

**Titolo**

## Approccio metodologico al monitoraggio dei depositi di rifiuti radioattivi

**Descrittori**

**Tipologia del documento:** Rapporto tecnico  
**Collocazione contrattuale:** Accordo di programma ENEA-MSE: tema di ricerca "Nuovo nucleare da fissione"  
**Argomenti trattati:** Trattamento e stoccaggio dei rifiuti radioattivi

**Sommario**

In questo rapporto si intende avviare l'analisi delle problematiche di monitoraggio dei depositi superficiali di rifiuti radioattivi, affrontando i punti critici e con lo scopo di definire una metodologia di approccio.

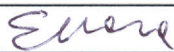
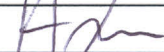
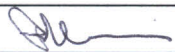
In particolare, si intende porre l'attenzione non sui radionuclidi il cui inventario è più significativo ai fini dell'analisi di sicurezza per il deposito di rifiuti "superficiale" (come ad esempio il  $^{137}\text{Cs}$ , il  $^{90}\text{Sr}$ , il  $^{63}\text{Ni}$  ecc.), ma sui radionuclidi presenti in misura minore (ad es. isotopi radioattivi dello Xenon) e la cui mobilità impone un controllo approfondito.


Tale approccio può essere considerato come metodologia di riferimento da sviluppare anche per altri radionuclidi qui non ancora considerati.

**Note:** Lavoro svolto in esecuzione della linea progettuale LP4 dell'Accordo di Programma ENEA-MSE, PAR2008-09, obiettivo A

**Autori:** Paolo Bartolomei, Riccardo Levizzari, Ruggero Lorenzelli, Elisabetta Nava, Antonietta Rizzo, Stefano Salvi, Alberto Taglioni, Francesco Troiani

**Copia n.**
**In carico a:**

2			NOME			
			FIRMA			
1			NOME			
			FIRMA			
0	EMISSIONE	13/09/2011	NOME	E. Nava	A. Luce	P. Meloni
			FIRMA			
REV.	DESCRIZIONE	DATA	REDAZIONE	CONVALIDA	APPROVAZIONE	

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP4 - 019	0	L	2	38

## INDICE

<b>1</b>	<b>Premessa .....</b>	<b>3</b>
<b>2</b>	<b>Definizione dei termini e glossario' .....</b>	<b>5</b>
<b>3</b>	<b>I principi.....</b>	<b>8</b>
<b>4</b>	<b>Valutazione dei rischi .....</b>	<b>9</b>
<b>5</b>	<b>I requisiti e gli obiettivi del monitoraggio.....</b>	<b>11</b>
<b>6</b>	<b>Il ciclo di vita di un deposito superficiale di rifiuti radioattivi a bassa e media attività....</b>	<b>15</b>
<b>7</b>	<b>Caratterizzazione ambientale a definizione dello stato zero .....</b>	<b>15</b>
<b>8</b>	<b>Monitoraggio dei contaminanti rilasciati all'atmosfera .....</b>	<b>18</b>
<b>9</b>	<b>Potenzialità dei gas nobili radioattivi per il monitoraggio .....</b>	<b>20</b>
<b>10</b>	<b>Monitoraggio della migrazione dei contaminanti nelle acque sotterranee .....</b>	<b>28</b>
<b>11</b>	<b>Monitoraggio della Zona Non Saturata e dei parametri meteorologici .....</b>	<b>29</b>
<b>12</b>	<b>Monitoraggio delle acque superficiali.....</b>	<b>30</b>
<b>13</b>	<b>Ulteriori considerazioni sul monitoraggio di altre matrici ambientali .....</b>	<b>31</b>
<b>14</b>	<b>Conclusioni e sviluppi futuri .....</b>	<b>32</b>
	<b><i>Appendice I: Elenco dei nuclidi rilevanti per il monitoraggio .....</i></b>	<b><i>33</i></b>
	<b><i>Appendice II: Attività preliminari sui gas nobili presentate al workshop WOSMIP .....</i></b>	<b><i>36</i></b>

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP4 - 019	0	L	3	38

## 1 Premessa

Il presente rapporto è complementare a quello su “Stato dell’arte sulle problematiche del monitoraggio ambientale dei depositi radioattivi in accordo alle normative internazionali e implementazione delle stesse in linee guida”, redatto dal CIRTEN (POLITO) nel corso della presente annualità dell’accordo di programma con il MSE.

In questa sede si intende analizzare alcune specifiche problematiche di monitoraggio dei depositi superficiali di rifiuti radioattivi, affrontando taluni punti critici, senza pretesa di completezza, ma con l’intenzione di definire una metodologia di approccio generale che possa essere estesa in un secondo momento ad altre specifiche problematiche e ad altri radionuclidi qui non ancora considerati.

In particolare, si intende porre l’attenzione su quei radionuclidi la cui potenziale mobilità impone un’analisi maggiormente approfondita, sebbene questi possano essere presenti nel rifiuto condizionato in minore quantità. Tale analisi dovrà considerarsi aggiuntiva (e non sostitutiva) ai radionuclidi il cui inventario è più importante nel caso di deposito superficiale, come ad esempio  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{63}\text{Ni}$ , ecc.

Infatti, come evidenziato in un recente workshop internazionale dell’OECD<sup>1</sup>, alcuni radionuclidi possono presentarsi in specie chimiche (cationiche od anioniche) diverse sia per quanto riguarda la carica elettrica, sia per quanto riguarda lo stato di ossidazione o il contenuto di ossigeno. Alcune di tali specie possono risultare più mobili rispetto ad altre, anche dello stesso radionuclide. Quindi, sebbene un certo radionuclide possa presentarsi in bassa concentrazione nel rifiuto condizionato e messo a dimora, esso può dare un maggior contributo di dose alla popolazione, proprio perché essendo più mobile raggiunge più facilmente la biosfera.

Nel suddetto workshop, quindi, l’attenzione si è focalizzata sulle principali specie anioniche dello  $^{129}\text{I}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{79}\text{Se}$  ed in alcuni casi  $^{14}\text{C}$  e  $^{99}\text{Tc}$  per la loro grande mobilità<sup>2</sup>. In particolare, i primi tre nuclidi hanno la capacità di migrare anche attraverso importanti banchi di argilla ed entrare nella biosfera durante la loro vita<sup>3</sup>.

In letteratura questi ultimi nuclidi sono analizzati prevalentemente in riferimento ai depositi geologici profondi, ma per quello che riguarda il monitoraggio molti aspetti del problema sono comuni per le diverse tipologie di deposito ed anche per il monitoraggio degli impianti nucleari di potenza<sup>4</sup>. Pertanto nel presente studio spesso saranno effettuati dei riferimenti incrociati.


Per quello che riguarda gli specifici radionuclidi mobili, si anticipa sin da ora che per il Trizio (isotopo dell’Idrogeno) deve essere effettuato un esame a parte, tenendo conto della sua

<sup>1</sup> Mobile Fission and Activation Products in Nuclear Waste Disposal. Workshop Proceedings. La Baule, France. 16-19 January 2007. OECD 2009

<sup>2</sup> B. Grambow, "Mobile fission and activation products in nuclear waste disposal", Journal of Contaminant Hydrology 102 (2008) 180–186

<sup>3</sup> S. Altmann, "Geochemical research: A key building block for nuclear waste disposal safety cases", Journal of Contaminant Hydrology 102 (2008) 174–179

<sup>4</sup> R. Casanovas et al., "Performance of data acceptance criteria over 50 months from an automatic real-time environmental radiation surveillance network", Journal of Environmental Radioactivity 102 (2011) 742-748

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP4 - 019	0	L	4	38

capacità di migrare anche attraverso le barriere integre, come ad esempio il cemento con cui sono normalmente realizzate le matrici di condizionamento dei rifiuti di media attività<sup>5</sup> o il calcestruzzo con il quale sono realizzate le barriere di contenimento.

Qui, tuttavia, ci si concentrerà nello specifico ad analizzare il caso dei gas nobili radioattivi che sono gli elementi di gran lunga più mobili, mentre in un altro lavoro svolto nell'ambito dell'Accordo di Programma della presente annualità è affrontata in maniera più approfondita la tematica del monitoraggio del Radiocarbonio.

Nelle annualità successive la metodologia qui avviata potrà essere estesa, con le dovute modifiche, agli altri radionuclidi che possono presentare analoghi comportamenti di migrazione.

Il risultato finale dell'insieme di questi studi ed indagini bibliografiche potrà essere utile, non solo per definire un più appropriato piano di monitoraggio del deposito di smaltimento finale, ma anche per fornire preziose informazioni di feedback per il processo di condizionamento, qualora si possa imporre nel manufatto un determinato "potenziale di riduzione" che possa favorire la formazione di specie chimiche a minore mobilità, oppure ricorrere ad additivi selettivi che rendano meno mobili le specie in questione.

---

<sup>5</sup> J. Tits et al., "Diffusion of tritiated water and  $^{22}\text{Na}^+$  through non-degraded hardened cement pastes", Journal of Contaminant Hydrology 61 (2003) 45–62

## 2 Definizione dei termini e glossario<sup>6,7</sup>

**Acquifero.** Complesso litologico permeabile, in tutto o in parte saturo d’acqua, in grado di consentire il deflusso e la captazione di quantità significative di acqua.

**Backfill (riempimento).** Materiale utilizzato per riempire gli interstizi vuoti di deposito o comunque porzioni di scavo di un deposito, durante e dopo che i rifiuti vi siano stati messi a dimora.

**Background (o fondo).** Tutto ciò che in una misura di un parametro fisico o chimico (dose, rateo di dose, radioattività, ecc.) produce una risposta strumentale positiva, analoga al parametro che si sta misurando, ma che sia da attribuire a tutte le altre cause, diverse da quella del parametro che si intende determinare. Molto importante, ai fini del presente documento, è il **fondo di radioattività naturale**, dovuto ai radionuclidi naturali che possono incrementare i valori di dose o di radioattività durante le misure relative ad un certo radionuclide.

**Barriera.** Ostacolo fisico che impedisce o ritarda il movimento dei radionuclidi o altro materiale tra i vari componenti di un sistema. Nel contesto del deposito, sia superficiale che geologico, le barriere possono essere di tipo artificiale, ovvero barriere ingegneristiche (muri, getti, contenitori, schermi, backfill, ecc.), oppure di tipo naturale, ovvero barriere geologiche (formazioni argillose, saline, granitiche, ecc.).

**Caratterizzazione del sito.** Attività di studio e analisi, successive al processo di *siting* e comprensive di indagini dirette e indirette, per definire le proprietà delle matrici ambientali e il contesto sociale e territoriale di un sito candidato ad ospitare un deposito di rifiuti radioattivi, nonché per verificarne il grado di idoneità e valutarne le prestazioni nel breve, medio e lungo termine.

**Caratterizzazione dei rifiuti.** Determinazione delle caratteristiche fisiche, chimiche e radiologiche dei rifiuti, per stabilire il loro comportamento nel tempo, la durabilità delle condizioni isolamento della radioattività e la necessità di ulteriori manipolazioni, trattamenti, condizionamenti, per renderli idonei allo stoccaggio o allo smaltimento.

**Chiusura.** Completamento di tutte le attività (tecniche ed amministrative) alla fine delle operazioni di collocamento dei rifiuti radioattivi (incluso il combustibile esaurito) in un impianto di smaltimento (deposito). Sono comprese nella fase di chiusura gli interventi tecnici finali o ogni altro lavoro necessario per rendere l’impianto sicuro a lungo termine.

**Deposito (definitivo).** Un impianto nucleare dove vengono smaltiti i rifiuti radioattivi. Si distinguono: il **deposito geologico** nel quale i residui radioattivi sono collocati ad alcune centinaia di metri al di sotto della superficie, in una formazione geologica stabile che assicura l’isolamento dei radionuclidi dalla biosfera per tempi lunghi (diverse migliaia o decine di migliaia di anni); il **deposito superficiale** collocato al massimo a qualche decina di metri sotto la

<sup>6</sup> IAEA, RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT GLOSSARY, 2003 Edition

<sup>7</sup> DIRETTIVA 2011/70/EURATOM DEL CONSIGLIO del 19 luglio 2011, L 199/48 Gazzetta ufficiale dell’Unione europea 2.8.2011

superficie o direttamente sul piano di campagna, nel quale l'isolamento è garantito dalle barriere ingegneristiche per tempi brevi o medi (al massimo un migliaio di anni).

**Combustibile nucleare.** Materiale fissile e fertile utilizzato in un reattore nucleare con lo scopo di produrre energia.

**Combustibile esaurito (esausto o irraggiato).** Combustibile nucleare già sfruttato e rimosso in modo definitivo dal nocciolo di un reattore; il combustibile esaurito, in base alle sue caratteristiche chimico-fisiche ed a considerazioni tecnico-economiche, nonché politiche e sociali, può essere considerato una risorsa utilizzabile da ritrattare o può essere destinato allo smaltimento, se considerato rifiuto radioattivo.

**Condizionamento.** Insieme di trattamenti meccanici, chimici e fisici a cui sono sottoposti i rifiuti radioattivi allo scopo di ottenere la loro conversione in una forma solida stabile e duratura, che ne consenta la manipolazione, lo stoccaggio, il trasporto ed infine lo smaltimento.

**Confinamento.** Sistema di barriere che circonda senza soluzione di continuità un materiale radioattivo, che è stato progettato per prevenire o attenuare il rilascio di radioattività nell'ambiente. Il termine confinamento è anche utilizzato come sinonimo di **contenimento**, ma in genere si riferisce alle barriere immediatamente circostanti il materiale radioattivo, mentre il contenimento si riferisce agli strati aggiuntivi di difesa finalizzati ad evitare che la radioattività raggiunga l'ambiente in caso di rottura dei sistemi di confinamento.

**Controllo istituzionale.** Insieme di azioni tecniche ed amministrative per il controllo di un deposito dopo la chiusura da parte di un'autorità istituzionalmente designata. Il controllo può essere attivo (monitoraggio, sorveglianza, ecc.) o passivo (controllo amministrativo del territorio). Le modalità di controllo istituzionale sono un fattore importante per la progettazione di un deposito.

**Decommissioning (smantellamento).** Insieme di azioni amministrative e tecniche adottate per smantellare un impianto, fino alla rimozione di tutti o della maggior parte dei vincoli radiologici e dei meccanismi di controllo previsti dalla licenza di esercizio dell'impianto stesso. Questo termine non si applica ai depositi e alle attività minerarie per le quali si parla di chiusura.

**Dose.** Quantità di energia per unità di massa depositata dalla radiazione ionizzante in un corpo o materiale. Nel caso di materiale biologico vivente (corpo umano) si utilizza l'**equivalente di dose**, ovvero la dose moltiplicata per un fattore di correzione (fattore di qualità) per tener conto del diverso danno biologico che la stessa dose può provocare a seconda della tipologia di radiazione.

**Gruppo critico della popolazione.** Insieme ragionevolmente omogeneo di membri della popolazione che è potenzialmente esposto alle massime conseguenze dei rilasci radioattivi, sia in caso di normale esercizio di un impianto sia in caso incidentale.

