collegata al numero di persone che serve un impianto di depurazione. Per quanto riguarda il ^{137}Cs invece, si ipotizza che la sua presenza nei fanghi sia dovuta alla distribuzione ubiquitaria nell'ambiente successiva al disastro di Chernobyl nel 1986. Tuttavia, non risulta chiaro a tutt'oggi se la popolazione può essere considerata una "sorgente" di questo radionuclide. Queste ipotesi verranno testate utilizzando i dati di una campagna di monitoraggio che dura da più di sei anni (2012-2017), nata da una collaborazione tra Energia Territorio Risorse Ambientali (ETRA) SpA e il Consiglio Nazionale delle Ricerche (CNR-ICMATE). I campioni disidratati di fango di supero (624) analizzati in questo studio provengono da 17 impianti di depurazione gestiti da ETRA SpA, dislocati nel nord Italia tra le province di Padova e Vicenza. Per ciascun radionuclide verranno studiate le correlazioni con i fattori ambientali e verranno proposti diversi modelli per predirne la frequenza di rivelazione nei fanghi (^{131}I) e la concentrazione di attività nei fanghi e nelle acque reflue (^{137}Cs). Verrà infine analizzato l'andamento spaziale del ^{137}Cs nelle acque reflue e verrà discusso l'andamento della concentrazione di questo radionuclide nel tempo.

MATERIALI E METODI

AREA DI STUDIO

I 17 impianti di depurazione di questo studio si trovano in Veneto, a cavallo tra le province di Padova e Vicenza (Figura 1) e sono gestiti da ETRA SpA. L'area interessata dagli impianti (~2000 km²) è attraversata dal fiume Brenta. Circa il 50% degli impianti si trova a meno di 5 km dal fiume Brenta (W02, W04, W06, W08, W09, W13, W15, W16, W17) mentre il restante 50% si trova vicino alla città di Padova (W04, W13, W14), nell'area dei Colli Euganei (W03, W07, W11) e sull'altopiano di Asiago (W01). Dal punto di vista climatico, l'area è interessata da un gradiente di temperature e precipitazioni con direzione SW-NE. Le precipitazioni medie annue più basse infatti si registrano per W11 (994 mm anno⁻¹) mentre le più elevate per W01 (1461 mm anno⁻¹).

Figura 1 – Area di studio



A sinistra, inquadramento dell'area di studio nella penisola italiana. A destra, le posizioni dei singoli impianti di depurazione (W01-W17) tra le province di Padova e Vicenza. Sono evidenziate le aree dei comuni interessati dagli impianti di depurazione. Gli asterischi indicano le posizioni delle stazioni ARPAV per l'acquisizione dei dati meteorologici. Si riporta l'andamento del fiume Brenta come riferimento geografico.

FANGHI DI DEPURAZIONE

I fanghi di depurazione provenienti dai 17 impianti di depurazione sono stati campionati mensilmente tra gli anni 2012 e 2017. La frequenza di campionamento del fango presso ciascun impianto tuttavia non è fissa ma è differente di anno in anno, sulla base delle esigenze di monitoraggio di ETRA SpA. I fanghi disidratati sono stati sub-campionati, dopo omogeneizzazione, e posti in contenitori di Marinelli da 1 litro. La preparazione dei campioni è stata effettuata dal personale degli impianti e successivamente, entro 24 ore, i campioni sono stati conferiti al laboratorio dell'istituto ICMATE-CNR di Padova. In totale, durante la campagna di monitoraggio 2012-2017, sono stati analizzati 624 campioni.

MISURA DELLA CONCENTRAZIONE DI ATTIVITÀ

I fanghi di depurazione sono stati misurati mediante spettrometria γ ad elevata risoluzione, utilizzando rivelatori al germanio iperpuro (HPGe) con finestra in Be (Canberra TNE). Per ciascun campione è stato acquisito lo spettro γ per 7200 secondi utilizzando il software Genie2000 (Canberra TNE). I radionuclidi determinati durante il monitoraggio sono i seguenti: ^7Be , ^{40}K , ^{60}Co , ^{67}Ga , ^{111}In , ^{125}I , ^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{192}Ir , ^{201}Tl . La Minima Attività Rivelabile (MAR) è stata stimata con il metodo di Currie (1968).

La calibrazione in efficienza per la geometria di misura è stata effettuata mediante standard multigamma certificati (QCY48 e QCYB40). L'efficienza del sistema di misura è periodicamente controllata attraverso test di intercalibrazione eseguiti dal National Physics Laboratory (Teddington, UK).

