



***Atti del XXXVIII Congresso Nazionale Airp di
Radioprotezione***



Milano, 28 - 30 settembre 2022

Frigoriferi Milanese - via Piranesi, 10

**Atti del XXXVIII Congresso Nazionale Airp di Radioprotezione
Milano, 28 - 30 Settembre 2022 - Frigoriferi Milanesi**



INDICE

Sviluppo di una metodologia a livello europeo per la valutazione della dose dei lavoratori agricoli a seguito dell'utilizzo di fanghi NORM in agricoltura.

C. Nuccetelli¹, G. Venoso¹, C. Di Carlo¹, F. Trotti², R. Ugolini², R. Trevisi³, F. Leonardi³, L. Urso⁴

¹Istituto Superiore di Sanità - Centro Nazionale per la Protezione dalle Radiazioni e Fisica Computazionale – Roma

²Agenzia regionale per la Prevenzione e Protezione Ambientale del Veneto (ARPAV), Verona

³Istituto nazionale per l'assicurazione contro gli infortuni sul lavoro (INAIL) - Settore Ricerca - DiMEILA

⁴BfS – Istituto Federale di Radioprotezione, Unità di Radioecologia - Germania

cristina.nuccetelli@iss.it

Riassunto

A livello europeo la generale richiesta di riciclo di rifiuti e materiali di risulta spinge, o potrebbe farlo in futuro, a un maggiore riutilizzo dei residui NORM. Ciò include anche il riutilizzo in agricoltura dei fanghi prodotti dagli impianti di filtrazione delle acque sotterranee e dagli impianti di trattamento delle acque reflue che ricevono le acque di controlavaggio dagli impianti di filtrazione. Il potenziale impatto radiologico di questi tipi di fanghi dipende, ad esempio, dalle dimensioni dell'acquedotto e dalla ripartizione dei radionuclidi tra la componente liquida e quella solida del fango. Nell'ambito del progetto europeo RadoNorm è stata avviata un'attività di ricerca volta a sviluppare una metodologia per la valutazione della dose dei lavoratori agricoli, a seguito dell'uso di fanghi NORM nei terreni agricoli, e di altri membri del pubblico che vivono nelle vicinanze. Sono stati identificati scenari d'esposizione, relativi ai lavoratori agricoli, che sono stati simulati con il software RESRAD-ONSITE. L'obiettivo del lavoro è sviluppare un modello generico, ottenere coefficienti di dose tabulati per 1 kBq kg^{-1} di radionuclidi naturali nei fanghi e determinare dei livelli operativi di concentrazione di attività dei fanghi corrispondenti al criterio di dose di 1 mSv all'anno . Nel lavoro verranno discussi i principali risultati della simulazione e le considerazioni sul possibile utilizzo di questa metodologia a supporto di decisori e non esperti nel campo della radioprotezione.

INTRODUZIONE

L'approccio della Direttiva del Consiglio 2013/59/EURATOM (Direttiva 2013/59/EURATOM, 2014) (EU-BSS) considera le attività che coinvolgono i NORM (*Naturally Occurring Radioactive Material*) come situazioni di esposizione pianificata. Questo rende necessaria l'elaborazione di linee guida e strumenti, condivisi dalla comunità scientifica e approvati dall'UE, per la valutazione della dose ai lavoratori ed alla popolazione allo scopo di rispettare requisiti di legge più stringenti che in passato. Inoltre, a livello europeo, la transizione verso l'*Economia Circolare* sta portando a un maggiore riutilizzo dei residui NORM. Ciò include il riutilizzo in agricoltura dei fanghi prodotti dagli impianti di filtrazione delle acque sotterranee e dagli impianti di trattamento delle acque reflue che ricevono le acque di controlavaggio dagli impianti di filtrazione.

L'attuale Direttiva del Consiglio Europeo (Direttiva 86/278/CEE, 1986), che regola l'uso dei fanghi di depurazione in agricoltura, non contiene prescrizioni in merito ai contaminanti radioattivi e al loro possibile contributo all'esposizione dei lavoratori e della popolazione. Anche il documento *Radiation Protection 122 Part 2 (RP 122/2)* (European Commission, 2002) non fornisce una metodologia per valutare la dose derivante dall'utilizzo dei fanghi solidi in agricoltura. Tuttavia, l'elenco dei settori industriali che coinvolgono i NORM, riportati nell'allegato VI delle EU-BSS, include anche gli impianti di filtrazione delle acque sotterranee, per i quali l'impatto radiologico dei residui di fango potrebbe avere una rilevanza radioprotezionistica (Kunte, 2012).

