

**Titolo**

**CARATTERIZZAZIONE RADIOLOGICA DELLE PARTI  
RESIDUE DELL' IMPIANTO CO.NU-MAGNOX – FASE  
1: ESITI DELLE MISURE DI PRE-  
CARATTERIZZAZIONE DELLA MATRICE ACQUA**

**Descrittori**

Tipologia del documento: Rapporto Tecnico

Collocazione contrattuale:

Argomenti trattati: Misure di caratterizzazione radiologica di materiali da impianto

**Sommario**


Presentazione degli esiti della pre-caratterizzazione della matrice acqua prevista nella fase 1 del "Piano di caratterizzazione radiologica delle parti residue dell'impianto CO.NU Magnox in area ENEA".

**Note**

Copia n.

In carico a:

2			NOME			
			FIRMA			
1			NOME			
			FIRMA			
0	EMISSIONE	15/10/2018	NOME	P. Battisti	C.M. Castellani	E. Fantuzzi
			FIRMA	<i>P. Battisti</i>	<i>C.M. Castellani</i>	<i>E. Fantuzzi</i>
REV.	DESCRIZIONE	DATA	REDAZIONE	CONVALIDA	APPROVAZIONE	

	Istituto di Radioprotezione	IRP-P000-011	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 2	di 23
---	-----------------------------	--------------	-----------	---------------	-----------	----------

## Indice

<b>1.</b>	<b><i>SINTESI</i></b> .....	<b>3</b>
<b>2.</b>	<b><i>OGGETTO</i></b> .....	<b>5</b>
<b>3.</b>	<b><i>INTRODUZIONE</i></b> .....	<b>5</b>
<b>4.</b>	<b><i>MISURE PRELIMINARI</i></b> .....	<b>6</b>
<b>5.</b>	<b><i>PRE-TRATTAMENTO DEI CAMPIONI</i></b> .....	<b>7</b>
<b>6.</b>	<b><i>PROCEDURA DI MISURAZIONE DEI CAMPIONI</i></b> .....	<b>8</b>
6.1.	Determinazione di U-238 e U-235 mediante spettrometria di massa tipo ICP..	9
6.2.	Spettrometria gamma .....	9
6.3.	Determinazione dell'attività alfa totale e beta totale.....	10
<b>7.</b>	<b><i>ESITI DELLA PRE-CARATTERIZZAZIONE</i></b> .....	<b>11</b>
7.1.	Bianco.....	11
7.1.1.	<i>Risultati di misura del Bianco</i> .....	12
7.1.2.	<i>Analisi dei risultati del Bianco</i> .....	12
7.2.	Vasca in cemento di contenimento del serbatoio .....	13
7.2.1.	<i>Risultati di misura della vasca</i> .....	13
7.2.2.	<i>Analisi dei risultati</i> .....	13
7.3.	Serbatoio in acciaio – Setto destro.....	15
7.3.1.	<i>Risultati di misura del Setto destro del Serbatoio</i> .....	15
7.3.2.	<i>Analisi dei risultati</i> .....	15
7.4.	Serbatoio in acciaio – Setto sinistro.....	16
7.4.1.	<i>Risultati di misura del Setto sinistro del Serbatoio – Componente disciolta</i> .16	16
7.4.2.	<i>Analisi componente disciolta</i> .....	16
7.4.3.	<i>Risultati di misura del Setto sinistro del Serbatoio – Componente sospesa</i> .17	17
7.4.4.	<i>Analisi componente sospesa</i> .....	18
7.4.5.	<i>Indicazioni generali per il liquido presente nel setto sinistro del serbatoio</i> ..20	20
<b>8.</b>	<b><i>RIASSUNTO DEI RISULTATI E DEFINIZIONE DEL NUMERO MINIMO N/2 DI CAMPIONI NECESSARI PER LA FASE DI CARATTERIZZAZIONE</i></b> .....	<b>22</b>
<b>9.</b>	<b><i>RIFERIMENTI</i></b> .....	<b>23</b>

## 1. SINTESI

Lo scopo delle misure di pre-caratterizzazione sulle matrici liquide presenti all'interno delle componenti residue dell'ex impianto CO.NU. MAGNOX (serbatoio e vasca in cemento di contenimento) è quello di:

- valutare in via preliminare l'entità preliminare dei livelli di concentrazione di uranio naturale ( $U_{nat}$ ) nei campioni di ciascun gruppo omogeneo individuato;
- determinare il numero di campioni da misurare per ciascun gruppo omogeneo per la seguente fase di caratterizzazione, per garantire la rappresentatività statistica del campione misurato rispetto alla quantità complessiva delle stesse matrici presenti;
- valutare la necessità di eventuali azioni aggiuntive non preventivate.

Essa è stata realizzata prendendo in esame 4 set di campioni di acqua di cui 3 prelevati dalle componenti residue dell'impianto, specificatamente:

- set 1 - serbatoio in acciaio: setto destro
- set 2 - serbatoio in acciaio: setto sinistro
- set 3 - vasca in cemento di contenimento del serbatoio
- set 4 - campione di "Bianco", prelevato dalla rete idrica del CR Trisaia al fine di costituire il gruppo omogeneo di riferimento.

Gli esiti peculiari della pre-caratterizzazione sono riassunti nella tabella sottostante ove per tutti i gruppi omogenei considerati sono riportati;

- numero di campioni analizzati;
- concentrazione attività totale di uranio naturale  $U_{nat}$  nei campioni: minima, massima, media aritmetica (M), scarto tipo campionario (DSC) e deviazione standard geometrica (DSG);
- numero di campioni N/2 complessivo da misurare nella seguente fase di caratterizzazione, per le diverse matrici liquide.

**Pre-caratterizzazione delle matrici liquide delle componenti residue dell'ex impianto MAGNOX: dati riassuntivi inerenti la concentrazione di uranio naturale nei set di campioni analizzati e stima del numero minimo di campioni da utilizzare nella successiva fase di caratterizzazione**


Matrice	Fase <sup>(1)</sup>	campioni utilizzati n.	Uranio naturale					campioni necessari N/2 <sup>(3)</sup>
			min (Bq/kg <sub>camp</sub> )	max (Bq/kg <sub>camp</sub> )	$C_{A,TOT}^{(2)}$ M (Bq/kg <sub>camp</sub> )	DSC (%)	DSG	
Bianco - acqua rete Trisaia	C.	20	1,53E-02	1,97E-02	1,69E-02	6,5%	1,06	-----
Acqua vasca in cemento	P.C.	7	1,80E-02	1,92E-02	1,85E-02	2,5%	1,03	<b>18</b>
Acqua serbatoio setto destro	P.C.	7	7,74E-03	9,20E-03	8,46E-03	6,4%	1,07	<b>18</b>
Acqua serbatoio setto sinistro	P.C.	7	1,18E+00	1,45E+00	1,24E+00	7,5%	1,07	<b>19</b>

(1) C. = Caratterizzazione - P.C. = pre-caratterizzazione

(2)  $C_{A,TOT}$  = Concentrazione di attività totale di  $U_{nat}$  - M = media aritmetica - DSC = deviazione standard campionaria - DSG = deviazione standard geometrica

(3) N/2 = numero minimo di campioni da analizzare per la caratterizzazione (da associare a un ugual numero di campioni di bianco)

I campioni dei liquidi sono risultati omogenei all'interno di ogni gruppo omogeneo (deviazione standard geometrica di limitatissima entità).

	Istituto di Radioprotezione	IRP-P000-011	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 4	di 23
---	-----------------------------	--------------	-----------	---------------	-----------	----------

I livelli di uranio naturale  $U_{nat}$  complessivo presente nei campioni sono risultati paragonabili al campione di “bianco” per l’acqua all’interno della vasca di contenimento del serbatoio e addirittura inferiori per l’acqua del setto destro del serbatoio.


L’acqua del setto sinistro del serbatoio è caratterizzata da una concentrazione di attività di uranio naturale  $U_{nat}$  da 50 a 100 volte superiori rispetto sia al campione di “bianco” che alle altre due matrici di acqua (setto destro del serbatoio e vasca di contenimento).

In alcuni campioni della matrice acqua del setto sinistro del serbatoio è stata rilevata la presenza di un deposito solido, non associabile alla matrice acqua, caratterizzato da un significativo contenuto in  $U_{nat}$ , al momento stimato in circa 40 Bq/g. Esso attesta la presenza di un sedimento sul fondo del serbatoio che in termini di concentrazione di attività configura un gruppo omogeneo indipendente.

I risultati delle misure di pre-caratterizzazione hanno permesso di calcolare il numero totale di campioni  $N/2$  (da associare ad un egual numero di campioni di bianco), necessari per poter effettuare la caratterizzazione finale delle matrici presenti e la verifica di rilasciabilità senza vincoli di natura radiologica, così come indicato nel Piano. Il valore di  $N/2$  è stato determinato con un approccio estremamente conservativo (ipotizzata come modalità di allontanamento addirittura l’ingestione dell’acqua) nel rispetto del vincolo della non rilevanza radiologica (dose annua pari a 10 microSv). Il valore di  $N/2$  così determinato risulta idoneo qualunque sia la modalità di allontanamento che si vorrà adottare.

La successiva fase di analisi e verifica dei risultati su tutti i campioni per ciascun gruppo omogeneo permetterà di concludere la fase di caratterizzazione delle matrici liquide e la valutazione del destino finale delle stesse.