MODELLO FREQUENZA DI RIVELAZIONE ^{131}I NEI FANGHI DI DEPURAZIONE

Sulla base delle ipotesi di partenza, si suppone che la presenza di ^{131}I nei fanghi di depurazione (e di conseguenza nelle acque reflue) sia principalmente dovuta al suo largo utilizzo in medicina nucleare. Viene quindi proposto un modello di regressione lineare per la frequenza di rivelazione dello ^{131}I nei fanghi (FR) del tipo:

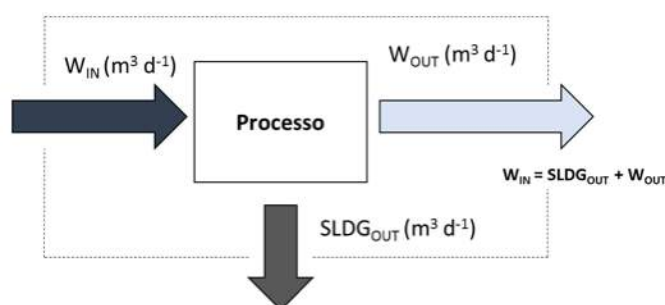
$$FR_{131-I} = \beta_0 + \beta_1 x_1 + \dots + \beta_n x_n \quad (1)$$

dove FR_{131-I} è il numero di campioni all'anno [anno^{-1}] per cui viene determinata una concentrazione di attività dello ^{131}I superiore alla MAR e dove x_i sono i predittori (e.g. densità abitativa [abitanti km^{-2}], dimensioni del sistema fognario [m^3], precipitazioni medie annue [mm anno^{-1}]).

MODELLO CONCENTRAZIONE DI ATTIVITÀ ^{137}Cs NELLE ACQUE REFLUE

Per determinare la concentrazione di attività del ^{137}Cs nelle acque reflue partendo dall'attività misurata nei fanghi si propone il modello semplificato di Figura 2, dove tutte le attività legate al trattamento del refluo (ad es. filtrazione, sedimentazione, flocculazione etc.) vengono sintetizzate dal blocco "Processo".

Figura 2 – Processo di depurazione semplificato



Il flusso di acque reflue in ingresso al depuratore (W_{IN}) viene suddiviso in due flussi in uscita dal depuratore: acqua trattata (W_{OUT}) e fango di supero ($SLDG_{OUT}$). Il fango di supero è quello campionato, disidratato e analizzato.

La concentrazione di attività delle acque reflue in ingresso al depuratore (C_{in}) [$Bq\ m^{-3}$] può essere stimata mediante l'equazione 2:

$$C_{IN} = \frac{C_F \times d_F}{F_{DIS} \times \epsilon_{137-Cs}} \times \left(1 - \frac{W_{OUT}}{W_{IN}}\right) \quad (2)$$

dove C_F è la concentrazione di attività misurata nel fango [$Bq\ kg^{-1}$], d_F è la densità media dei fanghi [$kg\ m^{-3}$] (Mininni et al., 2004), F_{DIS} è il fattore adimensionale di disidratazione dei fanghi (De Feo et al., 2013), ϵ_{137-Cs} è l'efficienza di rimozione del ^{137}Cs dall'acqua reflua (Pratama et al., 2018b) ed infine W_{out}/W_{in} è l'efficienza complessiva dell'impianto di trattamento (Sötemann et al., 2006).

MODELLO GEOSPAZIALE DEL ^{137}Cs NELLE ACQUE REFLUE

Per determinare l'andamento della concentrazione di attività del ^{137}Cs nelle acque reflue dell'area di interesse è stato utilizzato un metodo geostatistico ibrido. Dapprima sono stati costruiti diversi modelli di regressione lineare tra la concentrazione di attività del ^{137}Cs e alcuni possibili predittori, in maniera del tutto analoga al modello di equazione 1 (e.g. utilizzando latitudine, quota topografica, precipitazione media annua, la distanza dal fiume Brenta e la densità abitativa). I predittori sono stati scelti sulla base della loro significatività statistica nel modello di regressione (p-value ≤ 0.05). Si è successivamente costruito un ulteriore modello (interpolazione mediante kriging ordinario) dai residui del primo modello, in modo da considerare anche l'autocorrelazione spaziale presente nei dati (Bowen, 2010). Il risultato finale, cioè la mappa continua della concentrazione di attività del ^{137}Cs nelle acque reflue, è dato dalla somma di entrambi i modelli.

RISULTATI

ATTIVITÀ MEDIE

Si riportano in Tabella 1 le attività medie dei principali radionuclidi naturali (7Be e ^{40}K) e artificiali (^{131}I e ^{137}Cs) determinate nei fanghi di depurazione tra il 2012 e il 2017.