**Limite di dose.** Il valore massimo di dose alla quale può essere esposta una persona. Tale limite è stabilito dalla normativa nazionale.

**Lisciviazione.** Fenomeno attraverso il quale una sostanza solubile può essere estratta da un corpo solido ad opera di un solvente con cui il solido viene in contatto. Tale termine è spesso

utilizzato nella gestione dei rifiuti radioattivi per descrivere il graduale rilascio di radioattività in caso un rifiuto condizionato (solido) venga incidentalmente in contatto con l'acqua (solvente).

**Livello di esenzione (di allontanamento o clearance level).** Valore di un certo parametro, stabilito per legge o da un organismo deputato, al di sotto del quale il materiale è esentato dall'applicazione della normativa specifica che ne regola l'impiego. Nel caso della radioattività si utilizza anche il **limite di allontanamento (clearance level)** espresso in termini di attività relativa e/o di attività totale, al di sotto del quale un rifiuto radioattivo può essere considerato come rifiuto convenzionale.

**Materiale fissile.** Uranio-233 e Uranio-235, Plutonio-239 e Plutonio-241, o qualsiasi loro combinazione. Sono esclusi i materiali in cui il contenuto di tali isotopi è inferiore ai livelli di esenzione, quali ad esempio l'Uranio naturale e l'Uranio impoverito non irraggiati.

**Monitoraggio (sorveglianza).** Misura continua o periodica di parametri chimici, fisici e radiologici per la determinazione dello stato di un sistema.

**Monitoraggio radiologico ambientale.** Misurazione e valutazione di parametri radiologici (dose, radioattività, ecc.) determinati dalla presenza di sorgenti radioattive diffuse nell'ambiente. Si parla di **biomonitoraggio** quando le stesse misure sono effettuate tramite organismi viventi (muschi, licheni, alcuni tipi di funghi, ecc.) in grado di concentrare gli inquinanti (radioattivi e non) o di attuare dei meccanismi di concentrazione (le api durante la raccolta del polline).

**Prodotti di fissione.** Radionuclidi prodotti dalla fissione nucleare.

**Rifiuti radioattivi.** Qualsiasi materia radioattiva in forma solida, liquida o gassosa, per la quale non è previsto nessun ulteriore utilizzo e che sia regolamentata e tenuta sotto controllo da un'autorità competente, conformemente al quadro legislativo e regolamentare dello Stato.

**Ritrattamento.** Processo od operazione intesi ad estrarre materie fissili e fertili dal combustibile esaurito ai fini di un ulteriore uso.

**Selezione del sito (siting).** Insieme di studi, analisi, valutazioni ed indagini tecniche che compongono il processo di selezione di un sito idoneo all'ubicazione di un deposito per lo smaltimento dei rifiuti radioattivi.

**Smaltimento.** Collocazione di rifiuti radioattivi o di combustibile esaurito in un impianto senza intenzione di recuperarli successivamente.

**Sorveglianza.** Attività svolte per garantire che le condizioni di funzionamento di un impianto nucleare siano conformi alle prescrizioni. Per un deposito superficiale la sorveglianza normalmente continua anche dopo il periodo di esercizio e di chiusura, sebbene con modalità diverse.

**Termine sorgente.** Insieme di valori numerici che indica la radioattività e le condizioni (composizione, tipologia e stato fisico del materiale, il suo ammontare iniziale, la velocità e le modalità di rilascio) in cui si trova un materiale radioattivo rilasciato incidentalmente nell'ambiente. Tale termine è ipotizzato nello studio preventivo delle dinamiche incidentali al fine di mettere in atto le adeguate misure protettive per la popolazione.

**Zona satura.** Parte del sottosuolo, al di sotto della zona non satura, in cui tutti gli interstizi del terreno sono riempiti dall'acqua, che si muove per moto proprio se sottoposta ad un gradiente idraulico.

**Zona non satura.** Parte del sottosuolo nella quale gli interstizi sono aerati e contengono acqua sotto forma di umidità o vapore acqueo. Può essere divisa in:

**zona di evapotraspirazione** che sta a contatto con la superficie: lo spessore di questa zona è molto variabile a seconda del clima e della vegetazione;

**zona di transizione** che si trova al centro della zona non satura: in questa zona le acque circolano solo verso la falda;

**frangia capillare** che è la zona che sta immediatamente al di sopra della zona satura e ha con essa un legame stretto; il movimento delle acque è verticale e bidirezionale a seconda dei movimenti della falda.

### 3 I principi

Per affrontare il tema del “monitoraggio” dei depositi occorre avere presente quali sono i principi ai quali si deve fare riferimento per la gestione del ciclo dei rifiuti radioattivi. Questi sono innanzi tutto individuati dalla “Convenzione congiunta sulla sicurezza della gestione del combustibile irraggiato e sulla sicurezza della gestione dei rifiuti radioattivi”, ratificata dall'Italia nel 2006:

1	Proteggere la salute umana
2	Proteggere l'ambiente
3	Proteggere i territori oltre frontiera
4	Proteggere le future generazioni
5	Non gravare di oneri impropri le future generazioni
6	Disporre di un adeguato sistema legislativo e regolamentare nazionale
7	Assicurare il controllo e la minimizzazione della produzione dei rifiuti radioattivi
8	Assicurare una gestione integrata dei rifiuti radioattivi
9	Assicurare la sicurezza degli impianti dedicati alla gestione dei rifiuti radioattivi, per il tempo di vita degli stessi

A questi è sicuramente da aggiungere la protezione della biodiversità, così come stabilito dalla “Convenzione sulla diversità biologica” ratificata dall'Italia nel 1994 (per inciso il 2010 è stato l'anno internazionale della biodiversità).

L'altra fonte normativa per l'individuazione dei principi è la “Convenzione di Århus” sull'informazione ambientale ratificata dall'Italia nel 2001 che interviene lungo tre direttrici:

1. assicurare l'accesso del pubblico alle informazioni sull'ambiente detenute dalle autorità pubbliche;
2. favorire la partecipazione dei cittadini alle attività decisionali aventi effetti sull'ambiente;
3. estendere le condizioni per l'accesso alla giustizia in materia ambientale.

Nella filosofia della Convenzione l'informazione non è semplice divulgazione, ma investe tutti i

seguenti aspetti: adozione di misure legislative idonee; assistenza e orientamento ai cittadini, agevolandone l'accesso alle informazioni, la partecipazione ai processi decisionali e l'accesso alla giustizia; promozione dell'educazione ecologica dei cittadini; riconoscimento e sostegno alle associazioni, i gruppi o le organizzazioni aventi come obiettivo la protezione dell'ambiente e la partecipazione del pubblico al processo decisionale. L'ultimo aspetto della convenzione riguarda l'accesso alla giustizia, che è garantito anche nel caso di violazione della procedura di partecipazione prevista.

La Direttiva EURATOM 2011/70 del 19 luglio 2011, che istituisce un quadro comunitario per la gestione responsabile e sicura del combustibile nucleare esaurito e dei rifiuti radioattivi e che da ora in avanti dovrà essere il riferimento principale per tutte le attività nel settore, si muove nel solco delineato dalle convenzioni e, a sua volta, definisce alcuni principi generali che non sono più enunciazioni di principio, ma a questo punto sono obblighi normativi per gli stati membri:

- a) la generazione di rifiuti radioattivi è tenuta al minimo ragionevolmente praticabile, tanto in termini di attività quanto di volume, mediante adeguate misure di progettazione e pratiche di esercizio e disattivazione, compresi il riciclaggio e il riutilizzo di materie prime;
- b) sono tenute in considerazione le interconnessioni tra tutte le fasi della generazione e gestione del combustibile esaurito e dei rifiuti radioattivi;
- c) il combustibile esaurito e i rifiuti radioattivi sono gestiti in sicurezza, anche nel lungo periodo con caratteristiche di sicurezza passiva;
- d) l'attuazione delle misure segue un approccio calibrato;
- e) i costi per la gestione del combustibile esaurito e dei rifiuti radioattivi sono sostenuti da coloro che hanno prodotto questi stessi materiali;
- f) si applica un processo decisionale documentato e basato su prove in relazione a tutte le fasi della gestione del combustibile esaurito e dei rifiuti radioattivi.

È chiaro che l'attuazione del punto f) presuppone l'esistenza di un adeguato programma di monitoraggio. L'ultima cosa da notare è che proprio nella seduta dell'approvazione il Consiglio d'Europa ha introdotto un'importante modifica rispetto a tutte le bozze approvate in precedenza, cioè ha introdotto all'Art. 10 l'obbligo della massima trasparenza in tutte le fasi di gestione del ciclo dei rifiuti. Di ciò occorrerà tenere conto e il mettere a disposizione della popolazione i dati del monitoraggio non sarà una concessione, ma l'adempimento di un obbligo legislativo.

#### 4 Valutazione dei rischi<sup>8</sup>

La valutazione dei rischi radiologici è un processo complesso che richiede approcci multidisciplinari e studi su un arco temporale molto lungo. Nonostante la materia abbia

---

<sup>8</sup> questo paragrafo è tratto in gran parte da: M. Belli, Effetti biologici delle basse dosi: una sfida attuale in radioprotezione, Atti del Convegno Associazione Italiana di Fisica medica, I vol. pp.372-375, ed. AIFM 2009 e dal contributo di M. Belli per il libro in corso di pubblicazione "Energia nucleare oggi: risposta alle domande più frequenti", ed. Nuova Cultura

raggiunto complessivamente un buon grado di affidabilità, sono stati recentemente messi in luce alcuni aspetti che potrebbero costituire possibili elementi di debolezza nell'attuale sistema di valutazione dei rischi, ad esempio in relazione ai rischi dei bambini, alla variabilità individuale della radiosensibilità, all'influenza del tipo di radiazione, agli effetti non cancerogeni, alla protezione degli ecosistemi e delle specie non umane, agli effetti delle dosi basse e protratte. In particolare su quest'ultimo aspetto s'incentra attualmente un vivace dibattito.

La valutazione dei rischi di cancerogenesi, da radiazioni ionizzanti secondo l'approccio attualmente supportato dall'ICRP<sup>9,10</sup> e dall'UNSCEAR<sup>11</sup> è basata sull'assunzione di una relazione dose-risposta di tipo lineare senza dose-soglia (ipotesi "*Linear, No-Threshold*" o LNT), sostanzialmente estrapolando i dati epidemiologici dei sopravvissuti giapponesi alle esplosioni atomiche di Hiroshima e Nagasaki.

Poiché non è stato sinora possibile distinguere con certezza, neanche mediante "*markers molecolari*", i tumori indotti dalle radiazioni da quelli dovuti ad altre cause, la possibilità di evidenziarli rispetto a quelli dovuti all'incidenza "*spontanea*" si è sinora basata sull'analisi statistica dei dati epidemiologici. Date però le limitazioni della potenza statistica di questa analisi quando si voglia mettere in evidenza effetti a dosi basse, le conoscenze radiobiologiche sono essenziali per l'estrapolazione alle basse dosi dei dati epidemiologici. Il paradigma radiobiologico "*convenzionale*" utilizzato attualmente si focalizza sui danni al DNA indotti dai depositi d'energia nel nucleo cellulare e sulla loro riparabilità. Ciò implica che alle basse dosi l'effetto biologico sia direttamente proporzionale all'energia depositata nel DNA, coerentemente con l'ipotesi LNT, giustificando altresì l'assunzione dei vari fattori di correzione (DDREF-fattore di riduzione per la dose e il rateo di dose,  $w_R$  - fattore di peso della radiazione e  $w_T$  - fattore di peso per l'organo/tessuto) che trasformano la dose assorbita nella dose equivalente e nella dose efficace le quali diventano quindi, sotto l'ipotesi LNT, indicatori del rischio<sup>12</sup>.

Negli ultimi tempi il paradigma convenzionale della radiobiologia è stato messo in discussione dalle evidenze di vari fenomeni biologici in cui l'effetto non appare derivare in modo semplice e diretto dal danno al DNA del nucleo cellulare irradiato ("*non-DNA-targeted effects*"). Ciascuno di essi implica una risposta biologica non lineare alle basse dosi, con effetti però diversi e anche in direzioni opposte. Alcuni di questi fenomeni erano già noti da tempo, ma solo recentemente si è iniziato ad inserirli in un quadro di più ampio significato e a considerarli l'espressione di meccanismi biologici generali. Questo quadro induce a ritenere che le stime di rischio attuali possano essere affette da una rilevante incertezza alle basse dosi (soprattutto per le esposizioni protratte), non solo per quanto riguarda la presenza di eventuali soglie, ma anche in generale per la forma della risposta. Evidenze di differenze nelle risposte biologiche a dosi protratte rispetto a quelle a dosi acute (alle quali sono riferiti i dati epidemiologici di Hiroshima e

<sup>9</sup> ICRP (2005). Low dose extrapolation of radiation-related cancer risk. ICRP Publication 99, Annals of the ICRP 35 (4), Elsevier Science Ltd, Oxford.

<sup>10</sup> ICRP (2007). "The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection". Publication 103, Ann. ICRP, Vol. 37

<sup>11</sup> UNSCEAR (2000). United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. "Sources and effects of ionizing radiation. United Nations, New York.

<sup>12</sup> Belli M, Recenti sviluppi della radiobiologia cellulare. *Fisica in Medicina*, 300-310 (2004)

Nagasaki) e di variabilità individuali nella radiosensibilità a causa di determinanti genetici ed ambientali contribuiscono ulteriormente a mettere in discussione l'uso della dose come unico indicatore di rischio. Nuove informazioni si vanno inoltre raccogliendo sugli effetti non cancerogeni delle radiazioni, anche a dosi inferiori alle soglie attualmente assunte, in particolare sul sistema cardiocircolatorio, sulle funzioni cognitive e sull'induzione di cataratta<sup>13</sup>.

È oggi ampiamente riconosciuta dalla comunità scientifica internazionale la necessità di ridurre drasticamente le attuali incertezze sulla valutazione dei rischi alle basse dosi e ai bassi ratei di dose attraverso ricerche mirate e multidisciplinari che giungano ad un nuovo paradigma della radiobiologia superando quello convenzionale anche attraverso l'integrazione con specifici studi epidemiologici. Poiché qualsiasi sottostima o sovrastima dei rischi sanitari potrebbe comportare o livelli di protezione insufficienti oppure restrizioni non necessarie, la riduzione di tali incertezze ha potenzialmente un enorme impatto sul sistema di radioprotezione e sulle risorse economiche che devono essere allocate per tenere la protezione ad un livello accettabile, influenzando sulla capacità di sviluppare applicazioni sostenibili delle radiazioni ionizzanti in tutte le loro applicazioni, inclusa la produzione di energia nucleare.

Gli Stati Uniti e il Giappone hanno stabilito ampi programmi di ricerca nel settore ed anche l'UE ha recentemente delineato una strategia europea<sup>14 15 16</sup>.