Nell'ambito del progetto europeo RadoNorm (<https://www.radonorm.eu/>) è in corso una attività incentrata sulla valutazione della dose per lo scenario lavorativo degli agricoltori che lavorano su un terreno agricolo in cui i fanghi vengono utilizzati come fertilizzante per molti anni. L'obiettivo è sviluppare un modello generico, ottenere coefficienti di dose tabulati (CD) per 1 kBq kg⁻¹ di radionuclidi naturali nei fanghi, e determinare i livelli operativi di concentrazione di attività dei fanghi corrispondenti al criterio di dose di 1 mSv all'anno.

Di seguito si riportano i principali risultati delle attività svolte.

MATERIALI E METODI

Per simulare gli scenari di esposizione dell'agricoltore è stato utilizzato RESRAD-ONSITE-7.2 (*Argonne National Laboratory*), tra i software più usati (e validati) per la valutazione dell'esposizione all'individuo nei pressi di suoli contaminati. Tale software considera, tra l'altro, tutte le vie di esposizione caratteristiche delle attività agricole, ed è ampiamente accettato come standard per le valutazioni conservative della dose.

APPROCCIO UTILIZZATO PER LA STIMA DELLE DOSI E DEI LIVELLI OPERATIVI

Per questa attività è stato adottato un approccio simile a quello riportato in RP 122 Parte 2 (European Commission, 2002). In particolare, sono state effettuate stime di dose per i diversi segmenti delle catene di decadimento delle serie dell'²³⁸U e del ²³²Th, considerando che i radionuclidi naturali presenti nei fanghi prelevati dagli acquedotti non sono in equilibrio secolare a causa dei processi industriali. Inoltre, nei calcoli vengono presi in considerazione solo i segmenti che abbiano un impatto radiologico in base al comportamento chimico e al tempo di decadimento (cfr. Tabella 1).

Tabella 1. Segmenti delle catene di decadimento utilizzati per la valutazione della dose

Segmento di catena	Nuclidi considerati in equilibrio secolare
U _{nat}	U-238, U-234, U-235 (4,6%) ed i loro prodotti di decadimento a vita media breve
Th-230	Th-230
Ra-226+	Ra-226, Rn-222, Po-218, Pb-214, Bi-214, Po-214
Pb-210+	Pb-210, Bi-210
Po-210	Po-210
Th-232 & Th-228	Torio separato chimicamente dalla catena del Th-232
Ra-228+	Ra-228, Ac-228
Th-228+	Th-228, Ra-224, Rn-220, Po-216, Pb-212, Bi-212, Po-212, Tl-208
K-40	K-40

Per ciascuno dei segmenti di catena riportati in Tabella 1, si considera una concentrazione di attività nei fanghi di 1 kBq kg⁻¹ per calcolare la dose annua per unità di concentrazione di attività, quindi i coefficienti di dose tabulati (CD). I livelli operativi sono stati stimati utilizzando un criterio di dose di 1 mSv y⁻¹.