Il destino complessivo della matrice acqua, in particolare per il quantitativo all’interno del setto sinistro del serbatoio, dovrà essere valutato, oltre che sul contenuto radioattivo anche sulla presenza di sedimento e la possibilità di separazione dello stesso dal liquido, alla luce delle diverse alternative, inclusa l’opportunità di conferimento a ditta autorizzata dell’intero contenuto come rifiuto radioattivo.

	Istituto di Radioprotezione	IRP-P000-011	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 5	di 23
---	-----------------------------	--------------	-----------	---------------	-----------	----------

## 2. OGGETTO

Oggetto di questa relazione è la presentazione degli esiti delle misure di pre-caratterizzazione della matrice acqua presente nel serbatoio in acciaio e nel vano in cemento di contenimento dello stesso, così come prevista nel “PIANO DI CARATTERIZZAZIONE RADIOLOGICA DELLE PARTI RESIDUE IN AREA ENEA DELL’IMPIANTO CO.NU-MAGNOX – Fase 1” (da qui in avanti denominato per concisione “Piano”)<sup>1</sup>.

## 3. INTRODUZIONE

Le misure di pre-caratterizzazione sono state eseguite sui set di campioni di acqua prelevati da Nucleco presso l’ex impianto MAGNOX in data 21 giugno 2018. A tale riguardo si precisa che, tenuto conto delle condizioni oggettive riscontrate, e specificatamente:


- la suddivisione del serbatoio in due setti di pari volume non comunicanti, fatto non noto al momento della redazione del Piano che ha portato all’individuazione di ciascun setto del serbatoio come “contenitore” di uno specifico gruppo omogeneo di liquidi;
- il livello di riempimento dello stesso serbatoio inferiore a quello atteso (superficie libera dell’acqua a circa 75 cm dal fondo per entrambe i setti),
- la limitata agibilità della vasca in cemento,
- il numero di prelievi per il quale Nucleco, sulla base di quanto stipulato con ENEA, risultava attrezzata,

si è provveduto a collezionare N° 4 set di campioni di acqua così costituiti:

- set 1 - setto destro del serbatoio: N° 10 campioni dell’acqua presente nel setto destro del serbatoio, di cui N° 5 prelevati a 35 cm di profondità dalla superficie libera dell’acqua (codici da S1 a S5) e N° 5 a 1 cm dal fondo del serbatoio (codici da S6 a S10);
- set 2 – setto sinistro del serbatoio: N° 10 campioni dell’acqua presente nel setto sinistro del serbatoio, di cui N° 5 prelevati a 35 cm di profondità dalla superficie libera dell’acqua (codici da S11 a S15) e N° 5 a 1 cm dal fondo del serbatoio (codici da S16 a S20);
- set 3- vasca in cemento: N° 20 campioni (codici da V1 a V20) dell’acqua presente nella vasca in cemento (superficie libera a circa 40 cm dal fondo) prelevati a circa 10 cm dal fondo lungo l’intero perimetro interno della vasca stessa (vedi figura 1)
- set 4 - bianco: N° 20 campioni di acqua di rete (codici da B1 a B20) prelevati direttamente da ENEA IRP in diversi edifici del CR Trisaia, sempre in data 21 giugno 2018.

Il prelievo del set 4 si è reso necessario al fine di costituire il gruppo omogeneo di confronto, “campione di bianco”, espressamente richiesto dalla procedura di validazione proposta nel Piano per verificare la rappresentatività statistica dei suddetti set di campioni in relazione ai rispettivi gruppi omogenei di riferimento (acqua nel setto sinistro del serbatoio, acqua nel setto destro del serbatoio e acqua nella vasca in cemento).

Tenuto conto del numero di campioni disponibili, è stata eseguita la procedura di pre-caratterizzazione col fine di: avere una prima indicazione del livello di uranio naturale ( $U_{nat}$ ) effettivamente presente nelle matrici liquide, determinare il numero N/2 di campioni per ciascun gruppo omogeneo necessario per garantire la rappresentatività statistica del campione misurato rispetto alla quantità complessiva delle varie matrici liquide ai fini della caratterizzazione finale, pianificare, ove necessario, attività suppletive quali l’esecuzione di ulteriori campionamenti.

	Istituto di Radioprotezione	IRP-P000-011	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 6	di 23
---	-----------------------------	--------------	-----------	---------------	-----------	----------

## 4. MISURE PRELIMINARI

Per avere una prima indicazione sui livelli di concentrazione di  $U_{nat}$  e definire le modalità di trattamento dei campioni è stata innanzitutto eseguita, per tutti i gruppi omogenei, bianco incluso, una serie di misure preliminari sottoponendo a determinazione del contenuto di uranio in spettrometria di massa tre campioni in forma tal quale selezionati casualmente fra quelli costituenti ciascuno dei 4 set; specificatamente:

- Set 1 (setto destro serbatoio): campioni S2, S6 e S9
- Set 2 (setto sinistro serbatoio)::: campioni S13, S15 e S20
- Set 3 (vasca): V3, V14 e V17
- Set 4 (bianco): B2, B10 e B15

Si sottolinea innanzitutto che, causa l'impossibilità di verificare sul momento l'effettiva e completa separazione dei due setti, per evitare alterazioni dovute alla possibile movimentazione di materiale depositato sul fondo, il campionamento nel serbatoio è stato eseguito prelevando dapprima i 10 campioni a 35 cm dalla superficie libera dell'acqua (alto) seguiti dai 10 a 1 cm dal fondo (basso), secondo la seguente successione: setto dx alto (campioni da S1 a S5) – setto sx alto (campioni da S11 a S15) – setto sx basso (campioni da S16 a S20) – setto dx basso (campioni da S6 a S10).


Le misure preliminari, sono state eseguite utilizzando un'aliquota di 10 mL di campione ed hanno evidenziato in particolare una evidente anomalia per il campione S6 (setto destro del serbatoio); esso presentava, infatti, una concentrazione di Uranio inspiegabilmente superiore di circa 2 ordini di grandezza rispetto a quanto riscontrato negli altri due campioni del set di appartenenza (S2 e S9), ma assai simile a quanto invece rilevato in quelli del Set 2 (setto sinistro del serbatoio).

Tale circostanza ha indotto ad estendere le misure preliminari a tutti i campioni relativi al serbatoio e alla vasca al fine di valutare la loro stessa utilizzabilità, decisione, risultata successivamente di grande utilità anche per la stima della ripartizione del contenuto di uranio nell'acqua fra le componenti sospesa e disciolta; ciò ha permesso di evidenziare che analoga anomalia di concentrazione coinvolgeva in totale 4 campioni, due prelevati nel setto destro del serbatoio (S6 e S7) e due in quello sinistro (S11 e S12).

Dall'analisi dei risultati di misura è emerso che in entrambe i casi erano interessati i primi due campioni raccolti dopo il cambio di setto e che i valori di concentrazione di uranio erano rispettivamente pari a quello medio del setto "precedente" in S6 e S11 (primi raccolti dopo il cambio di setto) e "intermedio" fra i due setti per S7 e S12 (raccolti immediatamente dopo S6 e S11). Appare pertanto pressoché certo che il problema riscontrato è da imputare ad alterazione da mescolamento causata da un errore procedurale riconducibile al mancato svuotamento della pompa e del tubo di raccolta nel passaggio da un setto all'altro. L'ipotesi è peraltro convalidata quantitativamente considerando che sono stati collezionati campioni di volume di 1 litro e che è stata poi accertata la presenza di circa 1,5 litri di liquido (in questo caso acqua) stazionante costantemente all'interno del sistema "pompa-tubo di raccolta" durante l'utilizzo.

La pre-caratterizzazione dell'acqua presente nel serbatoio è stata effettuata in linea con quanto indicato dal Piano, escludendo ovviamente i campioni affetti dall'alterazione qui descritta



	Istituto di Radioprotezione	IRP-P000-011	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 7	di 23
---	-----------------------------	--------------	-----------	---------------	-----------	----------

## 5. PRE-TRATTAMENTO DEI CAMPIONI

In applicazione della procedura definita nel Piano per la determinazione del numero minimo di campioni N/2 da utilizzarsi per la caratterizzazione, sono stati analizzati i seguenti 21 campioni di acqua selezionati casualmente fra quelli dello specifico gruppo di appartenenza:

- 7 campioni prelevati dal set 3 (vasca in cemento)
- 7 campioni prelevati dal set 1 (setto destro del serbatoio);
- 7 campioni prelevati dal set 2 (setto sinistro del serbatoio);

a cui vanno aggiunti i 20 campioni di bianco (intero set 4), di cui si è stata completata già in questa fase la caratterizzazione completa.


Tutti i 41 campioni sono stati sottoposti innanzitutto a pesatura (le masse sono risultate comprese fra 955 e 1068 grammi), cui ha fatto seguito la procedura di filtrazione per la separazione della componente disciolta (acqua filtrata, CD) da quella sospesa (identificata nel materiale, MF, trattenuto su filtro con la filtrazione stessa). Ove possibile si è quindi valutata la massa a secco di quest'ultima per pesatura del filtro prima e dopo il filtraggio (in entrambe i casi previa essiccazione in stufa del filtro stesso).