In attesa dei risultati di queste complesse ricerche, previsti su un arco temporale di qualche decina d'anni, appare opportuno tenere un approccio cautelativo sugli effetti delle dosi basse e protratte come condizione per lo sviluppo sostenibile dell'energia nucleare.

La tematica delle basse dosi è estremamente importante nel caso dei depositi di rifiuti radioattivi dato che eventuali rilasci radioattivi, anche minimi si possono protrarre per tempi lunghi o lunghissimi. Ciò comporta, come requisito per il monitoraggio, la necessità di essere in grado di rilevare livelli molto bassi di presenza di radionuclidi.

Il possibile superamento del concetto di dose impone altresì grande prudenza nell'individuazione dei nuclidi significativi da tenere sotto controllo attuando un atteggiamento conservativo, cioè mantenendo il più ampio possibile il ventaglio dei parametri da tenere sotto controllo.

## 5 I requisiti e gli obiettivi del monitoraggio

Incanalandosi sulla strada delineata da questi principi le organizzazioni internazionali preposte (in particolare la IAEA) hanno sviluppato, in una serie di pubblicazioni<sup>17,18,19</sup>, le linee guida per

<sup>13</sup> UNSCEAR (2006). United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. "Effects of ionizing radiation" United Nations, New York

<sup>14</sup> MELODI-Multidisciplinary European Low Dose Initiative, [www.melodi-online.eu](http://www.melodi-online.eu)

<sup>15</sup> M. Belli, A. Ottolenghi and W. Weiss. The European strategy on low dose risk research and the role of radiation quality according to the recommendations of the "ad hoc" High Level and Expert Group (HLEG). *Radiat Environ Biophys.* 49:463-468 (2010).

<sup>16</sup> M. Belli, S. Salomaa and A. Ottolenghi. MELODI – THE "MULTIDISCIPLINARY EUROPEAN LOW DOSE INITIATIVE". *Radiation Protection Dosimetry*, doi:10.1093/rpd/ncq392 (2010)

<sup>17</sup> The Fundamental Safety Principles (SF-1).

una corretta sorveglianza dei depositi. In questi lavori sono ben sviluppate le tematiche relative alla sicurezza nucleare e protezione sanitaria ed in generale le questioni poste dalla convenzione congiunta sul combustibile ed i rifiuti nucleari. Da questo punto di vista lo sviluppo del lavoro necessario appare ben delineato: si tratta di adattare alla situazione italiana il lavoro già svolto a livello internazionale. Ciò non significa che sia un compito facile date le peculiarità del contesto nazionale.

Per quello che riguarda la protezione della biodiversità pur essendo disponibili pubblicazioni tecniche della IAEA<sup>20</sup>, la tematica è sviluppata più approfonditamente nelle attività scientifiche di associazioni come la *International Union of Radioecology* e nella letteratura scientifica generale<sup>21,22</sup>.

Il tema dell'informazione sul monitoraggio, ovvero di come devono essere resi disponibili al pubblico i dati raccolti e la loro interpretazione non è stato invece sufficientemente sviluppato. Si tratta di una carenza non banale perché uno dei presupposti fondamentali dell'accettabilità sociale di un deposito è la disponibilità continua ed illimitata di tutte le informazioni raccolte sulla sicurezza e la protezione sanitaria. Il problema è che non è sufficiente la messa a disposizione dei dati raccolti, ma occorre anche dimostrare la completezza e la qualità del set di dati raccolti. E ancora, non è sufficiente che completezza e qualità siano adeguati per lo stato dell'arte attuale, ma occorre che la tipologia del monitoraggio tenga conto della possibile evoluzione delle conoscenze.

Nello specifico il programma di monitoraggio innanzitutto deve evidenziare la presenza o la non misurabilità, al di fuori del sito di deposito, di radioattività attribuibile al deposito stesso<sup>23</sup>.

Il programma deve essere commisurato al potenziale rischio associato al deposito ed essere in grado di segnalare eventuali inadeguatezze o deterioramenti nella funzione di isolamento radiologico assicurata dalle strutture del deposito e nella funzione di rilevamento tempestivo delle anomalie affidata al programma di sorveglianza in sito. Quindi in prima istanza deve essere in grado di confermare le assunzioni sulle quali è stata basata l'analisi di sicurezza e di dimostrare l'ottemperanza alle prescrizioni, alla normativa e alla legislazione in materia di protezione dei lavoratori, della popolazione e dell'ambiente, sia per quello che riguarda le emanazioni radiologiche sia l'eventuale presenza di sostanze chimiche pericolose. Il suo compito non deve però limitarsi a evidenziare eventuali scostamenti dalla normativa, ma deve essere in grado di rilevare anche eventuali anomalie che, pur non avendo significato da un punto di vista sanitario e ambientale, potrebbero essere sintomo di deterioramento delle barriere.

---

<sup>18</sup> Near Surface Disposal of Radioactive Waste (WS-R-1)

<sup>19</sup> Geological Disposal of Radioactive Waste (WS-R-4)

<sup>20</sup> IAEA, 2002. Ethical Considerations In Protecting The Environment From The Effects Of Ionizing Radiation. Iaea, Vienna, 2002, IAEA-TECDOC-1270

<sup>21</sup> D. Oughton Protection of the environment from ionising radiation: ethical issues *J. Environ. Radioactivity* 66 (2003) 3–18

<sup>22</sup> J. Radiol. Prot. 27 (2007) 391–404

<sup>23</sup> UNI 11279-3 "Deposito ingegneristico per manufatti di rifiuti radioattivi di Categoria 2 Parte 3: Criteri base di sorveglianza e monitoraggio", 2008

La definizione del programma di monitoraggio, sia spaziale che temporale, deve essere basata sulle assunzioni, sui modelli e sulle risultanze dell'analisi di sicurezza. In particolare, le postazioni di misurazione devono essere collocate tenendo conto delle potenziali vie di rilascio e di migrazione nell'ambiente, mentre le frequenze di campionamento e misurazione delle diverse matrici ambientali devono essere definite con riferimento alla velocità con la quale i parametri di interesse possono cambiare.

I campionamenti saranno effettuati sulle principali matrici ambientali (acque superficiali e sotterranee, aria, suolo) e su matrici biologiche che possono in qualche modo rappresentare un anello della catena alimentare o un sistema naturale di accumulo dei radionuclidi, quali le radici dei vegetali<sup>24</sup>. In questa fase di controllo istituzionale è anche prevista un'attività di sorveglianza fisica continua o periodica dell'infrastruttura, per evitare accessi indebiti e per segnalare eventuali danneggiamenti alle opere infrastrutturali in grado di ridurre la funzionalità delle barriere ingegneristiche.

E' importante sottolineare come sia opportuno programmare e progettare un sistema di monitoraggio ambientale efficace, che permetta di evidenziare nel breve termine eventuali radionuclidi dal deposito e che consenta successivamente di definirne nel dettaglio la dinamica. Questo perché le risorse economiche per una simile attività non possono essere illimitate e vanno quindi ottimizzate concentrando le indagini su quei caratteri ambientali o parametri indicatori, che meglio di altri possono fornire segnali di allarme sull'emissione di inquinanti radioattivi nell'ambiente. Per questa finalità è opportuno progettare un sistema di monitoraggio suddiviso strutturalmente in due sezioni:

- dispositivi o sistemi di campionamento e analisi in grado di rilevare l'emissione di radionuclidi e quindi l'aumento del livello di radioattività nell'ambiente (*detection monitoring*);
- un sistema in grado di definire precisamente la tipologia di emissione e tutti gli aspetti di dettaglio relativi alla contaminazione (*assessment monitoring*).

Questi sistemi potranno anche essere integrati con i dispositivi eventuali di monitoraggio posti all'interno del deposito, di cui potranno costituire l'estensione verso l'ambiente esterno. Il programma di rilievo dovrà poi tenere conto anche del tempo di decadimento dei radionuclidi bersaglio.

Il monitoraggio ambientale svolge anche un'altra importante funzione, cioè permette di controllare la dinamica evolutiva che può coinvolgere le singole matrici ambientali, visto che queste sono soggette a mutamenti naturali o indotti dall'esterno. L'esempio più tipico riguarda il deflusso delle acque sotterranee, che non può essere considerato costante e immutabile ma che, al contrario va considerato in evoluzione nel breve termine in funzione delle variazioni stagionali, ma anche nel lungo termine in funzione dei mutamenti climatici, della modifica dei corpi idrici superficiali, delle opere antropiche di sfruttamento delle acque, ecc. Poiché le acque di falda, come evidenziato nei successivi paragrafi, rappresentano il principale sistema di trasporto di eventuali radionuclidi, è opportuno monitorarne la loro dinamica quali-quantitativa

---

<sup>24</sup> Sokolik A. I., Demko G. G., Demidchik V. V., 1996. Mechanisms of radionuclides <sup>137</sup>Cs+ and <sup>90</sup>Sr2+ uptake by plant root system. Radiol Cons Chernobyl Accident. EU, Luxembourg. P. 165-169

per prevedere il trasporto delle specie chimiche veicolate a seguito di perdite dalle barriere ingegneristiche.


Il monitoraggio dovrebbe essere concepito come lo strumento di controllo autonomo da mettere a disposizione delle amministrazioni interessate in tutte le fasi operative: pre-operazionale, operativa, post-chiusura. Quindi l'autonomia dall' esercente del deposito dovrebbe essere completa sia dal punto di vista tecnico (apparecchiature, campionamenti) sia dal punto di vista gestionale (deve afferire ad un altro soggetto giuridico diverso dall' esercente). In più il programma dovrebbe anche essere percepito come autonomo e per questo è importante la comunicazione, la trasparenza delle modalità di funzionamento e la pubblicità dei dati rilevati.

I programmi di sorveglianza e monitoraggio devono essere in grado di rilevare contaminanti attribuibili esclusivamente al deposito e, contemporaneamente, l' assenza di variazioni statisticamente significative nei livelli di altri radionuclidi non attribuibili esclusivamente al deposito. A tale scopo, devono essere utilizzati sistemi di misurazione in grado di assicurare idonei valori di minima quantità rivelabile, sufficienti a supportare i risultati dell' analisi di sicurezza. D' altro canto la presenza inattesa di alcuni nuclidi in particolari campioni o l' incremento inatteso della concentrazione di altri al di fuori del deposito devono indicare, con adeguata tempestività, l' eventuale necessità di specifiche indagini e di ulteriori azioni protettive.

Il programma di sorveglianza ed il programma di monitoraggio devono complessivamente possedere le seguenti caratteristiche:

- capacità di rivelare cambiamenti delle strutture ingegneristiche e dei sistemi del deposito che ne potrebbero influenzare le prestazioni di contenimento radiologico;
- capacità di rivelare i contaminanti radioattivi di interesse;
- procedure di campionamento in grado di tenere sotto controllo le possibili variazioni delle caratteristiche radioattive, fisiche e chimiche dei contaminanti che potrebbero essere rilasciati dal deposito;
- sufficiente numero di postazioni di misurazione in grado di rivelare ogni significativa migrazione di radionuclidi verso la falda freatica;
- sufficiente numero di postazioni di misurazione in grado di rivelare ogni significativo rilascio di radioattività all' atmosfera;
- sufficiente numero di postazioni di misurazione in grado di rivelare ogni significativo trasporto di radionuclidi nelle acque superficiali in prossimità del deposito;
- misurazione dei livelli di dose ambientale all' interno e all' esterno del deposito;
- controllo di diverse matrici ambientali rappresentative (vegetali, pesci, molluschi di acqua dolce, sedimenti, piante acquatiche, terreni, ecc.);
- procedure di riferimento documentate e tenute sotto controllo;
- conservazione e analisi statistica dei dati.

In particolare i radionuclidi di interesse possono comprendere prodotti di fissione, prodotti di attivazione, transuranici. È inoltre necessario includere nei programmi di sorveglianza e monitoraggio la verifica del rilascio di metalli pesanti e di materiali organici. Se possibile è opportuno utilizzare bioindicatori e bioaccumulatori (muschi, licheni, alcune specie di funghi e piante, specie di insetti come le api...) per aumentare la sensibilità di rilevazione.

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP4 - 019	0	L	15	38

Le procedure di campionamento devono tener conto dei tempi attesi per l'eventuale migrazione dei diversi radionuclidi.

## **6 Il ciclo di vita di un deposito superficiale di rifiuti radioattivi a bassa e media attività**

L'analisi del ciclo di vita di un deposito superficiale di rifiuti radioattivi a bassa e media attività è utile per comprendere al meglio le attività svolte dai tecnici nelle diverse fasi di progettazione, realizzazione e gestione. La selezione del sito, cui ci si riferisce con il termine anglosassone *siting*, rappresenta la prima fase di sviluppo dell'opera e può essere a sua volta suddivisa in sottofasi: dall'applicazione di criteri di esclusione, per restringere il numero delle potenziali aree di localizzazione, fino all'individuazione definitiva del sito finale<sup>25</sup>. Tutte le informazioni ed i dati raccolti nell'ambito di questi studi saranno fondamentali per organizzare le successive indagini ingegneristiche, ambientali e territoriali di approfondimento.

La caratterizzazione ambientale del sito rappresenta lo stadio di sviluppo successivo alle attività di *siting*, cui seguono a loro volta le attività di progettazione di massima ed esecutiva dell'infrastruttura, sulla base delle specifiche previste e delle condizioni ambientali in cui si inserirà l'opera.

A queste segue la fase di realizzazione e di esercizio del deposito, che durerà complessivamente 30-40 anni e terminerà con la sua chiusura. La fase di esercizio è contraddistinta dalle attività di monitoraggio operativo che, sebbene per certi versi possa avere qualche attinenza con l'oggetto del presente documento, non rappresenta l'argomento principale di seguito trattato.

La chiusura del deposito dà avvio alla fase di controllo istituzionale, che comporta la vigilanza e il monitoraggio ambientale del deposito e del sito nel suo insieme. Quest'ultimo, che rappresenta l'oggetto della presente ricerca, si protrarrà per qualche centinaio di anni dopo la chiusura del deposito ed ha la finalità di valutare l'impatto dell'opera sulle diverse matrici ambientali; in sostanza lo scopo principale è quello di verificare l'assenza di emissioni di radionuclidi dalle infrastrutture del deposito, garantendo quindi la sicurezza dell'ambiente e della popolazione.

Al termine del controllo istituzionale, quando il livello di radioattività avrà raggiunto valori prossimi a quelli del fondo naturale e il suo impatto sull'uomo e sull'ambiente sarà insignificante, si procederà al rilascio illimitato del sito, a seguito del quale ogni forma di controllo potrà essere interrotta.