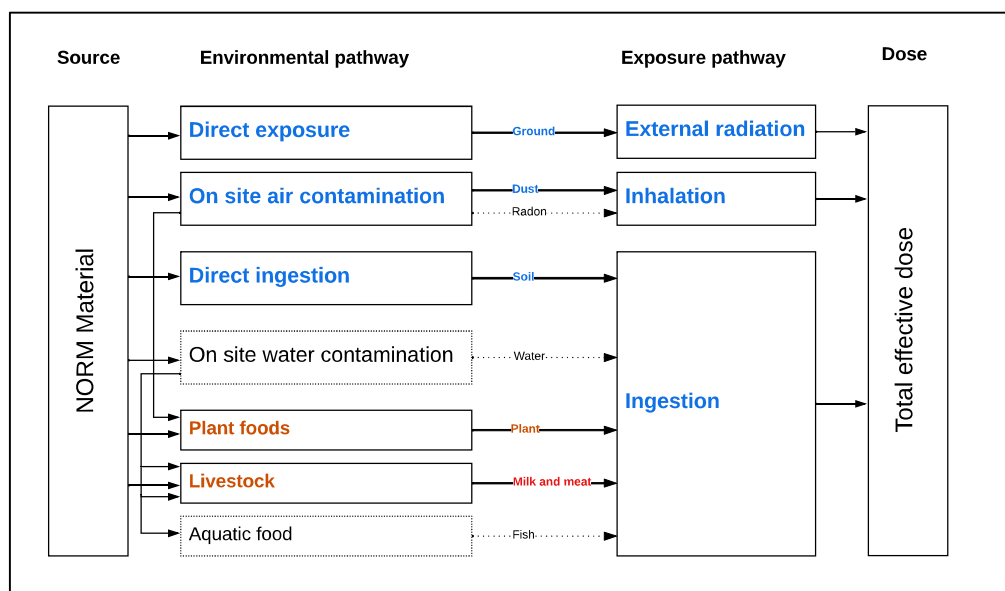
SCENARI D'ESPOSIZIONE CONSIDERATI PER LA VALUTAZIONE RADIOLOGICA

Nella simulazione con RESRAD-ONSITE sono stati considerati due scenari di esposizione:

- agricoltore, ovvero uno scenario per un agricoltore che lavora sui terreni agricoli ma non ci abita;
- agricoltore residente, cioè uno scenario per un agricoltore che lavora e vive sui terreni agricoli.

Le vie di esposizione considerate in questi scenari sono riportati in Figura 1.

Figura 1. Passaggi tipici per calcolare la dose efficace totale partendo da una sorgente NORM e utilizzando RESRAD-ONSITE



I pathways per lo scenario dell'agricoltore sono evidenziati in blu. Per lo scenario dell'agricoltore residente, i percorsi aggiuntivi sono evidenziati in rosso (indipendenti dall'acqua). I percorsi individuati dai riquadri (e dalle frecce) tratteggiati non sono rilevanti per gli scenari considerati.

Di seguito si riporta una descrizione dettagliata degli scenari simulati.

SCENARIO 1: AGRICOLTORE

In questo scenario, un contadino lavora su un terreno per 35 anni, ma vive altrove. Si considerano quindi due sotto-scenari in funzione dell'uso dei fanghi utilizzati come fertilizzanti:

- Scenario 1a: lo spargimento dei fanghi inizia quando l'agricoltore inizia a lavorare il terreno, quindi l'agricoltore inizia a lavorare in un terreno incontaminato. I fanghi continuano ad essere sparsi annualmente per 35 anni;
- Scenario 1b: l'agricoltore inizia a lavorare in un terreno contaminato da 35 anni di spargimento dei fanghi e per altri 35 anni lavora sul terreno, ove annualmente i fanghi continuano ad essere sparsi per altri 35 anni.

Le vie di esposizione rilevanti sono l'irraggiamento esterno, l'inalazione del suolo risospeso e l'ingestione accidentale del suolo (si veda il testo in blu di Fig. 1).

SCENARIO 2: AGRICOLTORE RESIDENTE

In questo scenario, si presume che un agricoltore lavori e viva su un terreno per 70 anni. Per questo scenario si considerano due sotto-scenari in funzione dell'uso dei fanghi utilizzati come fertilizzanti:

- Scenario 2a: lo spargimento dei fanghi inizia quando l'agricoltore inizia a vivere sul terreno, quindi l'agricoltore inizia a vivere in un terreno incontaminato. I fanghi vengono sparsi annualmente per 70 anni;
- Scenario 2b: l'agricoltore inizia a vivere in un terreno contaminato dopo uno spargimento di fanghi per 30 anni e lavora e vive sul terreno per 70 anni durante i quali si continua annualmente lo spargimento dei fanghi.

Le vie di esposizione che giocano un ruolo importante sono le stesse dello scenario 1, inoltre va considerata l'ingestione di alimenti contaminati, ma non di acqua potabile e di cibi dipendenti direttamente dall'acqua, come i pesci (si veda il testo in blu e rosso di Figura 1). La contaminazione indipendente dall'acqua include l'assorbimento di acque meteorica e da innaffiamento dalle radici delle piante, e la deposizione di particolato sui vegetali. È interessante notare che l'esposizione al radon non viene presa in considerazione poiché la maggior parte del suolo non è contaminata, dato che i fanghi si trovano entro poche decine di centimetri dalla superficie del suolo.