Per quanto concerne il bianco (acqua di rete) la filtrazione è stata sospesa dopo 6 campioni in ragione del fatto che la presenza di materiale in sospensione risultava assolutamente trascurabile (nessun deposito visibile sul filtro dopo il passaggio dell'acqua con variazione di peso dello stesso nulla - nessuna traccia visibile di deposito sul fondo dei contenitori di raccolta, né di materiale sospeso); su tali 6 campioni è stata quindi eseguita per verifica la serie di misure previste che hanno permesso di constatare:

- la sovrapposizione del dato di concentrazione di uranio nella componente disciolta e nel campione tal quale,
- valori di attività alfa totale e beta totale nel filtrato su filtro (FF) non distinguibili dal dato di background ottenuto con misurazione del filtro pulito,
- assenza di attività rivelabili (superiori alla MDA) da gamma emettitori sia nella componente disciolta (misura dell'acqua filtrata) che in quella sospesa (misura del filtrato su filtro, FF).

Sulla scorta di tali risultati, tenuto anche conto degli esiti complessivi delle misure preliminari sulla concentrazione di uranio (vedi paragrafo 5), nonché del tempo non trascurabile necessario per il completamento della procedura di filtrazione, si è valutato corretto proseguire le analisi radiometriche del bianco solo sul campione in forma tal quale assumendolo di fatto come sistematicamente privo di una componente sospesa capace di apportare un contributo apprezzabile al contenuto radioattivo.

Per quanto riguarda i 21 campioni prelevati nel serbatoio e nella vasca, la filtrazione, eseguita invece su tutti i campioni, ha portato alla separazione di materiale in gran parte evidenziabile solo come blanda colorazione del filtro. A tale riguardo si deve sottolineare che, tenuto conto della massa del filtro stesso (circa 1,5 g), nonché delle incertezze associate alla procedura di essiccazione e di pesatura a secco, non si è potuta determinare con precisione accettabile la massa del materiale trattenuto dal filtro se inferiore a 5 mg. In tale situazione, verificatasi per ben 18 dei 21 campioni in esame, non è mai stato neanche possibile estrarre ed isolare una quantità di materiale sufficiente per l'effettuazione diretta di una qualsiasi delle tipologie di analisi in programma. Solo in 3 casi (campioni S18, S19 e S20) il materiale MF, peraltro ben visibile nel contenitore di raccolta più come deposito sul fondo che come materiale in sospensione, è risultato invece quantificabile in massa con precisione adeguata ed è altresì stato possibile separarne dal filtro un'aliquota pur tuttavia utile per l'effettuazione solo di parte delle misurazioni previste.

	Istituto di Radioprotezione	IRP-P000-011	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 8	di 23
---	-----------------------------	--------------	-----------	---------------	-----------	----------

Terminata la filtrazione, per ogni campione si è infine passati, previa omogeneizzazione per miscelazione, alla suddivisione della componente disciolta in aliquote opportune per l'esecuzione del set di misure previste dal Piano; specificatamente:

- 10 grammi per la determinazione via ICPMS del contenuto di uranio (U-238 e U-235),
- 100 grammi per la determinazione dell'attività alfa totale e beta totale,
- 500 grammi (riposti direttamente in beker di Marinelli da 500 ml) per l'effettuazione della spettrometria gamma.

## 6. PROCEDURA DI MISURAZIONE DEI CAMPIONI

Tenuto conto che il liquido presente nel serbatoio, ed in seconda battuta nella vasca, costituisce nel caso di specie la matrice più verosimilmente identificabile come eventuale termine sorgente della potenziale contaminazione dei gruppi omogenei individuati sia per la fase 1 che per la fase 2 del Piano, la procedura di misurazione adottata, pur orientata essenzialmente alla determinazione del contenuto di uranio, contempla per l'acqua una serie di misure più articolata rispetto alle altre matrici. Come già anticipato essa comprende:

- determinazione della concentrazione di U-238 e U-235 via ICP-MS,
- determinazione dell'attività alfa totale e beta totale,
- spettrometria gamma tal quale,


da effettuarsi separatamente, ove possibile, sia per la componente sospesa (CS) che per quella disciolta (CD).

In ragione delle risultanze sopra esposte dell'applicazione della procedura di filtrazione, se da un lato per la componente disciolta si è ovviamente potuto applicare quanto previsto per tutti i campioni senza particolari problemi sulla base della suddivisione in aliquote testé descritta, per la parte sospesa si è adottata la strategia di seguito riportata:

- per tutti i 21 campioni:
  - concentrazione di uranio: dato stimato dal confronto fra la concentrazione misurata nel campione in forma tal quale (assunto rappresentativo della concentrazione totale di uranio nel campione) e nella componente disciolta;
  - spettrometria gamma: eseguita direttamente sull'intero filtro così come ottenuto dopo procedura di filtrazione e sua successiva essiccazione (FF);
  - attività alfa e beta totale: determinazione mediante misurazione con contatore proporzionale a flusso di gas effettuata direttamente su una porzione di FF. A tale proposito si precisa che, considerate dimensioni e forma dell'alloggiamento del campione nello strumento di misura, dal filtro contenente il filtrato è stata ritagliata al centro una disco di 5 cm di diametro corrispondente ad 1/9 della superficie totale e quindi a poco più 100 ml di acqua dei circa 1000 filtrati (di fatto la stessa quantità utilizzata per la misura in scintillazione liquida). Il prelievo è stato eseguito al centro per evitare eventuali sottostime dell'attività (accettando di contro il rischio di eventuali sovrastime).
- per i campioni con MF quantificabile (S18, S19 e S20): esecuzione aggiuntiva delle analisi dirette effettivamente consentite dalla massa risultata estraibile, dando ovviamente la priorità alla determinazione dell'uranio via ICP-MS.

Rimandando al Piano [1] per una descrizione più articolata delle tecniche di analisi, si vogliono qui sottolinearne alcuni aspetti peculiari anticipando, ove opportuno, considerazioni utili al fine della "lettura" degli esiti delle misure oggetto del paragrafo successivo.



	Istituto di Radioprotezione	IRP-P000-011	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 9	di 23
---	-----------------------------	--------------	-----------	---------------	-----------	----------

## 6.1. Determinazione di U-238 e U-235 mediante spettrometria di massa tipo ICP

Costituisce il punto fondamentale di tutta la procedura di caratterizzazione in quanto è la tecnica analitica di riferimento per la determinazione specifica della concentrazione (in massa) di U-238 e U-235, e quindi di uranio in tutte le sue forme, inclusa ovviamente quella naturale. Essa consente di raggiungere livelli di minima concentrazione rivelabile (MDA) estremamente spinta, il che la rende particolarmente adatta anche per campioni di ridottissima entità, ed è facilmente applicabile a matrici liquide anche con misura diretta, previa eventuale diluizione, mentre per quelle solide sussistono limitazioni determinate dalla quantità di campione analizzabile in ragione della necessità di portare in soluzione liquida l'intero campione e quindi applicare tecniche di dissoluzione totale, peraltro sovente complesse e laboriose.

Trattandosi nello specifico di misura finalizzata alla determinazione del contenuto di uranio in forma naturale (Unat), praticamente ubiquitario sul pianeta, la semplice presenza di U-238 e di U-235 in una matrice non fornisce in sé alcuna prova circa un'eventuale "contaminazione" dovuta ad attività antropiche se non quando presenti in un rapporto in massa significativamente diverso da quello proprio del Unat (pari allo 0,72%), essendo tale prova da ricercarsi invece come incremento statisticamente significativo della concentrazione dell'analita rispetto allo stato "indisturbato" di quella specifica matrice nell'ambiente dato. Qualsiasi valutazione in merito, in specie se finalizzata all'allontanamento di materiali, non può pertanto prescindere dal confronto con opportuni campioni di bianco (in linea di principio la medesima matrice nello stato immediatamente precedente l'avvio della pratica in indagine).


Valori di riferimento per MDA:

- ~ 1 ng/L (~  $10^{-5}$  Bq/L) per U-238
- ~ 0,1 ng/L (~  $10^{-5}$  Bq/L) per U-235

## 6.2. Spettrometria gamma

Costituisce la tecnica di riferimento per valutare contaminazioni da radionuclidi X-gamma emettitori in quanto ne permette facilmente l'identificazione e la quantificazione, anche quando presenti in forma di miscele, attraverso la peculiare capacità di discriminare e quindi consentire analisi quantitative delle singole emissioni fotoniche. Ampiamente utilizzata in radioprotezione anche per la sua semplicità d'esecuzione, quantomeno negli impieghi più comuni, è tuttavia limitata dalla non elevata sensibilità; anche per i sistemi a più ampio spettro la presenza di un radionuclide nel campione in esame può infatti essere rivelata e quantificata per attività dell'ordine di alcuni decimi di Bq per le emissioni a più alta energia e di qualche Bq per quelle a energia inferiore (< 100 keV).