## **7 Caratterizzazione ambientale a definizione dello stato zero**

Per caratterizzazione ambientale, o più semplicemente caratterizzazione, si intende, anche se in modo non del tutto esaustivo, l'insieme delle attività di studio, ricerca, indagine, raccolta ed

<sup>25</sup> Levizzari R., Zarlenga F., 2010. Considerazioni geologico-territoriali e ambientali nella scelta di un'area per l'ubicazione di un deposito di rifiuti radioattivi a bassa attività. ENEA, Ministero dello Sviluppo Economico, Ricerca di sistema elettrico, Report RdS/2010/124.

elaborazione dati finalizzate alla definizione qualitativa e quantitativa dei caratteri fisico-chimici e radiologici più rilevanti delle matrici ambientali in cui il sito si inserisce, cui si affiancano le indagini di caratterizzazione territoriale del sito stesso; queste informazioni permetteranno di definire il suo modello concettuale descrittivo e verificare l'impatto non solo sulle matrici ambientali, ma anche sugli altri aspetti territoriali (sociali, urbanistici, economici, ecc.) dell'area in cui si ritiene possano verificarsi impatti significativi durante la realizzazione, l'esercizio e le attività del periodo di post-chiusura. Come visto, per questa finalità potranno essere utilizzati anche i risultati delle indagini e delle elaborazioni effettuate per l'attività di *siting*.

Uno dei principali aspetti tecnici oggetto di indagine riguarda i valori radiologici del fondo naturale, per chiarire quello che viene spesso definito lo *stato zero*, cioè i valori di radioattività naturale già presenti nel sito di ubicazione prima della realizzazione del deposito: un aumento dei valori di radioattività del fondo naturale possono rappresentare un indice di eventuali fenomeni di rilascio di radionuclidi dall'opera in progetto. Questo aspetto potrà essere ulteriormente dettagliato mediante un'analisi storica dell'accumulo dei radionuclidi legati al fall-out delle esplosioni nucleari e degli incidenti nucleari, in sistemi naturali quali legno, sedimenti, componenti biologiche, ecc.

La caratterizzazione del sito prescelto per l'ubicazione del deposito dovrà avvenire in modo iterativo per step successivi, a grande e piccola scala, restringendo e dettagliando sempre di più le informazioni sulle matrici ambientali di studio. Un approccio strutturato per poter progettare un'efficace attività di caratterizzazione è stato già proposto nell'ambito di questa stessa linea progettuale<sup>26</sup>. Solo in questo modo si potrà definire con chiarezza il contesto geologico-ambientale e territoriale dell'area, partendo ovviamente dai dati già raccolti nella fase di *siting*. La corretta caratterizzazione di tutti gli elementi che formano il sistema permetterà di progettare e organizzare il monitoraggio ambientale, in termini di numero di campionamenti, sotto-sistemi ambientali da campionare, ubicazione dei punti di monitoraggio, tipologia di prelievo e analisi, ecc. L'insieme di tali dati, oltre ad essere necessario per i fini predetti, costituirà anche la base conoscitiva per la realizzazione dei modelli matematici utili alla definizione degli scenari di rischio.

A valle del processo di caratterizzazione dovranno essere accuratamente identificati i principali aspetti che hanno reso l'area idonea per l'ubicazione del deposito, ma anche tutti i fattori ambientali intrinseci che potrebbero in parte ridurre la sicurezza del deposito in termini di emissione di inquinanti. È infatti ovvio che non sarà possibile identificare un sito con caratteristiche ideali per l'ubicazione di una simile opera, in grado di garantire in modo ottimale e con un'assoluta sicurezza il contenimento a lungo termine dei radionuclidi e l'isolamento dalla biosfera, soprattutto in riferimento agli eventi naturali; si può però individuare un sito con caratteristiche idonee, dove la conoscenza dei fattori meno favorevoli costituisca la giusta premessa per la loro corretta gestione nell'ambito delle attuali soluzioni tecnologiche ed ingegneristiche, in modo da garantire precisi aspetti di sicurezza. Un concreto esempio di quanto esposto riguarda le vie preferenziali di migrazione dei fluidi nella formazione geologica ospite, per l'eventuale presenza di intercalazioni sedimentarie a granulometria più grossolana

<sup>26</sup> Levizzari R., 2010. Un approccio metodologico strutturato nella caratterizzazione geologico-ambientale di un sito per l'ubicazione di un deposito superficiale di rifiuti radioattivi di seconda categoria. ENEA, Ministero dello Sviluppo Economico, Ricerca di sistema elettrico, Report RdS/2010/123.

rispetto ai materiali circostanti a bassa e bassissima permeabilità. Casi simili sono più che frequenti in molti contesti geologici e dovranno essere accuratamente identificati e caratterizzati, per poter adottare le giuste soluzioni progettuali e prevedere la dinamica del trasporto di radionuclidi accidentalmente rilasciati al di fuori del deposito. Nell'ambito della caratterizzazione del sito è opportuno anche definire i processi di eventuale trasporto dei radionuclidi verso le matrici ambientali; si presuppone ad esempio che all'interno di materiali argillosi e limosi la propagazione degli elementi, a meno della presenza di vie preferenziali di flusso, avvenga prevalentemente per via diffusiva.

La caratterizzazione permette anche di definire quali siano i metodi di campionamento più opportuni nell'ambito del monitoraggio, per garantire risultati attendibili e difendibili anche in sede legale, rispondendo ai criteri imposti dai protocolli nazionali e internazionali, che potranno essere impiegati per i processi previsti nel piano di garanzia della qualità; quest'ultimo rappresenta un utile strumento per dimostrare al pubblico e agli organi di controllo la serietà e l'efficacia del monitoraggio. Per tale ragione le metodiche dovranno già essere testate in fase di caratterizzazione del sito, per poi essere impiegate abitualmente durante la fase di monitoraggio. Questo aspetto è particolarmente importante per il prelievo delle acque sotterranee, visto che tipicamente il deposito sarà ubicato in formazioni a bassa o bassissima permeabilità; in tal caso le modalità di estrazione dei fluidi dovranno essere opportunamente testati per evidenziare la loro efficacia, soprattutto in relazione alle eventuali modifiche che possono indurre alle specie chimiche oggetto di analisi o agli eventuali fenomeni di frazionamento isotopico<sup>27</sup>.


Come già accennato, la caratterizzazione è sicuramente propedeutica alla corretta progettazione dei sistemi di campionamento e monitoraggio, ma sicuramente anche la corretta comprensione dei fenomeni chimico fisici tra le varie fasi presenti nei mezzi porosi è un aspetto da tenere nella giusta considerazione. Basti pensare che l'applicazione dei normali sistemi di campionamento delle acque nei mezzi porosi è sicuramente adatta per sedimenti a granulometria media e grossolana, ma si dimostra talora inefficace in sedimenti a granulometria fine, specialmente se poveri in acqua e ricchi in minerali argillosi; questo aspetto diventa ancora più critico se riferito al campionamento di acqua da destinare ad analisi di isotopia stabile, per gli inevitabili frazionamenti isotopici cui il campione sarebbe sottoposto durante il prelievo. Un'analisi critica delle metodologie e delle possibili soluzioni applicabili in taluni contesti è stata già affrontata a livello internazionale, vista l'importanza del caso<sup>28</sup> ed esistono nella bibliografia scientifica numerosi riferimenti per poter selezionare i metodi di campionamento più opportuni per le specifiche analisi richieste e per il contesto ambientale oggetto di indagine.

Quindi la caratterizzazione ambientale è fondamentale per individuare i punti di monitoraggio e le metodiche di prelievo. Lo stato zero è la determinazione, in quei punti e con quelle metodologie, della radioattività presente prima dell'avvio delle attività connesse al deposito,

---

<sup>27</sup> Sacchi E., Michelot J. L., Pitsch H., Lalieux P. and Aranyossy J. F., 2001. Extraction of water and solutes from argillaceous rocks for geochemical characterisation: methods, processes, and current understanding. *Hydrogeology Journal* 9 (2001), pp. 17–33

<sup>28</sup> NEA, 2000. Pore-water extraction from argillaceous rocks for geochemical characterisation: methods and interpretations. A review report prepared by Sacchi E, Michelot JL, Pitsch H. OECD/NEA.

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP4 - 019	0	L	18	38

quindi la radioattività naturale e quella antropogenica connessa ad eventuali attività nucleari pregresse e al fall-out delle esplosioni nucleari e dei principali incidenti nucleari.

Particolarmente importante è la caratterizzazione degli acquiferi e la determinazione della loro vulnerabilità. Per questo è importante l'individuazione dei percorsi attraverso i quali avviene la ricarica e sui quali si potrebbero incanalare i nuclidi di un'eventuale fuoriuscita. Le modalità per questa caratterizzazione sono state ben individuate dalla IAEA<sup>29</sup>. È importante altresì la determinazione del tempo di ricarica degli acquiferi e del tempo medio di residenza nell'acquifero, parametri che vengono individuati con metodi isotopici utilizzando principalmente il radiocarbonio ed il trizio normalmente presenti nelle acque sotterranee<sup>30</sup>; questa analisi quindi fornisce direttamente delle informazioni su come organizzare la futura rete di monitoraggio.

In parallelo alla caratterizzazione radiologica iniziale del sito deve svolgersi quella epidemiologica, in particolare sull'incidenza delle patologie tumorali presenti normalmente nella zona.

L'accuratezza della rilevazione dello stato zero epidemiologico è fondamentale dato che può pregiudicare in maniera rilevante la possibilità di rilevare variazioni nell'incidenza delle patologie nell'arco di tempi molto lunghi, ma le valutazioni su come ciò deve avvenire esulano dal presente studio.

## 8 Monitoraggio dei contaminanti rilasciati all'atmosfera

La degradazione delle sostanze organiche presenti nei rifiuti radioattivi può produrre anidride carbonica e metano che possono contenere radiocarbonio e possono rappresentare un rischio radiologico. Il <sup>14</sup>C ha un alto tasso di produzione nei reattori nucleari<sup>31</sup>, ha una lunga emivita (5730 anni) ed elevata mobilità nell'ambiente. Il <sup>14</sup>C prodotto nei reattori si trova nel combustibile nucleare esaurito, nei materiali strutturali o nei moderatore di grafite, nonché nel refrigerante dei reattori stessi.

Un'importante quantità di <sup>14</sup>C prodotta nelle centrali nucleari viene catturata dalle resine a scambio ionico che vengono normalmente conferite in depositi superficiali per la bassa radioattività e costituiscono la fonte principale di generazione di emissioni gassose radioattive<sup>32</sup>; in alcuni casi l'inventario di questo nuclide è il fattore limitante per il soddisfacimento dei requisiti normativi.

<sup>29</sup> IAEA-TECDOC-1199, "Characterization of groundwater flow for near surface disposal facilities" IAEA, VIENNA, 2001 ISSN 1011-4289

<sup>30</sup> Roberto Gonfiantini, Klaus Fröhlich, Luis Araguás-Araguás and Kazimierz Rozanski, 2003. Isotope tracers in catchment hydrology a cura di Carol Kendall, Jeffrey J. McDonnell, Elsevier third impression 2003, reprinted 2006, Chapter 7, "Isotopes in Groundwater Hydrology"

<sup>31</sup> Yim, M.-S., Caron, F. 2006. Life cycle and management of carbon-14 from nuclear power generation. *Progress in Nuclear Energy* 48: 2-36.

<sup>32</sup> Bracke, G., Müller, W. 2008. Contribution to a more realistic approach in assessing the release of C-14 from low-level radioactive waste repositories. *Journal of Contaminant Hydrology* 102 (3-4): 210-216.

Per quello che riguarda i rifiuti di alta attività i meccanismi sono differenziati, ma in ogni caso i prodotti sono comunque la CO<sub>2</sub> ed il metano ed anche nel caso dei depositi di alta attività il radiocarbonio è l'unico nuclide i cui rilasci gassosi possono avere importanza anche dal punto di vista radioprotezionistico<sup>33</sup> in condizioni di esercizio normale.

È quindi importante il monitoraggio del radiocarbonio gassoso nei depositi di rifiuti.

La tecnica di raccolta può essere quella classica usata per il monitoraggio degli impianti nucleari che consiste nel far precipitare la CO<sub>2</sub> sotto forma di carbonato mediante gorgogliamento in soluzione basica, mentre per il metano è necessaria una fase di ossidazione ad alta temperatura con catalizzatori al palladio prima della precipitazione come carbonato<sup>34</sup>. I campioni così raccolti sotto forma di carbonato vengono portati in laboratorio per essere trasformati di nuovo in CO<sub>2</sub> mediante attacco acido e quindi procedere alla determinazione dell'attività.

Le tecniche di conteggio sono varie ed esistono in letteratura esempi di utilizzo di tutte le tecniche di determinazione di radiocarbonio, ovvero la tecnica *gas proportional*, quella in scintillazione liquida con le due varianti di conversione in benzene e di assorbimento diretto, fino all'utilizzo della spettrometria di massa con acceleratore. Questa varietà di approcci è semplicemente dovuta al fatto che il monitoraggio di questo tipo negli impianti nucleari, finora, è stato effettuato perlopiù nel corso di campagne estemporanee, quindi le misure sono state affidate ai laboratori radiocarbonio esistenti che hanno utilizzato le stesse tecniche usate per la radio datazione. Nel momento in cui si intende invece procedere a monitoraggi continui nell'arco di anni, decenni o più, le tecniche di misura più adatte appaiono quelle più semplici, come la scintillazione liquida con assorbimento diretto<sup>35,36</sup>, oppure addirittura la vecchia tecnica *gas proportional*<sup>37,38</sup>.

Per quello che riguarda il trizio occorre tenere conto che questo nuclide è presente nei depositi prevalentemente sotto forma di acqua triziata assorbita in diverse matrici, quindi occorre monitorare eventuali fuoriuscite gassose di vapore di acqua. Tuttavia, vista la possibile presenza di rifiuti di origine biologico-ospedaliera e vista la complessità dei processi di corrosione e degradazione, conviene, per il monitoraggio, prevedere la possibilità di campionamento delle diverse forme gassose possibili per questo nuclide, cioè HTO, HT e

<sup>33</sup> UE, Contract No. FIKW-CT-2001-20165, A Thematic Network on Gas Issues in Safety Assessment of Deep Repositories for Radioactive Waste (GASNET), final report, 2003

<sup>34</sup> E. HERTELENDI et al, "14C RELEASE IN VARIOUS CHEMICAL FORMS WITH GASEOUS EFFLUENTS FROM THE PAKS NUCLEAR POWER PLANT" RADIOCARBON, VOL 31, No. 3, 1989, P 754-761]

<sup>35</sup> P. Rajec et al "Monitoring of the 14C concentration in the stack air of the nuclear power plant VVER Jaslovske Bohunice" J Radioanal Nucl Chem 2011

<sup>36</sup> J. Tecl et al., Determination of gaseous radionuclide forms in the stack air of nuclear power plants Applied Radiation and Isotopes 67(2009)950–952

<sup>37</sup> P.P. Povinec et al. Impact of the Bohunice Nuclear Power Plant on atmospheric radiocarbon Applied Radiation and Isotopes 66 (2008) 1686– 1690

<sup>38</sup> P.P. Povinec et al. Forty years of atmospheric radiocarbon monitoring around Bohunice nuclear power plant, Slovakia Journal of Environmental Radioactivity 100 (2009) 125–130

$C_nTHm^{39}$ . Il campionamento dei vapori d'acqua può avvenire mediante sistemi di assorbimento tipo silica gel e successiva estrazione dell'acqua assorbita e conteggio mediante scintillazione liquida (LSC). La discriminazione dalle acque di origine meteorica è un problema non banale, per il quale non sono sufficienti i necessari accorgimenti meccanici di protezione del sistema di campionamento dalle piogge. È infatti opportuno procedere parallelamente al campionamento della deposizione meteorica e all'analisi del suo contenuto di trizio. Su entrambe le tipologie di campioni vanno valutati i rapporti isotopici degli isotopi stabili dell'ossigeno e dell'idrogeno per cercare di identificare l'origine del campione di vapore assorbito. Sostanzialmente occorre evitare di interpretare come fuoriuscite di trizio quelle che sono invece normali fluttuazioni del trizio cosmogenico presente nelle piogge.