Tabella 1 – Attività medie($\pm 1\sigma$) di 7Be , ^{40}K , ^{131}I e ^{137}Cs nei fanghi di depurazione. "n" è il numero di campioni con attività superiore alla MAR.

| Impianto | 7Be (n=615) | ^{40}K (n=616) | ^{131}I (n=344) | ^{137}Cs (n=224) |
|----------|------------------|------------------|-------------------|--------------------|
| W01 | 60(± 32) | 38(± 8) | 43(± 101) | 4(± 1) |
| W02 | 203(± 116) | 76(± 12) | 79 | 6(± 2) |
| W03 | 30(± 16) | 46(± 12) | 184(± 333) | 1.2(± 0.3) |
| W04 | 30(± 21) | 29(± 7) | 76(± 82) | 1.8(± 0.6) |
| W05 | 20(± 14) | 36(± 14) | 58(± 76) | 1.2(± 0.3) |
| W06 | 19(± 10) | 50(± 14) | 68(± 132) | 6(± 4) |
| W07 | 29(± 14) | 33(± 7) | 202(± 459) | 1.1(± 0.4) |
| W08 | 28(± 14) | 22(± 8) | 35(± 46) | 4(± 2) |
| W09 | 45(± 30) | 36(± 12) | 65(± 111) | 2(± 1) |
| W10 | 23(± 17) | 26(± 7) | 183(± 199) | 1.2(± 0.2) |
| W11 | 26(± 12) | 37(± 10) | 54(± 79) | 1.2(± 0.7) |
| W12 | 52(± 24) | 27(± 7) | 105(± 192) | 1.4(± 0.3) |
| W13 | 21(± 13) | 27(± 8) | 148(± 266) | 1.1(± 0.5) |
| W14 | 28(± 18) | 34(± 8) | 101(± 146) | 1(± 1) |

| | | | | |
|--------------|----------------|----------------|-----------------|--------------|
| W15 | 85(±14) | 27(±6) | 2 | 2.6 |
| W16 | 22(±15) | 28(±9) | 53(±63) | 2(±2) |
| W17 | 14(±9) | 27(±7) | 54(±47) | 1.7(±) |
| Media | 40(±53) | 36(±16) | 93(±185) | 4(±3) |

I rimanenti radionuclidi artificiali non sono mai stati rivelati ad eccezione di ^{131}I che è stato rivelato in 4 campioni e di ^{134}Cs che è stato rivelato una sola volta. Come si può osservare, i radionuclidi di origine naturale sono stati rivelati nel ~99% dei casi mentre per ^{131}I e ^{137}Cs le percentuali si aggirano attorno al 55% e al 36%, rispettivamente. In particolare, la presenza di ^{131}I risulta essere importante per la sua attività media e per l'ampia variabilità che presenta. Ciò è probabilmente dovuto, come già anticipato, all'uso massiccio di questo radionuclide in medicina nucleare. L'attività media di ^{137}Cs risulta invece molto più bassa ma la sua frequenza di rivelazione è notevole, dimostrando la presenza diffusa di questo radionuclide nell'ambiente.

RELAZIONE TRA ^{131}I E DENSITÀ ABITATIVA

La concentrazione di attività di ^{131}I non è correlata significativamente con quella degli altri radionuclidi mentre vi è una correlazione significativa con la precipitazione media annuale ($R=-0.41$). Quest'ultima potrebbe indicare un effetto di diluizione del radionuclide nelle acque reflue in seguito alla pioggia. La frequenza con cui viene rivelato lo ^{131}I nei campioni è invece fortemente correlata alla densità abitativa ($R=0.75$). Tuttavia, il numero di volte che lo ^{131}I viene rivelato per un determinato impianto è anche fortemente correlato al numero di campioni che sono stati prelevati per quel determinato impianto ($R=0.71$). Risulta pertanto necessario normalizzare la frequenza di rivelazione per il numero di campioni provenienti da ciascun impianto sulla base della frequenza di rivelazione del sito W13, l'impianto cioè per cui sono stati analizzati più campioni ($n=51$). Da queste premesse, gli unici predittori significativi ($p\text{-value}<0.1$) dal punto di vista statistico per il modello di equazione 1 risultano essere la densità abitativa e il tempo di residenza medio del sistema fognario ($R^2=0.65$). A differenza di quanto osservato per la concentrazione di attività, la frequenza di rivelazione di ^{131}I non è correlata significativamente alle precipitazioni. Le dimensioni del sistema fognario [m^3], se confrontate con il flusso in ingresso del depuratore [$\text{m}^3 \text{giorni}^{-1}$], possono fornire una prima stima del tempo di residenza medio (R_t) [giorni] delle acque reflue nel sistema fognario. Dato che il tempo di dimezzamento dello ^{131}I è breve ($t_{1/2} = 8$ giorni), il tempo di residenza medio delle acque reflue nel sistema fognario risulta essere un parametro importante. Il modello migliora leggermente ($R^2=0.67$) se alla variabile R_t viene applicata una trasformazione logaritmica. Si riportano quindi in Tabella 2 i parametri ottenuti dal modello di regressione con trasformazione logaritmica della variabile R_t ed in Figura 3.c si riporta un confronto tra frequenza di rivelazione osservata e modellata.