ATTIVITÀ SPECIFICA NEL SUOLO A SEGUITO DELL'APPLICAZIONE DEI FANGHI

Poiché un parametro di input di RESRAD-ONSITE è la concentrazione di attività nel suolo (A_{suolo}), questa viene ricavata a partire dall'attività nei fanghi (A_{fanghi}) con la seguente formula:

$$A_{\text{suolo}} (\text{kBq kg}^{-1}) = \frac{A_{\text{fanghi}} \cdot S}{d \cdot r} \quad (\text{eq. 1})$$

dove:

- A_{fanghi} è la concentrazione di attività nei fanghi (kBq kg^{-1})
- S è il rateo annuale di applicazione di fanghi secchi per m^2 (in kg m^{-2});
- d è la profondità di aratura o lo spessore di mescolamento del terreno (in metri);
- r è la densità del suolo (in kg m^{-3}).

In Tabella 2 sono riportati i valori utilizzati nella simulazione con RESRAD.

Tabella 2. Valori dei parametri usati per il calcolo della concentrazione di attività del suolo

Parametro	Unità di misura	Valore usato
Rateo annuale di spargimento di fanghi (S)	$\text{kg m}^{-2} \text{y}^{-1}$	0.5
Profondità di aratura (d)	m	0.3
Densità del suolo (r)	kg m^{-3}	1300

Il valore di S uguale a $0.5 \text{ kg m}^{-2} \text{y}^{-1}$ è stato scelto seguendo la normativa italiana vigente in materia di utilizzo dei fanghi in agricoltura (Decreto Legislativo 99, 1992), in cui è prescritto che un massimo di 15 tonnellate di fanghi per ettaro di suolo (ovvero 1.5 kg m^{-2}) può essere sparso nell'arco di tre anni. Per confronto, il valore di S indicato dalla normativa tedesca (*German Federal Ministry for the Environment, 2017*) è al massimo di 5 tonnellate per ettaro per un periodo di tre anni. I valori utilizzati per la profondità di lavorazione e la densità del suolo rientrano nell'intervallo dei valori utilizzati in altri studi simili (ISCORS, 2003; Ugolini et al., 2020).

Utilizzando i valori della Tabella 2, e partendo da 1 kBq kg^{-1} di concentrazione di attività nei fanghi, la concentrazione di attività nel suolo (A_{suolo}) risulta uguale a $0.00128 \text{ kBq kg}^{-1}$.

APPLICAZIONE DEI FANGHI PER PIÙ DI UN ANNO

Tutti gli scenari considerati nel lavoro prevedono lo spargimento annuale dei fanghi per molti anni. Questo determina che il termine di sorgente cambia nel tempo. In RESRAD-ONSITE è possibile usare solo un termine di sorgente costante. Per ovviare a questo problema, abbiamo tenuto conto dell'accumulo dei radionuclidi negli anni di spargimento dei fanghi sui terreni agricoli, adottando lo stesso approccio utilizzato in (Ugolini et al., 2020).

RISULTATI

Per ogni scenario descritto nelle apposite sezioni, i coefficienti di dose (CD), ovvero le dosi annue per unità di concentrazione di attività, sono calcolati e riportati nella Tabella 3 per

ciascun segmento della catena di decadimento. Sono riportate anche le dosi massime per lo scenario più conservativo (scenario 2b), per il quale lo spargimento dei fanghi avviene annualmente per 100 anni consecutivi, e durante i quali per 70 anni un agricoltore vive e lavora nei terreni agricoli. I livelli operativi per ciascun segmento o radionuclide sono calcolati utilizzando i valori di dose massima per kBq kg^{-1} (riportati in grassetto nella Tabella 3) ottenuti mediante modellizzazione con RESRAD-ONSITE rispetto al criterio di dose di 1 mSv y^{-1} .

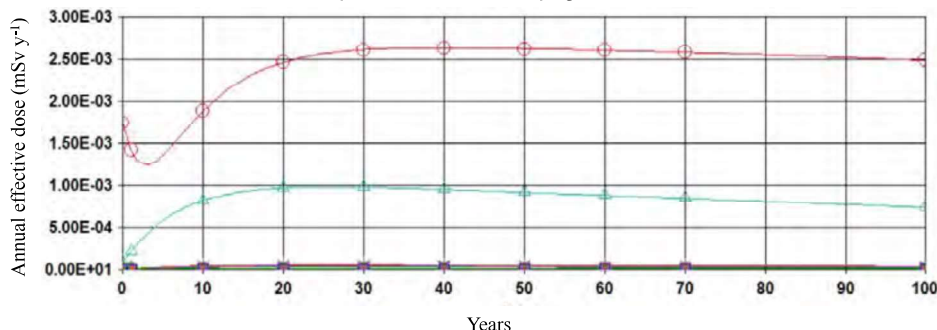
Tabella 3. Coefficienti di dose (CD) e livelli operativi per gli scenari considerati in questo lavoro