Nel caso in esame il suo utilizzo è soprattutto finalizzato a dare indicazioni di anomalie che possano configurare una storia delle componenti residue dell'impianto difforme da quella attesa; nella fattispecie: rilevazione di eventuali contaminanti non previsti, in particolare di origine artificiale (in primis Cs-137 e Co-60), o di attività significative di radionuclidi della famiglia dell'uranio quali Ra-226 o Pb-210, ossia presenza significativa di Ac-228 come indicatore del Th-232. Per quanto attiene invece la valutazione del contenuto di Unat, la tecnica può risultare un utile strumento di analisi e conferma del dato ottenuto con spettrometria di massa solo per concentrazioni non inferiori alla decina di Bq/kg di U-238 (misurabile in modo indiretto mediante la determinazione delle emissioni gamma a 63 keV e

	Istituto di Radioprotezione	IRP-P000-011	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 10	di 23
---	-----------------------------	--------------	-----------	---------------	------------	----------

92 keV del Th-234, ipotizzato in equilibrio secolare col padre), ove per l'isotopo U-235 la "rivelabilità", pur decisamente inferiore, è però strettamente connessa all'applicazione di procedure che permettano di discriminare il contributo del Ra-226 all'emissione fotonica a 186 keV, sostanzialmente coincidente nello spettro gamma con quella principale dello stesso U-235.

Valori di riferimento per MDA:


- ~ 0,2 Bq/kg per Cs-137 e Co-60
- ~ 0,5 Bq/kg per U-235 (al netto della separazione del contributo del Ra-226)
- ~ 10 Bq/kg per U-238 (via Th-234), Ra-226 (misura diretta) e Pb-210
- ~ 0,5 Bq/kg per Ac-228

### 6.3. Determinazione dell'attività alfa totale e beta totale

Trattasi di una tecnica di analisi radiometrica piuttosto grossolana, atta a dare informazioni generiche sul contenuto radioattivo di un campione. E' indicata soprattutto per monitoraggi finalizzati a definire uno stato radiologico complessivo, a verificarne uno già noto, nonché come misura orientativa preliminare o come integrazione di altre misurazioni. Nel caso specifico, essendo associata alla misura in spettrometria di massa, essa viene impiegata per avere indicazioni sulla possibile presenza nei campioni, oltre all'uranio, di altri contaminanti non attesi, principalmente alfa emettitori, ma anche beta emettitori puri e beta-gamma emettitori. Anche in questo caso l'esito della misura è fortemente influenzato dal contributo derivante dalla presenza "a priori" dell'insieme dei radionuclidi di origine naturale. Per tale ragione l'interpretazione necessita non solo di opportune valutazioni del contributo dovuto al fondo strumentale, inclusi reagenti o altre sostanze impiegate nella preparazione del campione di misura, ma ancora una volta di termini di confronto costituiti da appropriati campioni di bianco.

Valori di riferimento per MDA (per 100 ml di acqua analizzata):

- ~ 2.0E-2 Bq/L per l'attività alfa totale
- ~ 8.0E-2 Bq/L per l'attività beta totale (attività K-40 equivalente)

	Istituto di Radioprotezione	IRP-P000-011	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 11	di 23
---	-----------------------------	--------------	-----------	---------------	------------	----------

## 7. ESITI DELLA PRE-CARATTERIZZAZIONE

Premesso che le valutazioni definitive sono demandate al completamento della caratterizzazione vera e propria, vengono qui esposti gli esiti e le relative considerazioni preliminari inerenti le misure di pre-caratterizzazione eseguite per i 3 gruppi omogenei della matrice acqua presente nelle componenti residue dell'impianto CO.NU. Magnox (serbatoio, suddiviso in due setti distinti, e vasca in cemento di contenimento dello stesso), nonché, come previsto dal Piano, della caratterizzazione del campione di bianco, nella fattispecie identificato con l'acqua di rete del CR Trisaia.

I suddetti esiti vengono presentati distintamente per ciascuno dei 4 gruppi omogenei attraverso specifiche tabelle ove sono riportati, per ogni campione, valore e incertezza associata (S) delle seguenti grandezze:

- concentrazione di attività,  $C_A$ , di U-238 e U-235 (in Bq/kg<sub>camp</sub>) ottenuta dalla relazione:

$$C_A = A_{sp} \times C_M$$

ove  $C_M$ , è la concentrazione in massa misurata mediante ICP-MS e  $A_{sp}$  è l'attività specifica del radioisotopo considerato;

- rapporto delle concentrazioni in massa di U-235 e di U-238 (a conferma della composizione isotopica attesa);
- concentrazione di attività di Uranio naturale (in Bq/kg<sub>camp</sub>) ottenuta, nell'ipotesi di composizione standard dello stesso, applicando la formula:

$$C_A(\text{Unat}) = 2 \times C_A(\text{U-238}) + C_A(\text{U-235})$$

- attività alfa totale (in Bq/kg<sub>camp</sub>) determinata sperimentalmente mediante misurazione in scintillazione liquida o con contatore proporzionale,
- attività beta totale (in Bq/kg<sub>camp</sub>) determinata sperimentalmente mediante misurazione in scintillazione liquida o con contatore proporzionale.

Nelle tabelle vengono altresì riportati, per ciascuna delle grandezze sopra elencate, media aritmetica ( $m_a$ ), deviazione standard campionaria (DSC) e deviazione standard geometrica (DSG), parametri caratterizzanti ciascun set di campioni e fondamentali per l'applicazione della procedura di caratterizzazione così come prevista dal Piano. Non sono invece riportati gli esiti delle misure in spettrometria gamma, siano esse quelle eseguite in geometria Beker di Marinelli (liquido) che in geometria scatola di Petri (filtro), in quanto, non avendo in nessun caso rivelato la presenza di alcun radionuclide a livelli superiori alla MDA, esse non aggiungono di fatto alcuna informazione significativa ai fini della caratterizzazione, se non l'assenza di anomalie nei termini esplicitati precedentemente (vedi punto 4.2). Si può tuttavia segnalare, in specie per i campioni prelevati nella vasca in cemento e nel serbatoio, il riscontro in diversi casi di conteggi relativi al K-40 a livelli prossimi alla soglia di decisione (mediamente pari ad attività dell'ordine di 1-2 Bq/kg<sub>camp</sub>), dato che trova indicativamente riscontro negli esiti della misura dell'attività beta totale.

### 7.1. Bianco

In Tabella 1 sono presentati gli esiti delle misure di caratterizzazione effettuate sui 20 campioni di bianco (acqua di rete del CR Trisaia). Come già ricordato, essendo stata riscontrata una presenza del tutto trascurabile della componente sospesa, sia in termini di massa che radiologici, tali campioni sono stati analizzati in forma tal quale assumendo l'intera concentrazione di attività ( $C_{A,TOT}$ ) dovuta alla componente disciolta.

### 7.1.1. Risultati di misura del Bianco

**Tabella 1: Acqua di rete CR Trisaia (campioni di bianco): esiti delle determinazioni della concentrazione totale ( $C_{A,TOT}$ ) di uranio e dell'attività alfa totale e beta totale (K-40 equivalente) effettuate sui 20 campioni utilizzati per la caratterizzazione della matrice.**

Camp.	$^{238}\text{U}$		$^{235}\text{U}$		$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ (in massa)	Unat		Att. alfa tot. <sup>(2)</sup>		Att. beta tot.	
	$C_{A,TOT}$ (Bq/kg <sub>camp</sub> )	S (%)	$C_{A,TOT}$ (Bq/kg <sub>camp</sub> )	S (%)		$C_{A,TOT}$ (Bq/kg <sub>campi</sub> )	S (%)	$C_{A,TOT}$ (Bq/kg <sub>camp</sub> )	S (%)	$C_{A,TOT}$ (Bq/kg <sub>camp</sub> )	S (%)
B1	8,82E-03	4,1%	4,00E-04	9,3%	7,05E-03	1,80E-02	4,2%	3,51E-02	17%	4,60E-01	10%
B2	8,52E-03	4,0%	3,92E-04	6,2%	7,15E-03	1,74E-02	4,0%	4,38E-02	14%	4,25E-01	11%
B3	7,51E-03	4,2%	3,52E-04	4,2%	7,28E-03	1,54E-02	4,2%	4,47E-02	16%	4,34E-01	11%
B4	8,07E-03	4,1%	3,76E-04	4,4%	7,24E-03	1,65E-02	4,1%	3,54E-02	18%	4,73E-01	10%
B5	7,86E-03	4,0%	3,68E-04	5,0%	7,28E-03	1,61E-02	4,0%	4,21E-02	17%	4,51E-01	11%
B6	7,97E-03	4,0%	3,76E-04	12%	7,33E-03	1,63E-02	4,2%	4,59E-02	15%	4,70E-01	10%
B7	7,77E-03	4,0%	3,60E-04	11%	7,20E-03	1,59E-02	4,2%	5,20E-02	13%	4,12E-01	12%
B8	7,46E-03	4,1%	3,52E-04	12%	7,33E-03	1,53E-02	4,3%	3,36E-02	18%	4,72E-01	10%
B9	7,81E-03	4,2%	3,60E-04	5,5%	7,17E-03	1,60E-02	4,2%	5,81E-02	12%	4,59E-01	10%
B10	8,61E-03	4,1%	4,00E-04	6,9%	7,23E-03	1,76E-02	4,2%	3,67E-02	19%	4,63E-01	10%
B11	8,53E-03	4,0%	3,92E-04	4,7%	7,14E-03	1,75E-02	4,0%	5,68E-02	13%	4,64E-01	10%
B12	8,47E-03	4,2%	4,01E-04	6,4%	7,34E-03	1,73E-02	4,3%	4,88E-02	16%	4,83E-01	12%
B13	8,37E-03	4,1%	3,84E-04	10%	7,13E-03	1,71E-02	4,2%	3,86E-02	18%	5,02E-01	10%
B14	8,74E-03	4,0%	3,98E-04	6,0%	7,11E-03	1,79E-02	4,0%	4,47E-02	16%	4,37E-01	11%
B15	8,56E-03	4,1%	3,84E-04	4,2%	6,98E-03	1,75E-02	4,1%	4,87E-02	15%	4,70E-01	13%
B16	8,17E-03	4,0%	3,52E-04	9,8%	6,70E-03	1,67E-02	4,1%	3,46E-02	20%	4,81E-01	10%
B17	8,41E-03	4,1%	4,08E-04	11%	7,54E-03	1,72E-02	4,3%	5,41E-02	13%	4,46E-01	11%
B18	8,58E-03	4,2%	3,84E-04	9,4%	6,96E-03	1,75E-02	4,3%	5,40E-02	13%	4,35E-01	10%
B19	9,60E-03	4,0%	4,64E-04	7,2%	7,51E-03	1,97E-02	4,1%	3,97E-02	18%	5,89E-01	10%
B20	7,84E-03	4,0%	3,52E-04	4,2%	6,98E-03	1,60E-02	4,0%	4,27E-02	16%	4,51E-01	11%
$m_a^{(1)}$	8,28E-03		3,83E-04		7,18E-03	1,69E-02		4,45E-02		4,64E-01	
DSC <sup>(1)</sup>	5,1E-04		2,7E-05		1,9E-04	1,1E-03		7,7E-03		3,8E-02	
DSG <sup>(1)</sup>	1,06		1,07			1,06		1,19		1,08	