Tabella 2 – parametri del modello di regressione lineare per la frequenza di rivelazione di ^{131}I nei fanghi di depurazione previa trasformazione logaritmica della variabile R_t .

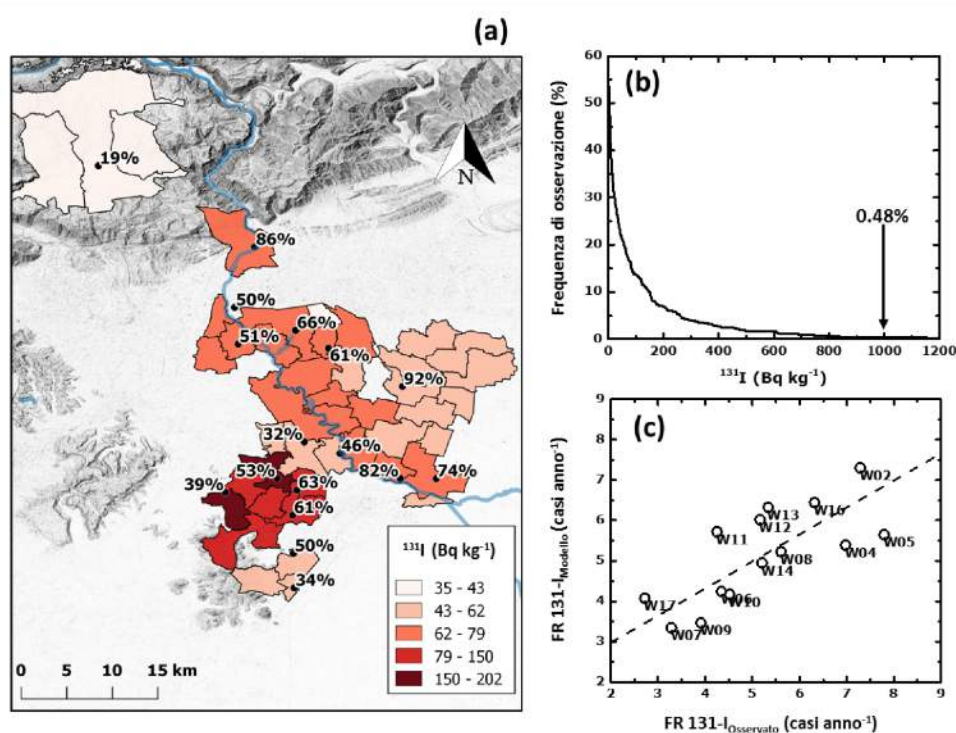
| Parametro (β_i) | Valore | p-value | Variabile (x_i) |
|-------------------------|---------------------------|---------|---------------------|
| β_0 | 3(±1) | <0.01 | Intercetta |
| β_1 | $5(\pm 2) \times 10^{-3}$ | <0.05 | Densità abitativa |
| β_2 | -1.6(±0.9) | <0.1 | $\log(R_t)$ |

DISTRIBUZIONE ^{131}I NEL TERRITORIO

Eccetto la debole correlazione con le precipitazioni, la concentrazione di attività di ^{131}I non è correlata con nessuna altra variabile di tipo ambientale né con le concentrazioni di attività dei

radionuclidi di origine naturale (^7Be e ^{40}K) o artificiale (^{137}Cs). Si riporta in Figura 3.a il valore medio della concentrazione di attività e la frequenza di rivelazione osservata del suddetto radionuclide per gli anni 2012-2017. La mappa mostra che l'impianto più a nord (W01) è quello con attività e frequenza di rivelazione più basse, compatibili con una bassa densità abitativa ed un'elevata piovosità, caratteristiche tipiche di un'area montana. L'area dove invece si registra mediamente l'attività maggiore è localizzata a sud, vicino alla città di Padova. In quest'area sono presenti più impianti ed è quindi possibile che la frequenza di rivelazione si abbassi per via del minor numero di utenze servite da ciascun impianto.

Figura 3 – Distribuzione di ^{131}I nei fanghi di depurazione a livello comunale



(a) Attività media e frequenza di rivelazione osservata di ^{131}I nei fanghi di depurazione a livello comunale. (b) Distribuzione di frequenza dell'attività di ^{131}I nei fanghi di depurazione, la freccia indica il valore limite per attuare le procedure a tutela dei lavoratori dell'impianto. (c) Confronto tra la frequenza di rivelazione osservata e modellata con l'equazione 1 ($R^2=0.67$).