Segmento di catena	Dose per kBq kg^{-1} di fango (mSv y^{-1} per kBq kg^{-1})				Livello operativo (kBq kg^{-1})
	Scenario 1a	Scenario 2a	Scenario 1b	Scenario 2b	
U_{nat}	1.4E-03	2.0E-03	2.0E-03	2.2E-03	458
Th-230	5.5E-04	1.4E-03	3.9E-03	6.1E-03	164
Ra-226+	4.8E-02	7.6E-02	1.2E-01	1.4E-01	7
Pb-210+	7.4E-04	8.9E-04	1.5E-02	1.5E-02	66
Po-210	9.6E-06	9.6E-06	1.5E-04	1.5E-04	6485
Th-232&Th-228	4.2E-02	9.3E-02	2.3E-01	3.3E-01	3
Ra-228+	1.1E-02	1.2E-02	3.1E-02	3.1E-02	33
Th-228+	2.7E-03	2.7E-03	6.0E-03	6.0E-03	166
K-40	5.4E-04	5.4E-04	4.1E-03	6.2E-03	160

Per i segmenti Ra-226+ e Th-232&Th-228, i livelli operativi risultano essere dell'ordine di pochi kBq kg^{-1} : questi sono valori possibili nei fanghi provenienti dagli acquedotti (European Commission, 2012; Trotti et al. 2013). I calcoli dei livelli operativi per tutti gli altri radionuclidi, singoli o raggruppati in segmenti, forniscono valori più elevati (da 1 a 3 ordini di grandezza superiori).

La via di esposizione più importante per questi radionuclidi è l'irraggiamento esterno, seguita dall'ingestione delle piante, come mostrato, ad esempio, per il segmento Th-232&Th-228 nell'arco di 100 anni (Fig. 2).

Figura 2. Risultati dose efficace annuale per ciascuna via di esposizione attribuibile ad un unico spargimento annuale di fanghi con concentrazione di attività del suolo (del segmento Th-232&Th-228) pari a $0.00128 \text{ kBq kg}^{-1}$.



Legenda: Irraggiamento esterno: linea rossa; Ingestione di piante: linea verde;

Si sottolinea che finora non è stata eseguita alcuna analisi di sensibilità sui parametri RESRAD-ONSITE, per cui sono necessarie ulteriori indagini per valutare l'impatto, sui risultati del modello, delle ipotesi fatte per gli scenari scelti.

CONCLUSIONI E PROSPETTIVE

L'utilizzo di RESRAD-ONSITE consente di simulare, in modo conservativo, tutte le vie di esposizione relative all'utilizzo dei fanghi di acquedotto nei terreni agricoli. Con questo software sono stati quindi calcolati i coefficienti di dose normalizzati e i livelli operativi per un adulto. Questi valori possono essere utilizzati da un'autorità o un operatore, anche non esperti nel campo della radioprotezione, come strumenti di screening.

Nel caso di fanghi prelevati direttamente dagli impianti di trattamento delle acque, i risultati della simulazione con RESRAD-ONSITE indicano possibili situazioni critiche relative al segmento di catena Ra-226+ e al gruppo di radionuclidi Th-232&Th-228. Per tutti gli altri radionuclidi i livelli operativi calcolati sono così elevati che l'impatto radiologico atteso da questo tipo di residui NORM è molto inferiore a 1 mSv y^{-1} .

In futuro, nell'ambito del progetto europeo RadoNorm, verranno presi in considerazione altri aspetti rilevanti, in particolare:

- un'analisi di sensibilità per studiare in dettaglio il ruolo dei diversi parametri di input, ad esempio lo spessore e la densità della zona contaminata, nella determinazione delle dosi;
- il calcolo dei coefficienti di dose per tutte le categorie di età;
- la valutazione dell'impatto delle diverse diete; nel lavoro i risultati sono stati elaborati utilizzando la dieta tedesca, molto diversa rispetto alle diete di altri paesi (es. paesi mediterranei);
- la valutazione della dose per i lattanti alimentati con latte materno o vaccino, tenendo conto della possibile contaminazione interna da consumo di piante delle madri e delle mucche.

Un altro aspetto da considerare è l'impatto della tecnologia di trattamento delle acque e della tecnologia di purificazione delle acque sotterranee sulle caratteristiche dei fanghi. Ad esempio, la quantità di sostanza secca nel fango è diversa a seconda della tecnologia utilizzata. La rimozione del manganese/ferro produce, per esempio, un tipo di fango fertilizzante ottimale per terreni sabbiosi con ridotta capacità di ritenzione idrica. Questo tipo di informazioni influisce sulla quantità di fanghi che viene utilizzata nella pratica.