Dal punto di vista del monitoraggio il requisito principale è la mobilità del nuclide in questione e radiocarbonio e trizio possiedono questo requisito. Oltre a questi si è già accennato all'importanza del  $^{36}Cl$  e dello  $^{129}I$ , ma c'è una categoria di nuclidi che sono mobili per definizione, cioè i gas nobili che rappresentano la tipologia di elementi più mobili presenti in natura e più in grado di permeare attraverso anche minime fratture.

## 9 Potenzialità dei gas nobili radioattivi per il monitoraggio

Il primo gas nobile radioattivo da eventualmente prendere in considerazione è il radon. In un deposito nel quale esiste un'importante presenza di Radio proveniente da rifiuti ospedalieri, da residui di attività estrattive o industriali, viene prodotto continuamente radon che è un suo prodotto di decadimento e questo, ovviamente, può fuoriuscire. Il monitoraggio del radon può essere, in determinate condizioni, un valido strumento per la verifica della tenuta delle barriere<sup>40</sup>; il problema è che spesso il radon presente naturalmente nel sito del deposito può essere dello stesso ordine di grandezza, se non superiore, a quello proveniente dai rifiuti radioattivi, rendendone così impossibile l'utilizzo per il monitoraggio.

Pertanto si è ritenuto opportuno ed interessante studiare l'eventuale utilità e fattibilità del monitoraggio di un altro gas nobile, il radioxeno, che è principalmente generato come prodotto di fissione nei reattori nucleari ma anche attraverso la fissione spontanea di alcuni isotopi transuranici come ad esempio il plutonio-240 che è presente nell'inventario nazionale italiano<sup>41</sup> con attività pari a circa 200 GBq (Tabella I-1 di Appendice I).

<sup>39</sup> G. Vodila et al., "Mapping of tritium emissions using absorption vapour samplers", Journal of Environmental Radioactivity 100 (2009) 120–124

<sup>40</sup> L. Marie, R. Améon, T. Doursout (IRSN): "In-situ validation of the IRSN radon dispersion code CITRON in the case of a uranium mining and milling waste repository", EUROSAFE Forum 2010, November 8th and 9th, 2010, Gürzenich Hall in Cologne, Germany

<sup>41</sup> M Capone, N. Cherubini, A. Dodaro, L. Falconi: "Revisione critica dell'inventario nazionale dei rifiuti radioattivi ai fini dello smaltimento 2010", documento NNFISS-LP4-014 emesso per la seconda annualità dell'AdP ENEA-MSE

L'indagine qui illustrata prende spunto da alcuni studi effettuati dal PNNL (*Pacific Northwest National Laboratory*)<sup>42,43</sup> sull'analisi degli isotopi dello xeno nel suolo al fine di rilevare isotopi transuranici (TRU) nel sottosuolo del RWMC (*Radioactive Waste Management Complex*) del laboratorio INEEL (*Idaho National Environmental and Engineering Laboratory*).

Il monitoraggio dello xeno per rivelare rifiuti transuranici riveste grande interesse perché si tratta di un gas inerte con elevata mobilità nel sottosuolo.

L'atmosfera terrestre contiene una quantità di xeno stabile pari a circa 0.009%.

Gli isotopi Xe-131, Xe-132, Xe-134 e Xe-136 sono isotopi stabili presenti in natura ma che sono anche prodotti dalle reazioni di fissione. Pertanto, produzioni di origine antropica possono influenzare la composizione isotopica dello xeno stabile dei gas provenienti dal terreno nei pressi dei rifiuti se lo scambio con l'atmosfera è sufficientemente limitato. Gli isotopi stabili possono provenire dalla fissione spontanea o rimanere come residuo dalla fissione nel reattore nucleare. I rapporti degli isotopi stabili possono essere usati per distinguere tra sorgenti di combustibile irraggiato e sorgenti di pure fissioni spontanee.

Gli isotopi radioattivi dello xeno rappresentano un indicatore significativo della produzione nucleare a causa del fondo naturale inferiore rispetto a quello degli isotopi stabili. Le sorgenti antropiche del fondo di radioxeno includono emissioni da centrali nucleari, impianti per la produzione di radioisotopi ad uso medico ed industriale e test nucleari. Gli isotopi Xe-133 ( $T_{1/2}$  pari a circa 5 giorni) e Xe-135 ( $T_{1/2}$  pari a circa 9 ore) sono quelli di maggiore interesse per il monitoraggio ambientale dei rifiuti transuranici, in quanto, a causa della loro breve emivita, sono indicativi di fissione spontanea attiva *in situ*.

La produzione di xeno dipende dalla natura del materiale dei rifiuti. Di particolare interesse è la progenie di isotopi dello xeno provenienti dal Pu-240 a causa del suo relativamente alto rateo di fissione spontanea. Altri isotopi TRU come Am-241 hanno bassi ratei di fissione spontanea e non contribuiscono significativamente al segnale di xeno.

Pertanto la fissione spontanea fornisce una costante fonte di xeno nei rifiuti TRU ed è un contributo importante nella maggior parte dei rifiuti che contengono plutonio.

La massa atomica degli isotopi stabili dello xeno varia da 124 a 136.

Gli isotopi radioattivi con emivita maggiore di 1h sono: Xe-122, Xe -123, Xe -125, Xe -127, Xe-133, Xe-135 ed anche i radioisotopi metastabili Xe-131m e Xe-133m di particolare interesse per il monitoraggio dei test nucleari.

Lo Xeno ha un alto rendimento di produzione come prodotto di fissione nei reattori nucleari.

<sup>42</sup> P. E. Dresel e S.R. Waichler: "Evaluation of Xenon Gas Detection as a Means for Identifying Buried Transuranic Waste at the Radioactive Waste Management Complex, Idaho National Environmental and Engineering Laboratory", 2004, PNNL-14617 (prepared for the U.S. Department of Energy under contract DE-AC06-76RRL01830)

<sup>43</sup> P. E. Dresel, K. B. Olsen, J. C. Hayes, J. I. McIntyre, S. R. Waichler, B. M. Kennedy: "Environmental applications of stable xenon and radioxenon monitoring", *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 276, No.3 (2008) 763-769

La Tabella 1 mostra i dati relativi a abbondanza naturale degli isotopi stabili, emivita di quelli radioattivi e gli *yield* di fissione termica da U-235 e Pu-239<sup>44,45</sup> per gli isotopi di interesse ai fini di questa discussione. Sono stati aggiunti anche i dati relativi agli isotopi metastabili Xe-131m e Xe-133m di interesse per il monitoraggio dei test nucleari ma trascurabili ai fini di questa discussione.

Il rateo di produzione dello xeno è una funzione del rateo di fissione spontanea e della resa di fissione degli isotopi. Dal tempo di dimezzamento del plutonio-240 per fissione spontanea ( $1.14E+11$  anni<sup>46</sup>) la costante di decadimento è pari a  $1.93E-19$  s<sup>-1</sup> che, moltiplicata per la resa di fissione dello Xe-133 (7.02%) e dello Xe-135 (7.6%), fornisce la costante di decadimento per la produzione di Xe-133 e Xe-135 da fissione spontanea ( $1.35E-20$  s<sup>-1</sup> e  $1.46E-20$  s<sup>-1</sup> rispettivamente) che esprime il rateo di produzione di atomi di Xe per atomo di Pu-240 al secondo. La resa di fissione per lo Xe-135 è leggermente più elevata di quella per lo Xe-133, pertanto il rateo di produzione di Xe-135 in termini di atomi per grammo di Pu-240 al secondo ( $3.67E+1$ ), è leggermente superiore di quello dello Xe-133 ( $3.39E+1$ ).

**Tabella 1** - Dati relativi ad abbondanza naturale degli isotopi stabili, emivita di quelli radioattivi e gli *yield* di fissione termica da U-235 e Pu-239 per alcuni isotopi dello xeno di interesse.

Isotopo	Natural Abundance (atom %)	Half Life	U-235 Fission Yield (%)	Pu-239 Fission Yield (%)
Xe-131	22.2		2.89	3.86
<i>Xe-131m</i>		<i>11.9 d</i>	<i>0.05</i>	<i>0.05</i>
Xe-132	26.9		4.31	5.41
Xe-133		5.24 d	6.70	7.02
<i>Xe-133m</i>		<i>2.2 d</i>	<i>0.19</i>	<i>0.24</i>
Xe-134	10.4		7.87	7.68
Xe-135		9.1 h	6.54	7.6
Xe-136	8.9		6.32	7.1

### **Principali campi di applicazione del monitoraggio di radioxeno**


Le analisi di xeno e altri gas nobili possono fornire preziose informazioni sull'eventuale danneggiamento a elementi di combustibile durante le operazioni presso i reattori nucleari e nelle attività di riprocessamento del combustibile esaurito. Alcuni studi mostrano l'applicabilità

<sup>44</sup> Paul R.J. Saey, Ultra-Low-Level Measurements of Argon, Krypton and Radioxenon for Treaty Verification Purposes, ESARDA BULLETIN, No. 36 July 2007 (European SAFeguards Research and Development Association)

<sup>45</sup> Parrington JR, HD Knox, SL Breneman, EM Baum, and F Feiner. 1996. *Nuclides and Isotopes*,

Fifteenth edition. General Electric Co. and KAPL, Inc., San Jose, California

<sup>46</sup> Holden NE and DC Hoffman. 2000. "Spontaneous Fission Half-Lives for Ground-State Nuclides." IUPAC Pure Appl. Chem, Vol. 72, no. 8, pp. 1525-1562.

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP4 - 019	0	L	23	38

del monitoraggio dei gas nobili al ciclo del combustibile nucleare<sup>47</sup> e la possibilità di misurare gli isotopi del krypton e dello xeno nell'acqua di raffreddamento come indicatori di perdite dagli elementi di combustibile<sup>48</sup>.

L'analisi quantitativa della concentrazione di alcuni isotopi radioattivi dello Xeno (<sup>131m</sup>Xe, <sup>133</sup>Xe, <sup>133m</sup>Xe e <sup>135</sup>Xe) contenuti nell'atmosfera riveste un ruolo fondamentale nella verifica dei trattati sulla non proliferazione nucleare<sup>49</sup>: TNP (Trattato di Non Proliferazione), CTBT (*Comprehensive Test Ban Treaty*<sup>50</sup>) e FMCT (*Fissile Material Cut-off Treaty*). In particolare lo Xeno è considerato lo strumento principale per fornire la prova (*smoking gun*) dell'avvenuta effettuazione di test nucleari clandestini. L'esperienza pregressa in questo campo ha evidenziato non solo la necessità di una buona rete di rivelazione, ma anche di una maggiore comprensione delle dinamiche di produzione e trasporto di questi nuclidi.

Dal 1963 i test nucleari in tutto il mondo sono stati sotterranei per limitare il rilascio dei prodotti di fissione.

Nel 1996 le Nazioni Unite hanno adottato il CTBT che entrerà in vigore quando tutti i 44 Stati previsti dall'Annex 2 l'avranno firmato e ratificato. L'articolo IV del trattato descrive il regime di verifica che comprende una rete globale di stazioni di monitoraggio (IMS, *International Monitoring System*) per radionuclidi (particolato e gas nobili) e forme d'onda (tecnologie sismica, idroacustica e infrasonica). Il lavoro di verifica del CTBT è particolarmente rilevante perché la maggior parte delle strumentazioni e tecnologie utilizzate in genere per le analisi di radioxeno sono state sviluppate per questo scopo. In particolare, gli obiettivi e le tecniche di indagine sugli isotopi dello xeno per la verifica del CTBT sono simili a quelli finalizzati alle analisi sul deposito di rifiuti radioattivi. Gli isotopi dello xeno vengono prodotti in grande quantità durante le esplosioni nucleari e sono difficili da contenere; quindi l'individuazione di radioisotopi dello xeno da fissione può essere usata per verificare se una esplosione nucleare si è o meno verificata. Gli isotopi di interesse per la verifica del CTBT sono Xe-133, Xe-135 e i metastabili Xe-131m e Xe-133m<sup>51,52,53</sup>. Un ulteriore fattore discriminante per la valutazione della sorgente di Xe (attività civili o esplosioni) è costituito dai rapporti isotopici <sup>135</sup>Xe/<sup>133</sup>Xe e <sup>133m</sup>Xe/<sup>133</sup>Xe.

<sup>47</sup> Hudson GB. 1993. Noble Gas Isotope Measurements for Spent Nuclear Fuel Reprocessing. UCRL-ID-118658, Lawrence Livermore National Laboratory. Livermore, California.

<sup>48</sup> Palcsu L, M Molnár, É Svingor, Zs Szántó, I Futó, T Pintér. 2001. "Dissolved Stable Noble Gas Measurements from Primary Water of Paks NPP [abstr]" from the Conference Nuclear Energy in Central Europe 2001, Institute of Nuclear Research of the Hungarian Academy of Sciences, Hungary


<sup>49</sup> P.R.J. Saey, L.-E. De Geer, *Notes on radioxenon measurements for CTBT verification purposes*, Applied Radiation and Isotopes, 63, 765-773 (2005)

<sup>50</sup> [www.ctbto.org](http://www.ctbto.org)

<sup>51</sup> Paul R.J. Saey, Ultra-Low-Level Measurements of Argon, Krypton and Radioxenon for Treaty Verification Purposes, ESARDA BULLETIN, No. 36 July 2007 (European SAFeguards Research and Development Association)

<sup>52</sup> Bernd Wernspergera, Clemens Schlosser, Noble gas monitoring within the international monitoring system of the comprehensive nuclear test-ban treaty Radiation Physics and Chemistry 71 (2004) 775–779

<sup>53</sup> NOBLE GAS MONITORING HANDBOOK, Version 1.0, 01 Sep. 03, pubblicazione CTBTO

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP4 - 019	0	L	24	38

A partire da metà degli anni '90 quattro sistemi di misura per gas nobili sono stati sviluppati specificamente progettati per soddisfare le richieste previste dal trattato. Oltre a sistemi automatici e fissi, sono state sviluppate anche attrezzature mobili per campionamenti e misure dedicati alle ispezioni on-site.