Al contrario, ^{131}I viene rivelato molto spesso negli impianti W02 e W05, toccando valori del 90% (W05), compatibilmente con il minor numero di impianti per unità di area e con una maggiore densità abitativa. Nonostante ^{131}I venga rivelato molto spesso nei fanghi, solo raramente (0.5% dei casi) la sua concentrazione di attività ha raggiunto il valore soglia di 1000 Bq kg⁻¹, stabilito per attuare le procedure cautelative al fine di salvaguardare la salute dei lavoratori dell'impianto (Figura 3.b).

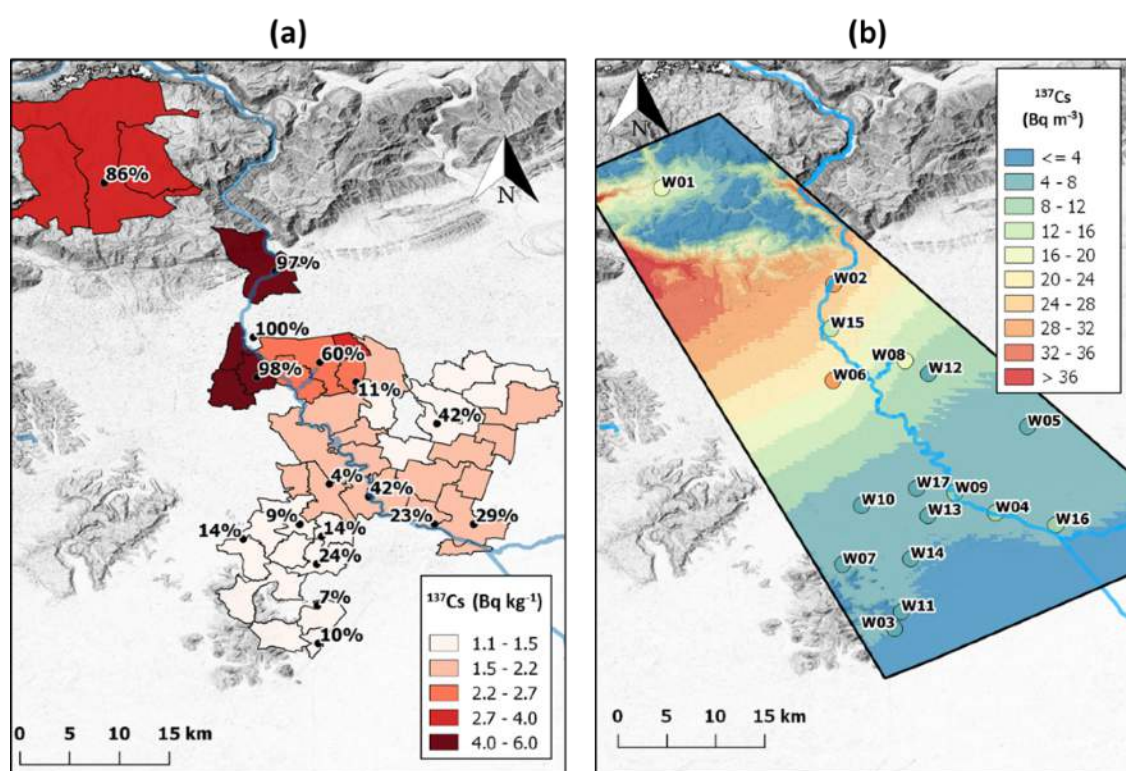
DISTRIBUZIONE DEL ^{137}Cs NEL TERRITORIO

Il ^{137}Cs è stato rivelato quantitativamente in circa un terzo dei campioni (36%). Si può ragionevolmente affermare che tutto il ^{137}Cs rivelato è dovuto alla presenza diffusa nel territorio successiva al disastro di Chernobyl nel 1986. L'isotopo ^{134}Cs infatti è stato rivelato in un solo campione, legato probabilmente ad una immissione sporadica di una sorgente di radiocesio nell'ambiente.