Sulla base dei risultati di questo ulteriore lavoro, è prevista una rivalutazione dei livelli di scarico relativi agli scenari della linea guida RP 135 (European Commission, 2003), per contribuire all'eventuale aggiornamento dei valori dei livelli di allontanamento inclusi nella RP 135.

Infine, è in programma la valutazione di dose per uno scenario in cui le acque di controllavaggio dell'acquedotto non sono trattate localmente, ma inviate all'impianto di trattamento delle acque reflue, in analogia a quanto fatto in (European Commission, 2012) e da NRPB (NRPB, 2002). In questo caso RESRAD-ONSITE può anche calcolare le dosi per l'agricoltore, lavoratore e/o residente, ma altri parametri giocano un ruolo importante. La dose, infatti, può essere espressa in funzione dell'attività annua scaricata in fogna dall'acquedotto, dei fattori di ritenzione dei radionuclidi nei fanghi durante il trattamento e della capacità dell'impianto di depurazione. Quest'ultimo parametro influenza fortemente la concentrazione di attività dei fanghi finali da utilizzare come fertilizzante su un terreno agricolo.

BIBLIOGRAFIA

Direttiva 2013/59/EURATOM (2014). *Direttiva 2013/59/EURATOM del Consiglio del 5 dicembre 2013 che stabilisce norme fondamentali di sicurezza relative alla protezione contro i pericoli derivanti dall'esposizione alle radiazioni ionizzanti, e che abroga le direttive 89/618/Euratom,...* Gazzetta ufficiale dell'Unione Europea.

Direttiva 86/278/CEE (1986). *Direttiva 86/278/CEE del Consiglio del 12 giugno 1986 concernente la protezione dell'ambiente, in particolare del suolo, nell'utilizzazione dei fanghi di depurazione in agricoltura.* Gazzetta ufficiale dell'Unione Europea L 181 del 4.7.1986, pagg. 6–12



XXXVIII Congresso Nazionale Airp
Milano, 28 – 30 settembre 2022

European Commission (2002), *Radiation Protection 122: Practical use of the concepts of clearance and exemption - Part II, Application of the concepts of exemption and clearance to natural radiation sources* (2002).

Kunte, A. *Naturally occurring radioactivity in residues of drinking water treatment* EU-NORM 1st International Symposium (Proc. Int. Conf. Tallinn, Estonia, 2012).

Argonne National Laboratory (USA), RESRAD-ONSITE. <https://resrad.evs.anl.gov/codes/resrad-onsite/>.

Decreto Legislativo 27 gennaio 1992, n. 99 *Attuazione della direttiva n. 86/278/CEE concernente la protezione dell'ambiente, in particolare del suolo, nell'utilizzazione dei fanghi di depurazione in agricoltura*. GU Serie Generale n.38 del 15-02-1992 - Suppl. Ordinario n. 28

German Federal Ministry for the Environment, Nature Conservation, Nuclear Safety and Consumer Protection, *Sewage Sludge Ordinance* (2017). <https://www.bmu.de/en/law/sewage-sludge-ordinance>.

ISCORS (2003) Interagency Steering Committee on Radiation Standards (ISCORS-United States) *Assessment of Radioactivity in Sewage Sludge: Modeling to Assess Radiation Doses*, 2003

Ugolini, R., Caldognetto, E., Trotti, F. (2020). *Use of Fertilizers in Agriculture: Individual Effective Dose Estimate*, *Environments* 7 7 (2020).

European Commission (2012), *Estimation of concentrations of radionuclides in Estonian ground waters and related health risks*, Twinning Light Contract No. EE06-IB-TWP-ESC-03.

Trotti, F., et al. (2013) *Estonian waterworks treatment plants: clearance of residues, discharge of effluents and efficiency of removal of radium from drinking water*, *J Radiol Prot* 33 4 (2013) 809-22.

European Commission (2003), *Radiation Protection 135: Effluent and dose control from European Union NORM industries Assessment of current situation and proposal for a harmonised Community approach*-Volume 1: Main Report

NRPB - National Radiological Protection Board (2002), *Generalised Derived Constraints for Radioisotopes of Polonium, Lead, Radium and Uranium*, Documents of the NRPB 13 2 2002.