Il principio di campionamento di tutti i sistemi consiste nell'estrazione dello xeno dall'aria atmosferica attraverso separazione dei gas, purificazione e concentrazione su assorbitori e mezzi di separazione dei gas. Il meccanismo comunemente usato per estrarre lo xeno dall'aria è l'assorbimento su carboni attivi: lo xeno è assorbito sui carboni con maggior efficacia rispetto agli altri gas componenti dell'aria. Dopo il campionamento, per estrarre lo xeno i carboni sono riscaldati a temperature di circa 250–300 °C. La fase successiva prevede un ulteriore trattamento per rimuovere le impurità (principalmente Rn, H<sub>2</sub>O e CO<sub>2</sub>) e per aumentare la concentrazione di xeno nel campione. Le misure di attività sono effettuate o attraverso spettrometria gamma ad alta risoluzione o attraverso metodi di coincidenza beta-gamma. Nel caso della spettrometria gamma gli isotopi sono identificati dalle principali emissioni gamma (Tabella 2).


In Tabella 3 sono riassunte i 4 principali sistemi di misura appositamente sviluppati per questa applicazione.

**Tabella 2 – Energie caratteristiche per il decadimento di  $^{131m}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{133m}\text{Xe}$  e  $^{135}\text{Xe}$ <sup>54,55</sup>**

	<i>Decay energy (keV)</i>	<i>Branching ratio (%)</i>
<b><math>^{131m}\text{Xe}</math></b>		
X-rays	29.46	15.4
	29.78	28.6
	33.60	10.2
	34.61	1.85
Gamma rays	163.93	1.95
Conversion electrons	129.4	61
Coincident decays	Sum of 29.46 to 34.61 keV X-rays and 129 keV e <sup>-</sup>	56.1
<b><math>^{133}\text{Xe}</math></b>		
X-rays	30.62	14.1
	30.97	26.2
	35.00	9.4
	36.01	1.7
Gamma rays	80.99	37.0
Conversion electrons	45	55.1
Betas (maximum energy)	346	100
Coincident decays	31.63 keV X-ray + 45 keV e <sup>-</sup> + 346 keV beta	48.9
	80.98 keV gamma + 346 beta	37.2
<b><math>^{133m}\text{Xe}</math></b>		
X-rays	29.46	16.1
	29.78	29.8
	33.60	10.6
	34.61	1.9
Gamma rays	233.2	10.0
Conversion electrons	198.7	64
Coincident decays	Sum of 29.46–34.61 keV X-rays and 199 keV e <sup>-</sup>	58.4
<b><math>^{135}\text{Xe}</math></b>		
X-rays	30.62	1.45
	30.97	2.69
	35.00	0.97
	36.01	0.185
Gamma rays	249.8	90
	608.2	2.90
Conversion Electrons	214	5.7
Betas (maximum energy)	910	100
Coincident Decays	31.63 keV X-ray + 214 keV e <sup>-</sup> + 910 keV beta	5.7
	249.8 gamma + 910 keV beta	90

<sup>54</sup> Matthias Auer, Timo Kumberg, Hartmut Sartorius, Bernd Wernsperger, and Clemens Schlosser, Ten Years of Development of Equipment for Measurement of Atmospheric Radioactive Xenon for the Verification of the CTBT, Pure Appl. Geophys. 167 (2010), 471–486

<sup>55</sup> ENSDF, Evaluated Nuclear Structure Data File, <http://www.nndc.bnl.gov/ensdf/>.

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP4 - 019	0	L	26	38

**Tabella 3 – Sistemi per misure di radioxeno sviluppati per l’International Monitoring System del CTBTO<sup>56</sup>**

<i>Sistema</i>	<i>Sviluppatore</i>
Automatic Radioanalyzer for Isotopic Xenon (ARIX)	Khlopin Radium Institute (KRI), Russian Federation
Automated Radioxenon Sampler-Analyzer (ARSA)	Pacific National Northwest Laboratories (PNNL), USA
Swedish Automatic Unit for Noble Gas Acquisition (SAUNA)	Totalforsvarets Forskningsinstitut (FOI), Sweden
Système de Prélèvement Automatique en Ligne avec l’Analyse du Xénon (SPALAX)	Departement Analyse, Surveillance, Environnement du Commissariat à l’énergie atomique (CEA/DASE), France

### **Lo studio del PNNL**

Lo studio del PNNL sull’analisi degli isotopi dello xeno nel sottosuolo del RWMC (*Radioactive Waste Management Complex*) del laboratorio INEEL (*Idaho National Environmental and Engineering Laboratory*) era focalizzato su due metodi complementari per misure di xeno: analisi radiometriche di isotopi di radioxeno e spettrometria di massa per l’individuazione di isotopi stabili dello xeno. L’analisi del radioxeno ha maggiore sensibilità a causa di concentrazioni di fondo inferiori rispetto a quelle dello xeno stabile. La tecnica analizzata si basa sulla raccolta di campioni di gas dal suolo nelle vicinanze dei rifiuti e sull’analisi degli isotopi dello xeno presenti nel gas. Il metodo di campionamento è analogo ai metodi consolidati del campionamento di gas dal suolo per composti organici volatili.


Alcune misure sono state effettuate presso il sito di Hanford (*U.S. Department of Energy*, Stato di Washington). I risultati del campionamento (sistema ARSA di cui alla Tabella 3) mostrano il rilevamento di radioxeno e isotopi stabili di xeno nei gas del sottosuolo in siti di rifiuti radioattivi.

In particolare, sono stati misurati livelli di Xe-133 e Xe-135 indicativi di fissione spontanea del Pu-240.

Inoltre, studi di simulazione numerica effettuati attraverso il modello STOMP (*Subsurface Transport Over Multiple Phases*)<sup>57</sup> indicano che gli isotopi di radioxeno diffondono dai rifiuti e possono essere rilevati a livelli pari a molti ordini di grandezza oltre al limite di rilevabilità strumentale. La componente sconosciuta nella valutazione è il rateo di rilascio di xeno dai rifiuti che dipende dal tipo di rifiuto e dall’integrità del contenitore. Gli isotopi di radioxeno risentiranno maggiormente dei bassi ratei di rilascio a causa dei loro brevi tempi di

<sup>56</sup> Matthias Auer, Timo Kumberg, Hartmut Sartorius, Bernd Wernsperger, and Clemens Schlosser, Ten Years of Development of Equipment for Measurement of Atmospheric Radioactive Xenon for the Verification of the CTBT, *Pure Appl. Geophys.* 167 (2010), 471–486

<sup>57</sup> White MD and M Oostrom. 2004. *STOMP, Subsurface Transport Over Multiple Phases v. 3.1 User’s Guide*. PNNL-14478, Pacific Northwest National Laboratory, Richland, Washington

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP4 - 019	0	L	27	38

dimezzamento. I risultati del modello mostrano che la diffusione attraverso i sedimenti è probabile che sia sufficientemente rapida rispetto ai tassi di decadimento.

### **Attività sperimentali svolte in ENEA**

Alcune attività sperimentali sono state svolte in ENEA al fine di effettuare alcune misure locali di radioxeno. I risultati preliminari ottenuti sono descritti in Appendice II in cui si riporta (in inglese) il lavoro presentato in occasione del Workshop *WOSMIP 2011 (Workshop on Signatures of Medical and Industrial Isotope Production)*, organizzato dal PNNL (*Pacific Northwest National Laboratory*) presso il Castello di Strassoldo di Sopra (Udine, Italy), June 13-17, 2011.

I risultati, seppur preliminari, sono stati incoraggianti e ci hanno spronato verso ulteriori miglioramenti. In particolare, si sta acquisendo un nuovo rivelatore al germanio HPGe di tipo P (modello “*extended range*”) della Canberra (ditta leader a livello mondiale con oltre 40 anni di esperienza nel campo delle misure nucleari), con efficienza 60% al fine di migliorare la qualità degli spettri gamma acquisiti.

L'utilizzo di questo rivelatore è finalizzato a misure di spettrometria gamma ad alta risoluzione e a basso fondo per i nuclidi tipici che servono per il monitoraggio dei depositi di rifiuti radioattivi. L'elenco dei nuclidi da misurare è piuttosto vasto, ma il problema tecnico più rilevante è la rilevazione di quelli che hanno un'energia di decadimento radioattivo bassa, tipicamente i gas nobili radioattivi ed in particolare gli isotopi dello Xeno.

Lo stato dell'arte prevede l'utilizzo di rivelatori al germanio di tipo N con finestre costituite da materiali leggeri (berillio o fibra di carbonio) per ridurre l'attenuazione dei fotoni; la tecnologia N, però, ha un'efficienza di rilevazione che si riduce fortemente all'aumentare dell'energia, cosa che costringerebbe ad utilizzare due tipologie di rivelatori, uno per le basse energie e uno per le alte.

Recentemente la Canberra è l'unica ditta che è riuscita ad abbassare l'energia minima di rilevazione dei germani di tipo P, quelli che venivano usati per le energie relativamente alte. Il risultato è un rivelatore con una buona efficienza in tutto lo spettro di energia dei nuclidi di nostro interesse.

Il rivelatore della Canberra ha un'ulteriore caratteristica che lo rende unico, cioè il fatto che è possibile sostituire al raffreddamento tradizionale con azoto liquido un sistema di raffreddamento misto nel quale viene generato continuamente azoto liquido con un criogeneratore che quindi può compensare le perdite di evaporazione del refrigerante. Il vantaggio di questo sistema è non solo il fatto che non è più necessario rabboccare l'azoto con frequenza settimanale o quindicinale, ma anche che tutto l'insieme è più stabile e diventa molto più semplice il controllo di qualità.

Esiste un sistema alternativo al Canberra ed è quello proposto da ORTEC (altra ditta di fama internazionale nel campo delle misure nucleari), che consiste nel montare direttamente il cristallo di germanio su un criogeneratore che lo raffredda direttamente senza dover generare liquidi criogenici. Questo sistema non viene preso in considerazione perché ha due difetti: il primo è che il compressore del criogeneratore trasmette vibrazioni al cristallo introducendo problemi di microfonicità, *loop* di massa e una degradazione della risoluzione energetica; il

secondo è che il controllo della temperatura non è così stabile come invece quello di un liquido criogenico. Per le misure a basso fondo che dobbiamo effettuare è assolutamente necessario avere un sistema che sia molto stabile nel tempo, con buona risoluzione e con buona efficienza su un ampio intervallo di energia, quindi sicuramente il sistema Canberra è l'unico in grado di fornirci le prestazioni necessarie.

## 10 Monitoraggio della migrazione dei contaminanti nelle acque sotterranee

Le acque sotterranee rappresentano la prima via di migrazione dei radionuclidi fuoriusciti da un deposito di rifiuti radioattivi. I sistemi attraverso cui i diversi elementi possono raggiungere le acque sotterranee sono relativi alla diffusione delle fasi liquide e gassose attraverso le barriere ingegneristiche o alla lisciviazione provocata da eventuali infiltrazioni di acqua nei locali del deposito, che asportano i radionuclidi veicolandoli poi verso l'ambiente esterno. La caratterizzazione del sistema idrogeologico è fondamentale per ricostruire il modello idrogeologico dell'area e definire con chiarezza gli aspetti quali-quantitativi della dinamica idrica nel sottosuolo, principale elemento che influenza la migrazione dei radionuclidi eventualmente immessi nell'ambiente. L'importanza di questo approccio è anche necessaria visto che il sistema idrogeologico è un'entità in evoluzione; il deflusso della falda può infatti subire variazioni nel tempo e di questo si dovrà tenere conto nell'attività di monitoraggio. La conoscenza del sistema idrogeologico è la base del corretto monitoraggio delle acque sotterranee, che deve essere gestito in funzione degli acquiferi identificati nella fase di caratterizzazione; per tale ragione in questa sede non si riportano nel dettaglio le ipotesi sulla frequenza di campionamento, sull'ubicazione potenziale dei punti di monitoraggio, ecc., perché questi aspetti sono funzione del contesto geologico-territoriale dell'area.

In generale comunque si può sostenere che il monitoraggio dovrà essere di tipo:

- qualitativo, sulla dinamica delle acque sotterranee e sulla tipologia degli eventuali radionuclidi presenti;
- quantitativo, sull'entità dei radionuclidi che sono fuoriusciti dal deposito, nonché sull'entità delle eventuali variazioni nella dinamica idrica sotterranea che può indurre variazioni nel trasporto dei contaminanti.

Il contesto geologico di un'area prevede sempre l'esistenza, a scala locale o regionale, di diversi acquiferi, separati o talvolta intercomunicanti, che possono essere interessati dal rilascio di radionuclidi dal deposito. La rete di monitoraggio idrogeologica, dovrà riguardare i singoli acquiferi ma anche eventuali compartimenti all'interno degli acquiferi stessi (ad esempio intercalazioni di materiali fini all'interno di sedimenti a granulometria più grossolana) in cui potrebbero depositarsi eventuali inquinanti. Allo stesso modo il monitoraggio dovrà essere effettuato a diverse profondità all'interno di ogni singolo acquifero per tenere conto della distribuzione degli inquinanti in funzione della loro densità. In tal caso sarà preferibile ricorrere a punti di prelievo separati, ognuno per la specifica profondità; una strategia simile vale anche per la separazione dei pozzi di prelievo dagli eventuali piezometri per il monitoraggio del livello di falda. Questi ultimi dovrebbero essere dotati di un sistema automatico di rilievo, gestione e trattamento dei dati, per la successiva trasmissione, memorizzazione ed elaborazione. L'ubicazione dei pozzi e piezometri dovrà essere valutata in funzione del campo di moto della

falda; di sicuro dovranno almeno essere intercettate le acque prima e dopo il passaggio in prossimità del sito. Il numero dei punti di campionamento e misura dovrà essere scelto in funzione di vari fattori, primi tra tutti le caratteristiche di omogeneità dei materiali geologici e di complessità di quelle idrogeologiche. La questione del monitoraggio si complica nella malaugurata ipotesi, che comunque dovrebbe già escludersi in fase di *siting*, di un contesto geologico carsico. In un contesto geologico rappresentato da formazioni rocciose con permeabilità secondaria, la conoscenza del contesto idrogeologico presuppone un dettagliato studio strutturale per identificare il complesso delle discontinuità presenti e quindi il sistema intercomunicante delle vie di migrazione di eventuali inquinanti.

I campioni di acqua dal sottosuolo dovranno essere prelevati e opportunamente conservati prima dell'analisi; questo soprattutto in riferimento ad eventuali fenomeni di evaporazione, che potrebbero inficiare la determinazione dei nuclidi in specie volatili. I quantitativi di acqua da prelevare dovranno tenere conto della tipologia di analisi e della capacità di estrazione dai materiali poco permeabili; nel caso in cui non si riesca a procedere alla raccolta di campioni rappresentativi nel lasso di tempo considerato, sarà opportuno prevedere sistemi ulteriori di campionamento, da valutare nel contesto generale del monitoraggio e delle sue finalità. Si tenga conto ad esempio che il prelievo di un campione d'acqua può non essere rappresentativo del reale sistema chimico-fisico del sottosuolo, soprattutto se consideriamo la capacità dei minerali argillosi di catturare particolari radionuclidi.