Analogamente a quanto visto per ^{131}I , si riporta in Figura 4.a il valore medio della concentrazione di attività e la frequenza di rivelazione osservata del ^{137}Cs per gli anni 2012-2017. Come si può osservare il ^{137}Cs viene rivelato con frequenza e concentrazione più elevata nell'area settentrionale rispetto all'area meridionale. La concentrazione di attività di ^{137}Cs è correlata

significativamente con le precipitazioni medie ($R=0.67$) mentre non è correlata significativamente con le portate medie annue degli impianti né con la densità abitativa. Si è osservata tuttavia una debole correlazione significativa ($R=0.46$) con le dimensioni del sistema fognario servito da ciascun impianto che è, a sua volta, legato alla superficie di captazione delle acque reflue. La concentrazione di attività di ^{137}Cs è inoltre correlata significativamente con la concentrazione di attività dei radionuclidi naturali ^7Be e ^{40}K ($R=0.58$ e $R=0.63$, rispettivamente). Se ne deducono quindi due importanti conclusioni. La prima è che la popolazione non è una sorgente significativa di ^{137}Cs nelle acque reflue. La seconda è che il ^{137}Cs è probabilmente legato alla componente superficiale dei suoli e dilavato dalle precipitazioni.

Figura 4 – Distribuzione di ^{137}Cs nei fanghi di depurazione a livello comunale e nelle acque reflue



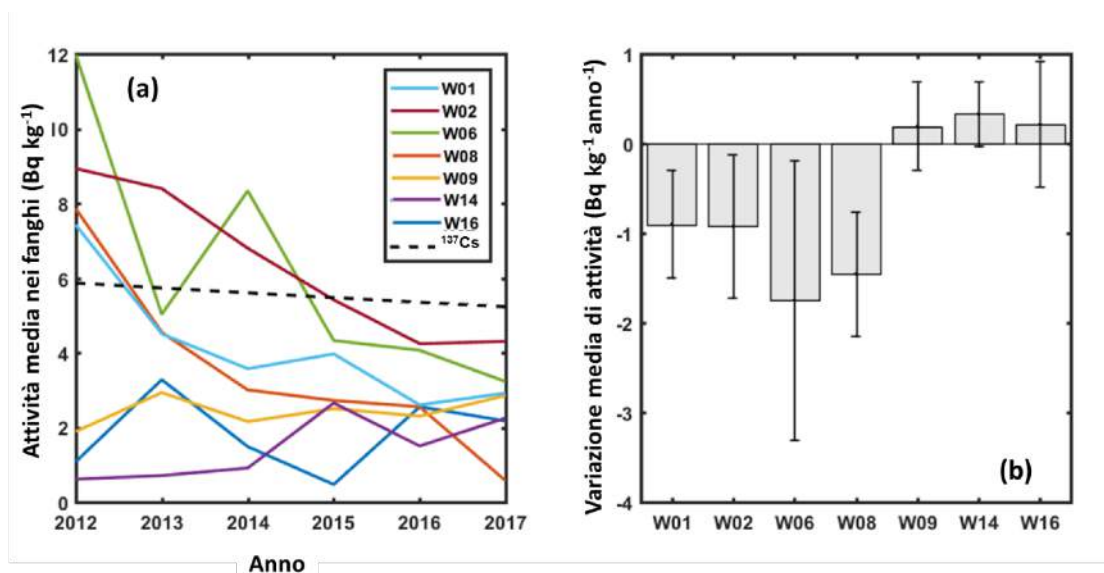
(a) Attività media e frequenza di rivelazione osservata di ^{137}Cs nei fanghi di depurazione a livello comunale. (b) Concentrazione di attività di ^{137}Cs nelle acque reflue stimata con il modello geostatistico normalizzata a Dicembre 2017. L'RMSE del modello è 2 Bq m^{-3} .

È stata dunque determinata la concentrazione di attività del ^{137}Cs nelle acque reflue a monte degli impianti con il modello di equazione 2 e successivamente si è costruito il modello geostatistico per mappare in maniera continua l'attività di ^{137}Cs nelle acque reflue dell'area di studio.

Il modello geostatistico considera come predittori la precipitazione media annuale, la quota topografica e la latitudine ($R^2=0.68$). La sua qualità aumenta notevolmente se viene anche considerata l'autocorrelazione presente nei dati, effettuando cioè un kriging sui residui del primo modello di regressione ($R^2=0.93$). La mappa ottenuta dal modello ibrido viene mostrata in Figura 4.b e, come si intuisce dalla mappa della concentrazione di attività di ^{137}Cs nei fanghi, è evidente un gradiente con direzione nord-sud. In generale, l'area ai piedi delle montagne è quella che mostra le concentrazioni più elevate, compatibile con un maggior afflusso di acque meteoriche nel sistema fognario. Il pattern evidenziato qui è compatibile con quello stimato da altri studi per l'attività di ^{137}Cs nei suoli (ARPAV, 2004; Izrael et al., 1996) ed è quindi ragionevole affermare che la sorgente del ^{137}Cs nelle acque reflue è dovuto al contributo di deflusso superficiale legato alle precipitazioni e al fallout post-Chernobyl (dove infatti le precipitazioni sono maggiori è anche dove si è depositato più radiocesio durante il fallout del 1986).