(1)  $m_a$  = media aritmetica - DSC = deviazione standard campionaria - DSG = deviazione standard geometrica

### 7.1.2. Analisi dei risultati del Bianco

Premesso che, nei termini definiti dal Piano, i valori di concentrazione di attività, sia essa di Unat o di uno dei suoi isotopi costituenti, configurano pienamente un "gruppo omogeneo", si sottolinea innanzitutto che l'insieme dei dati testimonia di una situazione assolutamente nella norma per un'acqua potabile di rete. L'uranio, presente in concentrazioni comprese fra i 15 e i 20 mBq/kg<sub>camp</sub> (600-800 ng/kg<sub>camp</sub>), determina in media poco meno del 40% dell'attività alfa totale, mentre il rapporto alfa totale/beta totale si attesta mediamente attorno al 10%.

Come appare anche dai livelli piuttosto ridotti dell'attività beta totale, si può ragionevolmente desumere un contributo mediamente modesto alla radioattività complessiva da parte dei radionuclidi della catena dell'U-238 successivi al U-234 (in particolare Ra-226, Pb-210 e Po-210), così come da quelli della catena del Th-232. I valori di attività beta totale comprovano

altresì una ridotta presenza di K-40, a conferma degli esiti ottenuti per questi campioni in spettrometria gamma (nessun conteggio registrato nella regione di emissione del K-40 prossimo alla soglia di decisione).

## 7.2. Vasca in cemento di contenimento del serbatoio

In Tabella 2 sono presentati gli esiti delle misure di pre-caratterizzazione effettuate sulla componente disciolta (CD) dei 7 campioni di acqua selezionati casualmente fra i 20 prelevati nella vasca in cemento.

### 7.2.1. Risultati di misura della vasca

**Tabella 2: Acqua nella vasca in cemento di contenimento del serbatoio in acciaio - componente disciolta (CD): esiti delle determinazioni della concentrazione ( $C_{A,CD}$  in  $Bq/kg_{camp.}$ ) di uranio e dell'attività alfa totale e beta totale (K-40 equivalente) effettuate sulla dei 7 campioni utilizzati per la pre-caratterizzazione**

Camp.	$^{238}U$		$^{235}U$		$^{235}U/^{238}U$ (in massa)	Unat		Att. alfa tot.		Att. beta tot.	
	$C_{A,CD}$ ( $Bq/kg_{camp.}$ )	S (%)	$C_{A,CD}$ ( $Bq/kg_{camp.}$ )	S (%)		$C_{A,CD}$ ( $Bq/kg_{camp.}$ )	S (%)	$C_{A,CD}$ ( $Bq/kg_{camp.}$ )	S (%)	$C_{A,CD}$ ( $Bq/kg_{camp.}$ )	S (%)
V1	8,69E-03	4,2%	4,16E-04	6,4%	7,44E-03	1,78E-02	4,3%	6,49E-02	10%	2,19E+00	4,7%
V3	8,82E-03	4,2%	4,08E-04	6,7%	7,19E-03	1,80E-02	4,3%	6,58E-02	10%	1,96E+00	4,6%
V7	8,35E-03	4,1%	3,92E-04	7,4%	7,30E-03	1,71E-02	4,2%	7,30E-02	9,5%	2,14E+00	4,7%
V9	8,51E-03	4,2%	3,84E-04	7,2%	7,02E-03	1,74E-02	4,3%	9,76E-02	9,0%	2,21E+00	4,7%
V12	8,50E-03	4,0%	3,84E-04	6,2%	7,03E-03	1,74E-02	4,2%	6,03E-02	11%	2,17E+00	4,6%
V13	8,46E-03	4,2%	3,76E-04	7,1%	6,91E-03	1,73E-02	4,3%	7,81E-02	9,4%	2,03E+00	4,7%
V18	8,39E-03	4,1%	4,00E-04	6,7%	7,26E-03	1,72E-02	4,2%	6,47E-02	9,8%	2,11E+00	4,6%
$m_a^{(1)}$	8,53E-03		3,94E-04		7,16E-03	1,75E-02		7,52E-02		2,12E+00	
DSC <sup>(1)</sup>	1,7E-04		1,4E-05		1,9E-04	3,3E-04		1,35E-02		7,8E-02	
DSG <sup>(1)</sup>	1,02		1,04		1,03	1,02		1,18		1,04	

(1)  $m_a$  = media aritmetica - DSC = deviazione standard campionaria - DSG = Deviazione Standard Geometrica

### 7.2.2. Analisi dei risultati

Confrontando tali esiti con quelli di Tabella1 (risultati misura del bianco), per quanto riguarda la concentrazione di uranio (al netto delle incertezze, sempre presente in forma naturale) si rileva nella componente disciolta una sostanziale coincidenza con i corrispondenti valori osservati nel bianco, anche in termini di dispersione dei dati, ove sia l'attività alfa totale, a cui l'Unat contribuisce mediamente per il 23%, e soprattutto quella beta totale risultano invece significativamente maggiori. Se per l'attività beta totale il dato può essere in buona parte giustificato con la presenza di K-40 a livelli più elevati, per l'attività alfa totale si tratta evidentemente di un contributo più significativo da parte degli altri alfa emettitori naturali (sia della catena dell'U-238 post U-234, che del Th-232), fatti che possono essere verosimilmente imputati alla diversa origine dell'acqua e/o alla non escludibile "alterazione" delle sue condizioni radiologiche originarie occorsa nella vasca per cause quali rilascio del cemento, deposizione di pulviscolo atmosferico o infiltrazioni di acqua meteorica percolata attraverso il terreno.

Ricordando che in nessuno dei 7 campioni utilizzati per la pre-caratterizzazione è stato possibile recuperare con la filtrazione la benché minima massa di materiale utile per una

misurazione diretta, si sottolinea che, così come per la spettrometria gamma, anche le misure del filtrato su filtro (FF) dell'attività alfa totale e beta totale hanno dato esiti sempre inferiori alla MDA (dato di conteggio sostanzialmente indistinguibile da quello ottenuto con filtro pulito).

La determinazione del contributo radiologico dovuto alla componente sospesa ( $C_{A,CS}$ ) può pertanto essere desunta solo per l'uranio dal confronto della concentrazione totale ( $C_{A,TOT}$ ) misurata nel campione in forma tal quale con quella misurata nella componente disciolta ( $C_{A,CD}$ ), confronto i cui esiti sono riportati in termini relativi in Tabella 3.