La determinazione del rapporto isotopico di particolari traccianti naturali, quali  $^{18}\text{O}$  e  $^2\text{H}$  (deuterio), è fondamentale per determinare la dinamica del contesto idrogeologico in cui verrà inserito il sito e quindi verrà svolta sicuramente nell'ambito della caratterizzazione. La prosecuzione di questa tipologia di analisi dovrà invece essere decisa sulla base di particolari esigenze o nel caso se ne individuasse la necessità. Lo stesso discorso è valido per il campionamento dei gas disciolti, che possono fornire utili indicazioni sul contesto geochimico delle acque sotterranee e sui potenziali redox, che potrebbe influenzare la stabilità e la durabilità dei materiali costituenti le barriere ingegneristiche.

Un ultimo aspetto da sottolineare nell'ambito del monitoraggio delle acque sotterranee riguarda l'eventuale rilevazione di radionuclidi che possono non derivare dal deposito, visto che le acque di falda sono i corpi idrici recettori di una buona parte degli effluenti di superficie. Varie attività industriali e agricole possono riversare radionuclidi nell'ambiente e in particolare in falda, sebbene in quantità ridotte; si pensi ad esempio all'ampio utilizzo di concimi chimici in tutte le pratiche agricole. Il monitoraggio dovrà quindi tenere conto anche di questi aspetti, distinguendo la provenienza degli eventuali radionuclidi indesiderati.

## 11 Monitoraggio della Zona Non Saturata e dei parametri meteorologici

Il monitoraggio dettagliato della Zona Non Saturata (ZNS) può garantire un'indicazione tempestiva e sicura circa l'eventuale deterioramento dell'integrità e della funzionalità delle barriere ingegneristiche. Anche in questo caso, come nel precedente, la caratterizzazione del suolo, o più in generale della ZNS, è fondamentale, ad esempio per individuare la presenza di corpi argillosi o a bassa permeabilità in grado di creare falde sospese temporanee. Tenendo poi conto che la migrazione dei contaminanti in un mezzo poroso non saturo dipende essenzialmente:

- dalla sua concentrazione,
- dal contenuto di acqua,
- dalla pressione delle fasi gassose nel mezzo poroso,
- dal flusso dell'acqua nel terreno,


è fondamentale caratterizzare questi parametri e la loro evoluzione nel tempo, sia durante la fase di caratterizzazione che di monitoraggio. Il campionamento delle acque interstiziali della ZNS potrà avvenire mediante coppe porose o lisimetri, della dimensione e caratteristiche più opportune per adattarsi alle specificità del suolo. In questo caso occorre tenere presente che il campionamento prevede una parziale depressurizzazione dell'ambiente di raccolta del liquido con conseguenti riflessi sull'evaporazione e sulla perdita delle specie isotopiche più leggere.

Da prevedere è anche il campionamento dei gas interstiziali nel suolo, che possono costituire uno dei primi elementi di allarme in caso di emissioni dal deposito. Il campionamento può avvenire mediante specifiche sonde in acciaio inserite a diversa profondità nel terreno, collegate a pompe di superficie per il prelievo del campione. In caso di ridotta permeabilità e della conseguente incapacità di prelevare campioni di gas interstiziali, si può ricorrere a sistemi passivi inseriti alla profondità voluta e raccolti dopo alcuni giorni; i materiali presenti al loro interno, tipicamente filtri a carbone attivo o con materiali per la cattura di specifiche fasi gassose, permettono l'assorbimento dei gas interstiziali che nel frattempo si sono diffusi al loro interno. I sistemi attualmente utilizzati nel campo della bonifica dei siti contaminati sono le sonde PETREX® e GORE-SORBER®.

Un notevole apporto in termini di conoscenza del sistema non saturo può provenire dal monitoraggio dei parametri meteorologici nel sito del deposito. Temperature, dinamica dei venti e precipitazioni determinano l'alternarsi di fenomeni di infiltrazione o evaporazione all'interno del suolo; quindi definiscono in modo indiretto la migrazione di eventuali radionuclidi al di fuori del deposito. La possibilità di individuare nella ZNS la presenza di radionuclidi provenienti dal deposito e di poterli intercettare prima che questi giungano nella falda, rappresenta sicuramente un notevole vantaggio per impedire la propagazione di eventuali contaminazioni radioattive nell'ambiente. Il monitoraggio potrebbe anche comporsi di una prima periodica fase di screening su campioni di sedimento in posizione strategica, misurando i valori alfa, beta e gamma totali; i risultati, se positivi, potrebbero indurre analisi di approfondimento, guidando i tecnici nella ricerca dei nuclidi che possono rappresentare la sorgente della contaminazione.

## 12 Monitoraggio delle acque superficiali

I corpi idrici superficiali possono rappresentare uno dei principali mezzi di trasporto dei radionuclidi, sia mediante trasporto diretto verso la popolazione, sia mediante trasporto indiretto verso altre matrici ambientali. Spesso le acque superficiali sono in stretto e diretto contatto con le falde freatiche, con le quali avvengono scambi di massa ed energia. Nella fase di caratterizzazione è quindi fondamentale individuare questi rapporti, sia dal punto di vista qualitativo che quantitativo. La programmazione del monitoraggio dovrà tenere conto del regime idrologico, per poter ottenere un quadro rappresentativo ed esaustivo dei diversi contesti stagionali. In caso di corsi d'acqua prossimi al mare, il campionamento dovrà anche

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP4 - 019	0	L	31	38

tenere conto della dinamica delle maree e quindi dei rapporti tra i due sistemi idrici. La possibilità di campionare le sorgenti prossime ai corpi d'acqua superficiali offrirebbe un notevole vantaggio, visto che i campioni rappresenterebbero un aspetto importante dell'interazione tra le acque superficiali e sotterranee. Risulta anche opportuno verificare l'eventuale presenza di radionuclidi nei sedimenti presenti nel corso d'acqua, sia di fondo che in sospensione, dato che la presenza di minerali argillosi può favorire la loro cattura e concentrazione.

### **13 Ulteriori considerazioni sul monitoraggio di altre matrici ambientali**

Occorre definire un apposito programma di prelievo e misurazione delle matrici ambientali ritenute maggiormente significative da due punti di vista.


Il primo riguarda la valutazione delle dosi al gruppo critico per quello che riguarda le emissioni "normali" e soprattutto nel caso si verificassero eventi di rilasci importanti nell'ambito di scenari quali intrusioni nel deposito o altri eventi di questa natura<sup>58</sup>. Quindi devono essere oggetto di monitoraggio le produzioni agro-alimentari entro un opportuno raggio per essere in grado di valutare le conseguenze sulla catena alimentare di queste tipologie di rilasci.

Il secondo punto di vista è quello di individuare matrici ambientali in base alla loro capacità di accumulo selettivo della radioattività, quali per esempio vegetali, prodotti alimentari locali, pesci, piante acquatiche, molluschi di acqua dolce, acqua, sedimenti<sup>59</sup>, ma anche e soprattutto bioindicatori e/o bioaccumulatori. Lo scopo in questo caso è invece quello di affiancare alla rete strumentale una rete di rilevazione nella quale i nuclidi possono essere individuati con maggiore sensibilità grazie ai meccanismi biologici naturali.

---

<sup>58</sup> "CRITICAL GROUPS AND BIOSPHERES IN THE CONTEXT OF RADIOACTIVE WASTE DISPOSAL" IAEA, VIENNA, 1999 IAEA-TECDOC-1077

<sup>59</sup> UNI 11279-3, 2008, "Deposito ingegneristico per manufatti di rifiuti radioattivi di Categoria 2 Parte 3: Criteri base di sorveglianza e monitoraggio Engineered repository for Category 2 radioactive waste packages Part 3: Surveillance and monitoring basic criteria"

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP4 - 019	0	L	32	38

## 14 Conclusioni e sviluppi futuri

Il monitoraggio dei depositi radioattivi è un'attività complessa che deve essere impostata a partire dalle fasi di *siting* e progettazione del deposito stesso. La scelta del tipo di parametri da tenere sotto controllo e della metodologia di prelievo e analisi è infatti intimamente legata al contesto ambientale nel quale è inserito il deposito, alla tipologia di barriere definita in fase di progetto e all'inventario dei rifiuti presenti.


Il programma di monitoraggio non deve assolutamente essere sottovalutato nell'economia complessiva della realizzazione di un deposito perché non solo è lo strumento principale per garantire il rispetto della normativa e delle performance di progetto, ma è anche estremamente importante per rendere accettabile la presenza del deposito da parte della popolazione.

In questo rapporto si è cercato di delineare una strategia di approccio metodologico al problema nelle diverse fasi. Per quello che riguarda i nuclidi da monitorare si è indicato il criterio della mobilità degli stessi come uno dei principali da cui partire assieme ovviamente all'inventario dei nuclidi presenti nel deposito stesso.

A partire da questo presupposto si sono approfondite alcune questioni a titolo esemplificativo, come quella dei gas nobili, che, pur non avendo una vasta letteratura nel settore della sorveglianza dei depositi, sono importanti come caso limite di estrema mobilità.

Così come si è fatto con il radiocarbonio durante questa annualità dell'accordo di programma, si intende nelle prossime annualità affrontare con report dedicati le problematiche connesse all'utilizzo di altri nuclidi, in particolare gli alogeni ( $^{36}\text{Cl}$  e  $^{129}\text{I}$ ) molto importanti, ma piuttosto trascurati, tant'è vero che dall'attuale inventario italiano dei radionuclidi manca la valutazione della presenza dello  $^{129}\text{I}$ .

Un ulteriore problema connesso all'inventario è che l'entità dei cosiddetti nuclidi di difficile determinazione è stimata mediante correlazioni con i nuclidi "maggiori". E' necessario, quindi, che il programma di caratterizzazione radiologica dei rifiuti radioattivi italiani venga completato al più presto e comunque prima di concludere la fase di *siting*.

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP4 - 019	0	L	33	38

## **Appendice I: Elenco dei nuclidi rilevanti per il monitoraggio**

Ai fini dell'individuazione dei radionuclidi rilevanti per il monitoraggio è stato effettuato un confronto tra l'inventario nazionale italiano dei rifiuti radioattivi e i radionuclidi considerati da altri paesi.

In particolare, per quanto riguarda l'inventario nazionale, si fa riferimento al documento NNFISS-LP4-014 emesso per la seconda annualità dell'AdP ENEA-MSE ("Revisione critica dell'inventario nazionale dei rifiuti radioattivi ai fini dello smaltimento 2010").

L'inventario nazionale per l'anno 2010 era stato effettuato sulla base dell'Inventario Nazionale dei Rifiuti Radioattivi di ISPRA aggiornato alla data del 31 Dicembre 2009, per la stima del volume dei rifiuti presenti sul territorio italiano e sulla base del documento SOGIN "Inventario dei Rifiuti Radioattivi" – G.d.L. 2, Task Force Deposito, per la stima del volume dei rifiuti da smantellamento e dei rifiuti derivanti dal riprocessamento del combustibile irraggiato.

In particolare, in Tabella I-1 si riportano i dati estratti dalle schede rifiuto presenti nel database ISPRA, aggiornate al 2009, così come presentati nella Tabella 6.2 del suddetto documento NNFISS-LP4-014, in cui si riporta che rimane escluso il combustibile irraggiato (che pure ha un inventario radiologico di gran lunga superiore a tutto il resto,  $4.17E+08$  GBq), in quanto le informazioni attualmente a disposizione non permettono l'attribuzione alle tipologie di emissione  $\alpha$  o  $\beta/\gamma$ . L'inventario radiologico significativo ai fini del deposito di smaltimento è comunque solo quello della II categoria, in quanto per i rifiuti di III categoria (compreso il combustibile irraggiato non sottoposto a ritrattamento) è previsto solo lo stoccaggio temporaneo in attesa di destinazione definitiva (deposito geologico da individuare).

I dati della Tabella I-1 sono stati confrontati con la lista di radionuclidi del centro francese *Centre de Stockage de l'Aube*<sup>60</sup>, la lista dei radionuclidi stimati nei rifiuti provenienti dallo smantellamento dell'impianto nucleare GRC di Tokai (Giappone)<sup>61</sup> e con l'inventario inglese<sup>62</sup>.

Nel centro francese de l'Aube i rifiuti radioattivi a basso e medio livello e di breve vita sono smaltiti in una struttura in superficie che ha una capacità di deposito fino a un milione di metri cubi e sarà operativo fino a circa il 2050. Nell'ambito di considerazioni relative ai radionuclide importanti in termini di sicurezza (*safety*) del Centro, le analisi di sicurezza svolte da ANDRA (*Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs*) hanno portato alla seguente lista di radionuclidi importanti la cui quantità accettata per lo smaltimento è limitata:

H-3, Co-60, Sr-90, Cs-137, Pu-239, Am-241, C-14, Ni-63, Nb-94, Pu-241, Np-237, U-238, Ni-59, I-129, Tc-99, Zr-93, Mo-93, Pd-107, Sm-151, Cs-135, Cl-36, Ca-41, Se79, Ag-108m, Pu-238, Pu-240, U-224, Na-22, Mn-54, Fe-55, Zn-65, Ru-106, Ag-110m, Sn-119m, Sb-125, Cs-134, Ce-144, Pm-147, Eu-152, Tl-204, Pb-210, Ac-227.

<sup>60</sup> L. Gagner, S. Voinis, M. De Franco, "Radioactive waste from nuclear power plants and back end nuclear fuel cycle operations: the French approach to safety", IAEA-SM-357/28

<sup>61</sup> A. Yamanaka, S. Suzuki, T. Yamamoto, K. Goto, and H. Takeuchi, "Approach to Estimate Radionuclide Composition of Contaminated Radioactive Wastes Coming from Decommissioning of Tokai Nuclear Power Plant (GCR)", P-5-306

<sup>62</sup> "The 2010 UK Radioactive Waste Inventory: Main Report", URN 10D/985, NDA/ST/STY(11)0004, February 2011

In Tabella I-2 è mostrata la lista dei principali radionuclidi stimati nei rifiuti provenienti dallo smantellamento dell'impianto nucleare di Tokai (reattore GCR, *Graphite moderated, carbon ioxide gas cooled*) sulla base di valutazioni effettuate attraverso l'uso del codice di ORIGEN-GCR.