ANDAMENTO DEL ^{137}Cs NEI FANGHI DI DEPURAZIONE

Il tempo di dimezzamento del ^{137}Cs è di circa 30,2 anni. Ci si aspetta quindi che la sua concentrazione nelle acque reflue diminuisca nell'arco di alcune generazioni a causa del suo decadimento e per la rimozione nei suoli dovuta ad azione di dilavamento superficiale. Questo fenomeno è osservabile per gli impianti di depurazione nell'area settentrionale per cui è stato possibile avere almeno un'osservazione all'anno (W01, W02, W06 e W08). L'andamento temporale di ^{137}Cs nei fanghi per gli impianti W01, W02, W06 e W08 è riportato in Figura 5.a e si può osservare che la curva di variazione dell'attività non è compatibile con il solo decadimento radioattivo. Una parte del radionuclide interessato viene quindi rimosso dai suoli per dilavazione e trasportato altrove. Gli unici impianti nella zona meridionale dell'area di studio per cui è stato possibile fare un ragionamento analogo sono W09, W14 e W16. Osservando l'andamento nel tempo di Figura 5.a sembra che la concentrazione di attività di ^{137}Cs per questi tre impianti non vari significativamente. Se tuttavia viene considerata la variazione media di attività nell'intero arco temporale 2012-2017 si può osservare che il trend è in leggera crescita, al contrario di quanto si può osservare per gli impianti settentrionali (Figura 5.b).

Figura 5 – Andamento di ^{137}Cs nei fanghi di depurazione per alcuni impianti

(a) Media annuale della concentrazione di attività di ^{137}Cs nei fanghi di depurazione. La linea tratteggiata indica l'andamento dovuto al solo decadimento radioattivo partendo da una concentrazione di attività iniziale pari a 6 Bq kg⁻¹. **(b)** Variazione media dell'attività di ^{137}Cs nei fanghi di depurazione per gli stessi impianti di figura (a).

Questo risultato ci consente di ipotizzare che una parte del sedimento eroso e contaminato proveniente dall'area settentrionale venga trasportato nelle acque superficiali dell'area meridionale. Ci sono tuttavia tre limiti importanti a questa ipotesi che dovrebbero essere chiariti da studi futuri. Il primo limite è dovuto alla scarsità di punti per cui è stato possibile fare questa stima, in particolare per gli impianti del settore meridionale. La variazione nord-sud osservabile per l'area di studio infatti potrebbe non essere corretta ed avere un'altra direzione. Il secondo limite è dovuto alla significatività della variazione identificata. Mentre per gli impianti settentrionali la variazione (negativa) è maggiore rispetto all'incertezza statistica, per gli impianti meridionali le barre d'errore comprendono lo zero. Il terzo limite è dovuto alla completa assenza di correlazione con la variazione dell'uso del suolo. La perdita di suolo (m² anno⁻¹), che potrebbe essere legata all'immissione di suolo superficiale nelle acque reflue, non è correlata all'andamento annuale del radionuclide nei fanghi (Bq kg⁻¹ anno⁻¹).