**Tabella 3 : Acqua nella vasca in cemento di contenimento del serbatoio in acciaio: esiti delle determinazioni della concentrazione totale ( $C_{A,TOT}$  in Bq/kg<sub>camp</sub>) di uranio misurata nei 7 campioni utilizzati per la pre-caratterizzazione e corrispondenti valori del contributo percentuale dovuto alle componenti disciolta (CD) e sospesa (CS).**

Camp.	<sup>238</sup> U		<sup>235</sup> U		<sup>235</sup> U/ <sup>238</sup> U (in massa)	Unat		Unat CD/TOT (%)	Unat(2) CS/TOT (%)
	$C_{A,TOT}$ (Bq/kg <sub>camp</sub> )	S (%)	$C_{A,TOT}$ (Bq/kg <sub>camp</sub> )	S (%)		$C_{A,TOT}$ (Bq/kg <sub>cam</sub> )	S (%)		
V1	8,96E-03	4,2%	4,46E-04	6,4%	7,52E-03	1,84E-02	4,2%	96,9	3,1
V3	9,37E-03	4,0%	4,32E-04	8,7%	7,16E-03	1,92E-02	4,0%	93,9	6,1
V7	8,70E-03	4,1%	4,10E-04	8,4%	7,30E-03	1,78E-02	4,1%	96,0	4,0
V9	9,11E-03	4,1%	4,12E-04	7,2%	7,01E-03	1,86E-02	4,1%	93,4	6,6
V12	9,03E-03	4,2%	4,06E-04	11%	6,97E-03	1,85E-02	4,2%	94,3	5,7
V13	9,19E-03	4,0%	4,17E-04	7,1%	7,03E-03	1,88E-02	4,0%	92,1	7,9
V18	8,79E-03	4,3%	4,23E-04	8,7%	7,45E-03	1,80E-02	4,3%	97,7	2,3
$m_a^{(1)}$	9,02E-03		4,21E-04		7,23E-03	1,85E-02		94,9	5,1
DSC <sup>(1)</sup>	2,3E-04		1,4E-05		2,8E-04	4,6E-04		2,0	2,0
DSG <sup>(1)</sup>	1,03		1,03			1,03		----	----

(1)  $m_a$  = media aritmetica - DSC = deviazione standard campionaria - DSG = Deviazione Standard Geometrica

(2) Dato ottenuto come complemento a 100 del rapporto CD/TOT

L'analisi di Tabella 3 fa emergere con chiarezza il peso estremamente ridotto della componente sospesa (CS) nel computo della radioattività complessiva e nello specifico del contenuto di uranio. Nel set di campioni presi in esame il contributo di CS, da ritenersi comunque effettivo in quanto sostenuto dal test del segno e comprovato dal test di Student (significatività > 95%), varia infatti da un minimo del 2,3% a un massimo del 7,9% con valor medio del 5,1% e intervallo di confidenza al 95% [1,1% - 9,1%].

Dal confronto col bianco emerge che l'acqua della vasca ha un contenuto totale di Unat leggermente più elevato, ma statisticamente significativo e mediamente quantificabile in concentrazione intorno al 10%; in termini assoluti ciò corrisponde ad un incremento comunque di ridottissima entità (pari in media a 1,6E-06 Bq/g<sub>camp</sub>) la cui origine può essere assai verosimilmente individuata nelle stesse cause prima addotte per l'attività alfa totale e beta totale nella componente disciolta, ma anche ad un effetto spurio, allo stato non individuabile, connesso alle attività svolte nell'impianto MAGNOX



### 7.3. Serbatoio in acciaio – Setto destro

In tabella 4 sono presentati gli esiti delle misure effettuate sulla componente disciolta dei campioni selezionati per la pre-caratterizzazione dell'acqua presente nel setto destro del Serbatoio in acciaio (riferimento: osservatore con edificio ex MAGNOX alle spalle)

#### 7.3.1. Risultati di misura

Tabella 4: *Acqua nel setto destro del serbatoio in acciaio - componente disciolta (CD: esiti delle determinazioni via ICP-MS della concentrazione ( $C_{A,CD}$ ) di uranio e dell'attività alfa totale e beta totale (K-40 equivalente) nei 7 campioni di acqua utilizzati per la pre-caratterizzazione.*

Camp.	U-238		U-235		U235/U238 in massa	Unat		Att. alfa totale		Att. beta totale	
	$C_{A,CD}$	S	$C_{A,CD}$	S		$C_{A,CD}$	S	$C_{A,CD}$	S	$C_{A,CD}$	S
	(Bq/kg <sub>camp</sub> )	(%)	(Bq/kg <sub>camp</sub> )	(%)		(Bq/kg <sub>camp</sub> )	(%)	(Bq/kg <sub>camp</sub> )	(%)	(Bq/kg <sub>camp</sub> )	(%)
S1	4,27E-03	4,1%	2,00E-04	7,0%	7,26E-03	8,74E-03	4,2%	7,95E-02	9,4%	1,63E+00	5,6%
S2	3,78E-03	4,1%	1,78E-04	8,3%	6,89E-03	7,74E-03	4,2%	3,50E-02	17%	1,63E+00	5,6%
S3	3,87E-03	4,3%	1,76E-04	10%	7,05E-03	7,92E-03	4,4%	5,27E-02	13%	1,50E+00	5,7%
S4	3,96E-03	4,0%	1,85E-04	9,2%	7,40E-03	8,11E-03	4,1%	4,40E-02	15%	1,35E+00	6,1%
S5	4,22E-03	4,2%	1,92E-04	12%	7,07E-03	8,63E-03	4,4%	8,53E-02	9,2%	1,69E+00	5,6%
S9	4,34E-03	4,2%	2,08E-04	9,6%	7,45E-03	8,89E-03	4,2%	7,37E-02	10%	1,58E+00	5,7%
S10	4,50E-03	4,1%	2,00E-04	11%	6,90E-03	9,20E-03	4,1%	4,11E-02	15%	1,51E+00	5,8%
$m_a^{(1)}$	4,13E-03	---	1,91E-04	---	7,18E-03	8,46E-03	---	6,17E-02	---	1,56E+00	---
DSC <sup>(1)</sup>	2,7E-04	---	1,2E-05	---	1,8E-04	5,4E-04	---	2,04E-02	---	1,1E-01	---
DSG <sup>(1)</sup>	1,07		1,07			1,07		1,43		1,08	

(1)  $m_a$  = media aritmetica - DSC = deviazione standard campionaria - DSG = Deviazione Standard Geometrica

#### 7.3.2. Analisi dei risultati

Dall'analisi dei dati in Tabella 4 si osserva che la concentrazione di uranio (risultato sempre in forma naturale) è mediamente pari al 50% di quella riscontrata nel bianco, con una dispersione dei dati comparabile. Di contro i livelli di attività alfa totale (per cui l'uranio pesa in media circa il 14%) e di attività beta totale risultano decisamente superiori e molto più simili a quelli misurati nell'acqua della vasca, sia in termini assoluti che relativi (rapporto medio attività alfa totale/beta totale pari rispettivamente al 3,9% e al 3,5%), ciò a supporto dell'ipotesi già avanzata circa la possibile diversa origine dell'acqua utilizzata a suo tempo nell'impianto MAGNOX.

In modo del tutto analogo a quanto evidenziato per l'acqua della vasca, anche per il setto destro del serbatoio la filtrazione, come detto, non ha mai portato al recupero di un quantitativo di materiale utile per una misurazione diretta della componente sospesa (CS), né si sono evidenziati nella filtrazione su filtro (FF) livelli misurabili di attività alfa totale e beta totale o presenza di radionuclidi gamma emettitori. In questo caso anche il confronto della concentrazione totale media di uranio misurata nel campione tal quale con quella misurata nella componente disciolta non ha mostrato alcuna differenza statisticamente significativa (test di Student) tale da poter attribuire un contenuto apprezzabile di Unat alla componente sospesa, il che permette di affermare che tale componente risulta del tutto irrilevante ai fini della caratterizzazione radiologica della matrice.

## 7.4. Serbatoio in acciaio – Setto sinistro

In Tabella 5 sono presentati gli esiti delle misure effettuate sulla componente disciolta dei 7 campioni selezionati per la pre-caratterizzazione dell'acqua presente nel setto sinistro del serbatoio in acciaio.

### 7.4.1. Risultati di misura del Setto sinistro del Serbatoio – Componente disciolta

Tabella 5: Acqua nel setto sinistro del serbatoio in acciaio - componente disciolta (CD): esiti delle determinazioni della concentrazione ( $C_{A,CD}$ ) di uranio e dell'attività alfa totale e beta totale (K-40 equivalente) nei 7 campioni di acqua utilizzati per la pre-caratterizzazione.

Camp.	U-238		U-235		U235/U238 in massa	Unat		Att. alfa tot.		Att. beta tot.	
	$C_{A,CD}$ (Bq/kg <sub>camp</sub> )	S (%)	$C_{A,CD}$ (Bq/kg <sub>camp</sub> )	S (%)		$C_{A,CD}$ (Bq/kg <sub>camp</sub> )	S (%)	$C_{A,CD}$ (Bq/kg <sub>camp</sub> )	S (%)	$C_{A,CD}$ (Bq/kg <sub>camp</sub> )	S (%)
<b>S13</b>	5,27E-01	4,1%	2,43E-02	4,2%	7,15E-03	1,08E+00	4,1%	1,13E+00	5,5%	2,15E+00	4,8%
<b>S14</b>	5,05E-01	4,1%	2,35E-02	4,3%	7,22E-03	1,03E+00	4,1%	1,11E+00	5,4%	2,08E+00	4,9%
<b>S16</b>	5,16E-01	4,3%	2,40E-02	4,2%	7,21E-03	1,06E+00	4,3%	1,07E+00	5,5%	2,15E+00	4,7%
<b>S17</b>	5,13E-01	4,2%	2,39E-02	4,1%	7,23E-03	1,05E+00	4,2%	1,14E+00	5,5%	2,07E+00	4,9%
<b>S18</b>	4,78E-01	4,1%	2,20E-02	4,3%	7,14E-03	9,78E-01	4,1%	9,80E-01	5,6%	1,84E+00	5,2%
<b>S19</b>	4,51E-01	4,2%	2,08E-02	4,2%	7,15E-03	9,22E-01	4,2%	1,02E+00	5,5%	1,93E+00	5,0%
<b>S20</b>	4,55E-01	4,1%	2,11E-02	4,3%	7,19E-03	9,32E-01	4,1%	1,06E+00	5,5%	1,97E+00	4,9%
<b>m<sub>a</sub><sup>(1)</sup></b>	4,92E-01	---	2,28E-02	---	7,18E-03	1,01E+00	---	1,07E+00	---	2,03E+00	---
<b>DSC<sup>(1)</sup></b>	3,1E-02	---	1,5E-03	---	3,7E-05	6,3E-02	---	5,9E-02	---	1,2E-01	---
<b>DSG<sup>(1)</sup></b>	1,07		1,07			1,07		1,06		1,06	

(1)  $m_a$  = media aritmetica - DSC = deviazione standard campionaria - DSG = Deviazione Standard Geometrica

### 7.4.2. Analisi componente disciolta

Dall'analisi dei risultati appare innanzitutto evidente come la concentrazione di Unat si attesti costantemente su livelli assai superiori (da 50 a 100 volte) rispetto sia al bianco che alle altre acque considerate.