**Tabella I-1 - Radionuclidi presenti nei rifiuti di II categoria**

Emettitori $\beta/\gamma$		Emettitori $\alpha$	
Isotopo	Attività (GBq)	Isotopo	Attività (GBq)
Ni63	3,6284E+05	Am241	7,5254E+02
Cs137	1,7240E+05	Pu240	2,1744E+02
Sr90	1,3043E+05	Pu239	1,5115E+02
Co60	3,7238E+04	Pu238	1,2421E+02
Pu241	4,2892E+03	U234	3,4154E+01
H3	3,3613E+03	Cm244	2,5942E+01
C14	4,9026E+02	U238	8,9488E+00
Sm151	4,5152E+02	Np237	6,5944E+00
Eu152	4,4010E+02	Ra226	3,1997E+00
Ni59	3,0504E+02	U235	1,4995E+00
Fe55	1,0094E+02	U236	1,0141E+00
Eu154	1,1832E+01	Pu242	2,5609E-01
Pm147	6,9839E+00	Th232	9,4851E-02
Tc99	5,3010E+00	Ra228	5,9000E-05
S35	1,8507E+00	<b>non identificato</b>	<b>2,7344E+01</b>
Zr93	7,7934E-01	<b>totale</b>	<b>1,3544E+03</b>
Nb93M	6,6704E-01		
Ca45	4,0114E-01		
Cd109	1,9223E-01		
Cl36	1,2940E-01		
Cr51	6,5237E-02		
I125	4,2488E-02		
Eu155	1,9827E-02		
Cs135	1,3137E-02		
Co58	1,0633E-02		
Mn54	9,9210E-03		
Ba133	5,5761E-03		
P32	1,1840E-03		
Kr85	1,0808E-03		
Cs134	8,6356E-04		
Ag110M	7,4000E-04		
Ag108M	3,4942E-04		
Ce144	2,8806E-04		
K40	8,5000E-05		
Na22	1,9000E-05		
<b>non identificato</b>	-		
<b>totale</b>	<b>7,0930E+05</b>		

**Tabella I-2 - Lista dei radionuclidi presenti nei rifiuti provenienti dallo smantellamento dell'impianto nucleare di Tokai (reattore GCR)**

Nuclide	Half life (y)	Fuel		Fuel assembly (Bq/g)	Carbon steel	Graphite
		Average in combustion (Bq/MTU)	After combustion (Bq/MTU)			Moderator (Bq/g)
H-3	1,20E+01	1,50E+12	2,60E+12	8,40E+04	1,30E+04	1,40E+05
C-14	5,70E+03	3,60E+05	6,30E+05	4,70E+02	1,90E+03	1,50E+05
Cl-36	3,00E+05	0,00E+00	0,00E+00	1,30E+02	3,10E+01	4,90E+02
Ca-41	1,00E+05	0,00E+00	0,00E+00	1,50E+03	1,70E+00	3,70E+02
Mn-54	8,50E-01	0,00E+00	0,00E+00	2,10E+04	5,10E+05	5,20E+03
Fe-55	2,70E+00	0,00E+00	0,00E+00	4,90E+06	6,80E+07	7,00E+05
Ni-59	7,50E+04	0,00E+00	0,00E+00	3,20E+03	8,00E+02	4,60E+02
Co-60	5,30E+00	0,00E+00	0,00E+00	2,90E+06	3,10E+06	2,70E+05
Ni-63	1,00E+02	0,00E+00	0,00E+00	6,10E+05	1,00E+06	7,60E+04
Zn-65	6,70E-01	0,00E+00	0,00E+00	9,70E+06	2,20E+04	1,50E+04
Sr-89	1,40E-01	2,40E+15	2,00E+15	4,30E+03	9,00E-01	1,20E+02
Sr-90	2,90E+01	2,30E+14	3,70E+14	6,30E+00	1,70E-01	2,80E+01
Y-91	1,60E-01	3,00E+15	2,60E+15	5,30E+03	4,70E-01	7,80E+01
Nb-94	2,00E+04	4,20E+05	8,40E+05	2,90E+02	1,10E+00	9,60E-01
Zr-95	1,80E-01	3,90E+15	3,70E+15	8,70E+08	7,10E+00	2,40E+02
Nb-95	9,60E-02	3,80E+15	3,50E+15	1,40E+08	1,10E+01	4,70E+02
Tc-99	2,10E+05	4,50E+10	7,60E+10	1,20E+01	4,50E-01	3,30E-02
Ru-103	1,10E-01	3,30E+15	3,60E+15	5,70E+02	4,70E-01	2,30E+02
Ag-108m	1,30E+02	7,70E+04	1,70E+05	4,80E+00	4,80E+00	5,10E+00
I-129	1,60E+07	9,80E+07	1,80E+08	1,90E-06	8,30E-08	3,60E-05
Cs-134	2,10E+00	7,50E+13	1,60E+14	1,20E+02	1,50E+02	4,80E+02
Cs-137	3,00E+01	3,10E+14	5,30E+14	5,90E+00	2,20E-01	8,30E+01
Ce-141	8,90E-02	3,90E+15	3,80E+15	3,30E+03	3,40E+00	1,60E+03
Ce-144	7,80E-01	2,50E+15	2,60E+15	1,00E+01	4,40E-01	1,20E+02
Pm-147	2,60E+00	6,80E+14	8,90E+14	3,60E+00	1,70E-01	4,80E+01
Eu-152	1,30E+01	7,10E+10	1,20E+11	4,10E-04	3,20E+03	2,70E-01
Eu-154	8,50E+00	4,60E+12	1,10E+13	3,00E+00	4,60E+02	1,10E+03
Pu-241	1,40E+01	2,60E+14	5,70E+14	1,70E+00	2,90E-07	3,80E-03

Sostanzialmente i principali radionuclidi elencati nell'inventario nazionale italiano non differiscono molto da quelli mostrati nelle due liste di nuclidi suddette; qualche considerazione è comunque necessaria in relazione allo I-129, presente nelle liste degli altri paesi ma assente nell'inventario italiano. Anche nella lista dei radionuclidi presentata nella tabella 6.2 dell'inventario inglese, tra gli altri nuclidi viene citato anche I-129. Lo I-129 è un radionuclide a lunga emivita ( $1.6 \times 10^7$  anni) emesso dal ritrattamento del combustibile nucleare e da impianti di solidificazione dei rifiuti<sup>63</sup>, ma è anche una componente potenzialmente importante dei rifiuti radioattivi di livello intermedio.

<sup>63</sup> D.J. Ashworth, G. Shaw, A.P. Butler, L. Ciciani, "Soil transport and plant uptake of radio-iodine from near-surface groundwater", Journal of Environmental Radioactivity 70 (2003) 99–114

## Appendice II: Attività preliminari sui gas nobili presentate al workshop WOSMIP

Qui di seguito si riporta il lavoro presentato al Workshop *WOSMIP 2011 (Workshop on Signatures of Medical and Industrial Isotope Production)*, organizzato dal PNNL (Pacific Northwest National Laboratory) presso il Castello di Strassoldo di Sopra (Udine, Italy), June 13-17, 2011.

### PRELIMINARY ACTIVITIES ON THE MEASUREMENT OF NOBLE GASES AT ENEA

E. Nava<sup>a</sup>, P. Bartolomei<sup>a</sup>, R. Lorenzelli<sup>b</sup>, F. Padoani<sup>a</sup>, A. Rizzo<sup>a</sup>, S. Salvi<sup>b</sup>

<sup>a</sup>ENEA UTFISSM, Bologna Research Centre, Via Martiri di Monte Sole 4, 40129 Bologna, Italy  
 (<http://www.bologna.enea.it>)

<sup>b</sup>ENEA UTIS, Brasimone Research Centre, 40032 Camugnano (Bologna), Italy  
 (<http://www.brasimone.enea.it/laboratori/radiometria.html>)

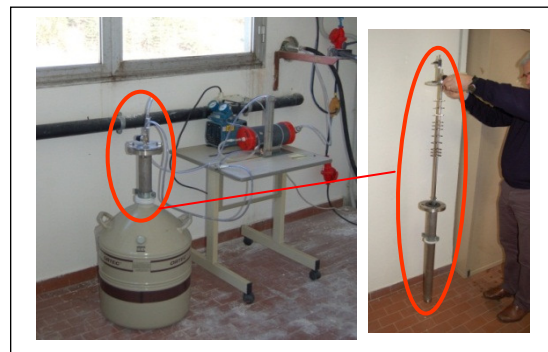
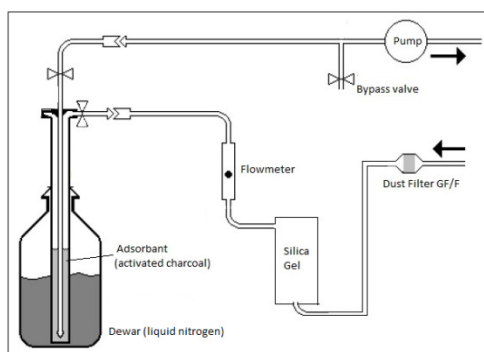
Corresponding author: [Elisabetta.Nava@enea.it](mailto:Elisabetta.Nava@enea.it)

### Introduction

The activity on the measurement of radioactive noble gases was recently planned at ENEA within the framework of institutional agreements for the setting up of a laboratory for environmental analysis and for monitoring studies related to the Italian national plan on the near surface repository for radioactive wastes. A preliminary sampling system is under development at the ENEA Brasimone research centre (Bologna, Italy). The system was not yet completed at the time of Fukushima event (March 2011). Anyway, in order to have some local rough indication of noble gas detections a provisional sampling system was set up. We will show hereinafter some preliminary tests performed with this system.

### Methods and instruments: work in progress

A provisional sampling system was constructed at ENEA along the lines of the BfS system<sup>[1],[2]</sup> (Figure 1). The sampling equipment consists of absorber filled with activated charcoal and cooled with liquid nitrogen. Atmospheric air was filtered to minimize the aerosol and water components (filter GF/F and silica gel respectively) before being adsorbed. Neither desorption process nor concentration/purification stage were performed. After collection, the activated charcoals were transferred into a sealed cylindrical plexiglass box that was then placed into the well of the germanium detector on the top of the Ge crystal for gamma spectrometry measurements (Figure 2). The detector was a low background HPGe (ORTEC GMX-60230, n-type, Al endcap - Be window, liquid nitrogen cooling system, analogic electronic system). The signal processing was performed by using the standard software provided by ORTEC (Gamma Vision).



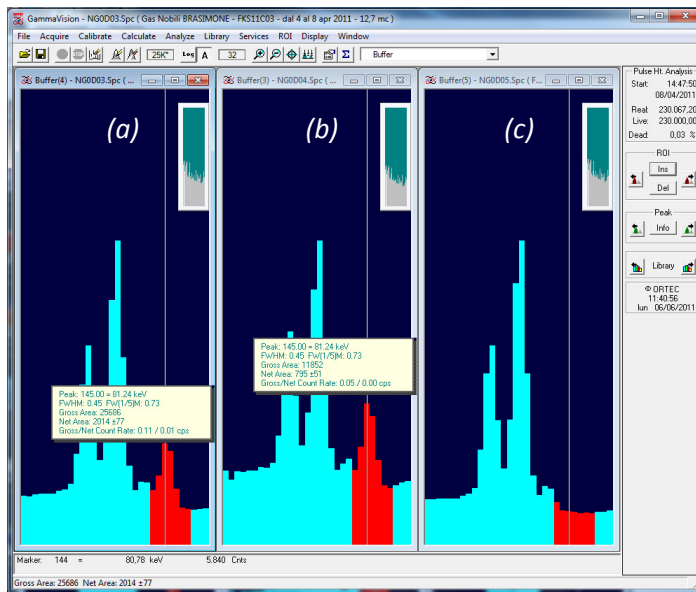
**Figure 1** - Sampling scheme (on the left) and sampling set up (on the right).



**Figure 2** - Plexiglass box containing the exposed charcoal (on the left) and positioning of the box in the well of the germanium detector (on the right).

**Preliminary results**

A first sampling was performed from 4<sup>th</sup> to 8<sup>th</sup> April 2011 (total volume of air: 12,7 m<sup>3</sup>). The measured gamma ray spectrum is shown in Figure 3a: the Xe-133 peak at 81 keV was identified (about 64 h counting time), but the activity was not quantified (the efficiency of the sampling system and the efficiency curve for the plexiglass box were not determined yet). The Rn isotopes were not separated in the measured sample (there a lot of peaks related to Rn-222 daughters), so the same sample was measured again after 7 days in order to let Rn decay and so to confirm the Xe-133 identification (figure 3b). A further sampling was performed from 9<sup>th</sup> to 12<sup>th</sup> May 2011 (total volume of air: 18.6 m<sup>3</sup>) and, as expected, the spectrum did not show any Xe peak (Figure 3c). It is evident that it would be better to separate the Xe content in the air sample from the other gases that interfere with the Xe-133 line. For instance, there is a peak at 79.4 keV that affects the Xe-133 line at 81 keV and this is particularly relevant in the case of activities close to MDA.



**Figure 3** – Measured spectra:

- (a) First sample: sampling time: 4-8 April 2011, acquisition start: 08/04/2011, acquisition time: about 64 h, net area: 2014 counts;
- (b) same sample as in (a), acquisition start: 15/04/2011, acquisition time: about 64 h, net area: 795 counts;
- (c) second sample: sampling time: 9-12 May 2011, acquisition start: 13/05/2011, acquisition time: about 83 h.


**On-going improvements**

Some improvements are under discussion in order to complete the sampling equipment and procedures and to increase the efficiency of the whole system.

As for the sampling system:

- a new water adsorbant (a vertical glass tube containing silica gel) has been recently constructed to minimize the water vapour during the air sampling;
- a cylindrical oven is under construction to dry the sample from residual water and to desorb the gases from the adsorbant into a Marinelli beaker for measurements of the activity of the final gas sample;
- a more powerful pump will be used in order to increase the air flow rate.

As for the detection system, soon we will have a new germanium detector (p-type extended range HPGe, model GX6020 Canberra, 60% efficiency). The Ge crystal is contained in a very low background carbon epoxy endcap that allows an energy range from 3 keV to 10 MeV. The crystal is isolated from the

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	NNFISS – LP4 - 019	0	L	38	38

*background using a U-type ultralow background cryostat (model 7915-30ULB). The cooling system is obtained by a compressor Mod. CryoCycle CC-HI-U. All the materials of the detector and the shielding are selected Ultra Low Background. We are planning to have all the electronics specifically designed to meet our laboratory requirements and entirely digital in order to facilitate the anticoincidence for anti-compton and to reduce the effect of cosmic rays.*

### **Acknowledgements**

*We thank Dr Clemens Schlosser (Bundesamt für Strahlenschutz, Freiburg, Germany) for fruitful discussions and for arranging the visit to the BfS laboratory.*

*Thanks are due to Mr Fabiano Serra (ENEA UTIS-PNIP, Brasimone Research Centre) for the construction of the sampling equipment.*

*This work is carried out in the framework of the ENEA Tecnopolo project (funded by Regione Emilia-Romagna) and within the activities of the ENEA-CTBT team supporting the Italian National Authority for the Radionuclide NDC (ENEA-CTBT Support Group: F. Padoani, A. Baldi, P. Bartolomei, R. Lorenzelli, E. Nava, A. Rizzo, S. Salvi, A. Taglioni).*

### **References**

- [1] H. Stockburger, H. Sartorius, A. Sittkus, Messung der Krypton-85- und Xenon-133-Aktivität der atmosphärischen Luft, Z. Naturforsch. 32a (1977) 1249-1253.
- [2] Sartorius, H., C. Schlosser, S. Schmid, W. Weiss Verfahren zur Bestimmung der Aktivitätskonzentration der atmosphärischen Edelgase Krypton-85 und Xenon-133, Blatt 3.4.9, Loseblattsammlung FS-78-15-AKU Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität, Juli 2002).