CONCLUSIONI

In questo studio sono stati determinati i principali fattori che modulano la presenza di ^{131}I e ^{137}Cs nei fanghi di depurazione delle acque reflue urbane per un'area di circa 2000 km² del nord Italia. Alla base di questo studio si è ipotizzato che la presenza dei suddetti radionuclidi nelle acque reflue sia dovuta alla densità abitativa, dato che ^{131}I è largamente utilizzato in medicina nucleare, e per ^{137}Cs alla distribuzione nell'ambiente (fallout Chernobyl). Queste due ipotesi sono state testate utilizzando modelli statistici e geostatistici costruiti da un dataset di 624 campioni di fanghi, analizzati tra il 2012 e il 2017, grazie ad una collaborazione tra ETRA SpA e CNR-ICMATE. Come ipotizzato, la frequenza con cui viene rivelato ^{131}I nei fanghi di depurazione è legata principalmente alla densità abitativa a cui va aggiunta però anche la dimensione dell'impianto delle acque reflue, dato che il tempo di residenza medio nelle fogne potrebbe risultare compatibile con il tempo di dimezzamento del radionuclide. Per quanto riguarda l'attività di ^{131}I , invece, si è osservata solo una debole correlazione negativa con le precipitazioni, fattore che individua un effetto di "diluizione" delle acque di scarico dovuto alle piogge. La concentrazione di attività di questo radionuclide in alcuni casi sporadici è risultata superiore a 1000 Bq kg⁻¹ (0.5% dei casi) e risulta pertanto importante monitorare continuamente la sua attività. Per quanto riguarda ^{137}Cs invece, frequenza di rivelazione e concentrazione di attività sono fortemente influenzate dalle precipitazioni e dalla posizione geografica degli impianti. Più precisamente, il 68% della variabilità dell'attività di concentrazione di ^{137}Cs nei fanghi è spiegato dalle precipitazioni medie annue, dalla quota topografica e dalla latitudine dell'impianto. Un ulteriore 25% della variabilità è spiegato dalla sola autocorrelazione spaziale. È stato quindi costruito un modello semplificato per stimare la concentrazione di attività nelle acque reflue per poi ottenere una mappa della concentrazione di attività a livello locale. La mappa ottenuta, normalizzata a Dicembre 2017, mostra un notevole gradiente di concentrazione di attività nelle acque reflue, passando da circa 36 Bq m⁻³ (area settentrionale) a circa 4 Bq m⁻³ (area meridionale) con un pattern spaziale compatibile con quello stimato da altri studi effettuati sui suoli. Se ne conclude che il contenuto di ^{137}Cs nelle acque reflue è dovuto all'immissione di suolo e sedimento contaminato. La velocità con cui viene rimosso il ^{137}Cs è tuttavia differente tra gli impianti dell'area settentrionale e dell'area meridionale. Mentre per gli impianti a nord si è osservata una forte decrescita della concentrazione di attività di ^{137}Cs nei fanghi tra il 2012 e il 2017, per gli impianti a sud la concentrazione di attività è aumentata leggermente. Se ne conclude che una parte di sedimento e suolo rimosso dalle aree ad elevata contaminazione di ^{137}Cs (nord) viene trasportato verso aree dove la contaminazione da fallout è inferiore. Non è stato possibile tuttavia determinare la magnitudine e l'effettiva direzione di questo spostamento e si consiglia di effettuare studi mirati per capire l'entità ed i fattori che influenzano tale spostamento.

BIBLIOGRAFIA

- ARPAV, 2004. Piano regionale veneto di monitoraggio della contaminazione da cesio di taluni prodotti di raccolta spontanei e fauna selvatica in attuazione della raccomandazione 2003/274/CE.
- Bowen, G.J., 2010. Statistical and geostatistical mapping of precipitation water isotope ratios, in: *Isoscapes*. pp. 139–160.
- 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. *J. Environ. Radioact.* 109, 76–83.
- Cosenza, A., Rizzo, S., Sansone, A., Viviani, S.G., 2015. Radionuclides in wastewater treatment plants: monitoring of Sicilian plants. *Water Sci. Technol.* 71, 252–258.
- Currie, L.A., 1968. Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination: Application to Radiochemistry. *Anal. Chem.* 40, 586–593.
- De Feo, G., De Gisi, S., Galasso, M., Flaccovio, D., 2013. Fanghi di depurazione: produzione, caratterizzazione e trattamento (in italian).
- Izrael, Y.A., De Cort, M., Jones, A.R., Nazarov, I.M., Fridman, S.D., Kvasnikova, E. V., Al., E., 1996. The atlas of caesium-137 contamination of Europe after the Chernobyl accident, in: *The Radiological Consequences of the Chernobyl Accident. Proceedings of the First International Conference. Minsk (Belarus)*.
- Mininni, G., Braguglia, C.M., Passino, R., Tomei, M.C., Istituto, C., 2004. *Ecomondo* 8 05, 1–13.

- Montaña, M., Camacho, A., Devesa, R., Vallés, I., Céspedes, R., Serrano, I., Blázquez, S., Barjola, V., 2013. The presence of radionuclides in wastewater treatment plants in Spain and their effect on human health. *J. Clean. Prod.* 60, 77–82.
- Pratama, M.A., Takahara, S., Munakata, M., Yoneda, M., 2018a. Estimation of radiocesium dietary intake from time series data of radiocesium concentrations in sewer sludge. *Environ. Int.* 115, 196–204.
- Pratama, M.A., Yoneda, M., Yamashiki, Y., Shimada, Y., Matsui, Y., 2018b. Modeling and identifying the sources of radiocesium contamination in separate sewerage systems. *Sci. Total Environ.* 622–623, 1098–1108.
- Puhakainen, M., Suomela, M., 1999. Detection of radionuclides originating from a nuclear power plant in sewage sludge.
- Sötemann, S.W., Wentzel, M.C., Ekama, G.A., 2006. Mass balance-based plant-wide wastewater treatment plant models - Part 4: Aerobic digestion of primary and waste activated sludges. *Water SA* 32, 297–306.
- Willegaignon, J., Sapienza, M., Ono, C., Watanabe, T., Guimarães, M.I., Gutterres, R., Marechal, M.H., Buchpiguel, C., 2011. Outpatient Radioiodine Therapy for Thyroid Cancer. *Clin. Nucl. Med.* 36, 440–445.