Confrontando questo dato con quanto ottenuto per l'attività alfa totale si rileva che Unat contribuisce ad essa mediamente per oltre il 93%, ove, al netto delle incertezze di misura, il rimanente 6-7% è di fatto corrispondente al livello di attività alfa totale riscontrato in media nei campioni del setto destro. Sempre rispetto ai campioni del setto destro, si rileva un incremento medio pari a circa 0,5 Bq/kg<sub>camp</sub> per quanto attiene l'attività beta totale, dato peraltro in linea con la più che verosimile presenza aggiuntiva di Th 234 e Pa-234m prodotta dal decadimento del U-238.

Tutto ciò considerato, ne deriva che nella componente disciolta dell'acqua del setto sinistro:

- è presente uranio naturale con concentrazione media dell'ordine di 1 Bq/kg<sub>camp</sub>, livello che nelle condizioni date configura una contaminazione da ricondurre in modo pressoché certo ad attività antropiche;
- non si rileva presenza di contaminazione significativa da altri radionuclidi artificiali o naturali, ivi inclusi i figli dell'U-238 successivi al U-234, fatto che, sulla scorta delle informazioni disponibili, porta ad individuare l'origine della contaminazione da Unat nel combustibile nucleare oggetto di lavorazione nell'impianto MAGNOX;

- l'acqua presente nel setto destro del serbatoio costituisce assai verosimilmente il bianco più corretto della matrice acqua presente nei vari comparti dell'ex impianto MAGNOX.

### 7.4.3. Risultati di misura del Setto sinistro del Serbatoio – Componente sospesa

Per quanto attiene la componente sospesa, tenuto conto del più volte citato riscontro in 3 campioni (S18, S19 e S20) di un filtrato non solo misurabile in termini di massa, ma anche separabile dal filtro in quantità sufficiente per l'esecuzione diretta delle misurazioni, ai fini della pre-caratterizzazione si è proceduto, come già anticipato, seguendo la presente sequenza di azioni:

- esecuzione su sull'intero set di 7 campioni della procedura generale adottata per la componente sospesa per tutti i 21 campioni indipendentemente dall'esito della filtrazione;
- esecuzione sul materiale raccolto con la filtrazione (MF) di S18, S19 e S20 della misurazione diretta della concentrazione specifica ( $\hat{C}_{A, MF}$  in Bq/g<sub>MF</sub>) di uranio nonché, per S18, unico per il quale la massa di MF risultava sufficiente, di quella dell'attività alfa totale e beta totale.

In modo del tutto analogo a quanto effettuato per l'acqua della vasca, in Tabella 6 vengono innanzitutto presentati i valori della concentrazione totale ( $C_{A, TOT}$ ) di uranio misurata in fase preliminare nei 7 campioni in forma tal quale e la ripartizione, espressa in termini percentuali, della componente disciolta (CD/TOT), ottenuta per confronto con i corrispondenti dati di misura di Tabella 5, e di quella sospesa (CS/TOT), calcolata come complemento a 1 del rapporto CD/TOT.

**Tabella 6: Acqua nel setto sinistro del serbatoio in acciaio: esiti delle determinazioni della concentrazione totale ( $C_{A, TOT}$ ) di uranio ottenuta misurando i campioni in forma tal quale, e corrispondenti valori del contributo percentuale dovuto alla componente disciolta(CD) e sospesa (CS) per i 7 campioni di acqua utilizzati per la pre-caratterizzazione.**

Camp.	<sup>238</sup> U		<sup>235</sup> U		<sup>235</sup> U/ <sup>238</sup> U (in massa)	Unat		Unat CD/TOT (%)	Unat <sup>(2)</sup> CS/TOT (%)
	$C_{A, TOT}$ (Bq/kg <sub>camp</sub> )	S (%)	$C_{A, TOT}$ (Bq/kg <sub>camp</sub> )	S (%)		$C_{A, TOT}$ (Bq/kg <sub>cam</sub> )	S (%)		
<b>S13</b>	5,98E-01	4,2%	2,82E-02	4,2%	7,31E-03	1,22E+00	4,2%	88,1	11,9
<b>S14</b>	5,88E-01	4,0%	2,73E-02	4,3%	7,20E-03	1,20E+00	4,0%	85,9	14,1
<b>S16</b>	5,97E-01	4,1%	2,80E-02	4,2%	7,27E-03	1,22E+00	4,1%	86,4	13,6
<b>S17</b>	5,96E-01	4,1%	2,74E-02	4,2%	7,13E-03	1,22E+00	4,1%	86,1	13,9
<b>S18</b>	7,08E-01	4,2%	3,27E-02	4,1%	7,16E-03	1,45E+00	4,2%	67,5	32,5
<b>S19</b>	5,77E-01	4,0%	2,66E-02	4,3%	7,195E-03	1,18E+00	4,0%	78,2	21,8
<b>S20</b>	5,84E-01	4,3%	2,75E-02	4,3%	7,30E-03	1,20E+00	4,3%	77,9	22,1
<b>m<sub>a</sub><sup>(1)</sup></b>	6,07E-01		2,82E-02		7,22E-03	1,24E+00		81,4	18,6
<b>DSC<sup>(1)</sup></b>	4,5E-02		2,0E-03		7,7E-05	9,3E-02		7,4	7,4
<b>DSG<sup>(1)</sup></b>	1,07		1,07			1,07		---	---

(1) m<sub>a</sub> = media aritmetica - DSC = deviazione standard campionaria - DSG = Deviazione Standard Geometrica

(2) Dato ottenuto come complemento a 100 del rapporto CD/TOT

#### 7.4.4. Analisi componente sospesa

Dall'analisi dei dati in Tabella 6 emerge innanzitutto, rispetto alle altre acque e a fronte di valori di concentrazione nella componente disciolta sostanzialmente omogenei, il peso decisamente maggiore rivestito in questa matrice dalla componente sospesa nella determinazione della concentrazione complessiva di uranio, così come l'evidente differenza sussistente in tal senso fra i campioni con massa del filtrato determinabile (S18, S19 e S20) e non (S13, S14, S16 e S17). Se per questi ultimi, pur nella scarsa numerosità dei dati, appare infatti emergere una buona uniformità del rapporto CS/TOT (compresa fra 11,9% e 14,1%), per i primi si osservano invece valori decisamente più elevati in un quadro di variabilità più accentuata.

La cosa risulta ancor più evidente osservando i dati di Tabella 7 ove, con i valori di concentrazione di Unat nella componente sospesa ( $C_{A,CS}$ ) ricavati dalle misure sull'acqua traducendo in termini assoluti i rapporti CS/TOT di Tabella 6, sono riportati i dati di concentrazione ( $C_{A,FF}$ ) dell'attività alfa totale e beta totale ottenuti mediante misura con contatore proporzionale del filtrato su filtro (anche in questo caso non vengono riportati gli esiti delle misure in spettrometria gamma in quanto sempre inferiori alla MDA).

**Tabella 7: Acqua nel setto sinistro del serbatoio in acciaio: valori della concentrazione di uranio nella componente sospesa ( $C_{A,CS}$ ) stimati sulla base delle misure sull'acqua pre e post filtrazione e valori misurati della concentrazione di attività alfa totale e beta totale (K-40 equivalente) del filtrato su filtro ( $C_{A,FF}$ ) dei 7 campioni di acqua utilizzati per la pre-caratterizzazione.**

Camp.	Unat		Attività alfa totale		Attività beta totale		Unat/alfa totale $C_{A,CS}/C_{A,FF}$ (%)	Alfa tot./beta tot. $C_{A,F}/C_{A,FF}$
	$C_{A,CS}$ (Bq/kg <sub>camp</sub> )	S <sup>(2)</sup> (%)	$C_{A,FF}$ (Bq/kg <sub>camp</sub> )	S (%)	$C_{A,FF}$ (Bq/kg <sub>cam</sub> )	S (%)		
S13	1,46E-01	16%	1,82E-01	14%	1,32E-01	16%	80,2	1,38
S14	1,70E-01	13%	1,86E-01	15%	1,45E-01	15%	91,4	1,28
S16	1,66E-01	14%	1,95E-01	16%	1,53E-01	15%	85,1	1,27
S17	1,71E-01	14%	1,98E-01	13%	1,34E-01	16%	86,4	1,48
S18	4,42E-01	5,4%	4,27E+00	5,4%	2,03E+00	5,7%	10,4	2,10
S19	2,58E-01	11%	4,96E-01	8,7%	2,68E-01	12%	52,0	1,85
S20	2,64E-01	8,3%	5,25E-01	8,5%	3,07E-01	11%	50,3	1,71
$m_a^{(1)}$	2,31E-01	---	8,64E-01	---	4,53E-01	---	65,1	1,58
DSC <sup>(1)</sup>	1,00E-01	---	1,51E+00	---	7,00E-01	---	29,3	0,32
DSG <sup>(1)</sup>	1,43	---	3,16	---	2,91	---	---	---

(1)  $m_a$  = media aritmetica - DSC = deviazione standard campionaria - DSG = Deviazione Standard Geometrica

(2) Valori calcolati componendo l'incertezza relativa associata al fattore di conversione del conteggio in massa impiegato per le misure ICPMS e quella associata al rapporto CD/TOT (tabella 6), quest'ultima moltiplicata per il fattore di scala (CD/TOT)/(CS/CTOT). L'incertezza del rapporto CD/TOT è stata valutata sulla base delle incertezze relative dei dati di conteggio (in ppt) ottenuti con ICPMS per la misura della concentrazione di uranio rispettivamente nella componente disciolta (CD) e nel campione tal quale (TOT).

Osservando che la dispersione dei dati sia dell'attività alfa totale che di quella beta totale determina valori di DSG tali da non poter classificare il set di campioni come appartenenti a un "gruppo omogeneo", le incongruenze che emergono confrontando i dati inerenti i campioni con filtrato quantificabile e non, in particolare per quanto attiene il rapporto  $C_{A,CS}/C_{A,FF}$  fra il dato di concentrazione di Unat nella componente sospesa determinata da misure sull'acqua e l'attività alfa totale misurata su filtro (vedi in particolare il campione 18), sollevano più di un dubbio sulla correttezza dell'impiego della filtrazione come metodo di

prelievo della componente sospesa nel caso di campioni caratterizzati dalla presenza di un deposito quantitativamente apprezzabile.

Un elemento di chiarezza su questo problema e sulle incongruenze riscontrate è offerta dall'analisi di Tabella 8, ove sono riportati gli esiti delle misure eseguite direttamente sul materiale MF dei campioni S18, S19 S20, e soprattutto di Tabella 9 ove tali valori vengono tradotti in termini di concentrazione di attività nella componente sospesa ( $C_{A,CS}$ ) del campione, nell'ipotesi  $CS \equiv MF$ .

**Tabella 8: Setto sinistro del serbatoio in acciaio: esiti delle determinazioni della concentrazione specifica nel materiale filtrato ( $\hat{C}_{A,MF}$ ) di uranio, dell'attività alfa totale e dell'attività beta totale per i 3 campioni di acqua utilizzati per la pre-caratterizzazione in cui la filtrazione ha permesso di estrarre un quantitativo di materiale quantificabile in massa.**

Camp.	U-238		U-235		U235/U238 In massa	Unat		Att. alfa totale		Att. beta totale	
	$\hat{C}_{A,MF}$	S	$\hat{C}_{A,MF}$	S		$\hat{C}_{A,MF}$	S	$\hat{C}_{A,MF}$	S	$\hat{C}_{A,MF}$	S
	(Bq/g <sub>MF</sub> )	(%)	(Bq/g <sub>MF</sub> )	(%)		(Bq/g <sub>MF</sub> )	(%)	(Bq/g <sub>MF</sub> )	(%)	(Bq/g <sub>MF</sub> )	(%)
S18	2.00E+01	4,1%	9,27E-02	4,4%	7,20E-03	4,10E+01	4,1%	4.82E+01	11%	1,88E+01	10%
S19	1,73E+01	4,2%	8,15E-02	4,3%	7,34E-03	3,58E+01	4,2%	ND <sup>(2)</sup>	---	ND	---
S20	1,76E+01	4,1%	8,27E-02	4,2%	7,31E-03	3,60E+01	4,1%	ND	---	ND	---
$m_a^{(1)}$	1,83E+01	---	8,57E-02	---	7,29E-03	3,75E+01	---	---	---	---	---
DSC <sup>(1)</sup>	8,2%	---	7,2%	---	1,0%	8,2%	---	---	---	---	---

(1)  $m_a$  = media aritmetica - DSC = deviazione standard campionaria

(2) Non Determinata


**Tabella 9: Setto sinistro del serbatoio in acciaio: valori calcolati della concentrazione di attività ( $C_{A,CS=MF}$ ) di uranio, dell'attività alfa totale e dell'attività beta totale nell'ipotesi che la componente sospesa sia identificabile col materiale filtrato ( $CS=MF$ ).**

ID camp.	Massa campione (kg)	MF nel campione <sup>(1)</sup> (g <sub>MF</sub> /kg <sub>camp</sub> )	Unat		Att. alfa totale		Att. beta totale	
			$C_{A,CS=MF}$	S	$C_{A,CS=MF}$	S	$C_{A,CS=MF}$	S
			(Bq/kg <sub>camp</sub> )	(%)	(Bq/kg <sub>camp</sub> )	(%)	(Bq/kg <sub>camp</sub> )	(%)
S18	0,98	1,15E-01	4,72E+00	4,1%	5,24E+00	11%	2,16E+00	10%
S19	1,01	1,09E-02	3,94E-01	4,2%	ND	---	ND	---
S20	1,03	1,30E-02	4,68E-01	4,1%	ND	---	ND	---
$m_a$			1,87E+00					
DSC			133%					

(1) Massa misurata del materiale estratto con la filtrazione(MF) normalizzata a 1 kg di campione

Si rimarca innanzitutto che la rilevazione di una concentrazione specifica di Unat nel materiale filtrato, risultata compresa fra 35 e 40 Bq/g<sub>MF</sub>, attesta inequivocabilmente la presenza di materiale classificabile come rifiuto radioattivo depositato sul fondo del setto sinistro del serbatoio, confermando per altro quanto desunto dalle analisi eseguite sulla componente disciolta circa la contaminazione da Unat e la sua origine antropica.

Dall'analisi dei dati di tabella 7 e tabella 9 concernenti in particolare la concentrazione di Unat nella componente sospesa si rileva che per i 3 campioni con presenza significativa (misurabile) di deposito l'ipotesi  $CS=MF$  porta a valori sempre più incoerenti con quanto ricavato dalle misure con l'acqua in ragione della quantità di materiale filtrato. La cosa

	Istituto di Radioprotezione	IRP-P000-011	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 20	di 23
---	-----------------------------	--------------	-----------	---------------	------------	----------

diventa ancor meno giustificabile considerando l'intero set di 5 campioni prelevati sul fondo del serbatoio. L'ipotesi di comprendere nella componente sospesa anche il deposito porterebbe infatti ad avere campioni con concentrazione totale di uranio sostanzialmente omogenei nella componente disciolta, ma estremamente differenziati in quella sospesa e quindi anche in quella totale. In termini numerici si passerebbe dal valore minimo di 1.2 Bq/kg<sub>camp</sub> dei campioni S16 e S17 (privi di deposito) agli oltre 5,5 Bq/kg<sub>camp</sub> del campione S18, con una variazione di quasi il 400% a fronte del fatto che si tratta di campioni che, per ragioni legate alla conformazione del bocchettone di accesso del serbatoio, sono stati di fatto prelevati tutti nello stesso punto e alla stessa distanza dal fondo, in successione a partire da S16 fino a S20.

Sulla base di tali elementi è inevitabile dedurre che il materiale rilevato come deposito alla base dei contenitori dei campioni S18, S19 e S20 non può essere considerato parte dei campioni stessi, quanto invece una matrice "altra", prelevata contemporaneamente all'acqua del serbatoio a seguito di un artefatto verosimilmente ascrivibile o ad una fortuita movimentazione del tubo di aspirazione, che a partire dal campione S18 ha portato ad eseguire i prelievi pressoché a contatto col fondo del serbatoio, o ad un progressivo accumulo di materiale in corrispondenza del punto di prelievo, creatosi proprio a seguito delle operazioni di aspirazione e pompaggio dell'acqua.

Tutto ciò configura la presenza un nuovo gruppo omogeneo "sedimento del serbatoio sinistro" che, tenuto conto del livello di concentrazione di uranio che la caratterizza, dovrà essere verosimilmente considerato nelle future azioni.

A latere di queste osservazioni è necessario sottolineare che la difficoltà intrinseca nello stabilire un criterio oggettivo d'individuazione della componente sospesa in un campione liquido in cui sia presente materiale depositato nasce in realtà già all'atto del campionamento, protraendosi poi in laboratorio, a seguito di azioni anche banali che possano determinare alterazione dello stato indisturbato del campione, con induzione di fenomeni di ri-sospensione più o meno temporanea di detto materiale depositato.

Tale fatto risulta ancor più significativo quando si operi, come appare nel caso qui analizzato, in presenza di un deposito contenente particolato ad elevata mobilità e granulometria fine o finissima, la cui ri-sedimentazione può comportare tempi anche molto lunghi, con possibili rilevanti ripercussioni sullo stesso stato radiologico della componente disciolta.


In tali situazioni, come testé testimoniato, la semplice filtrazione risulta una procedura non idonea per la raccolta e la separazione della componente sospesa, ove è invece preferibile, ove possibile, optare per l'impegno di aliquote di liquido opportunamente prelevate in modo da evitare qualsiasi movimentazione del "fondo".

#### ***7.4.5. Riassunto delle informazioni ricavate per il liquido presente nel setto sinistro del serbatoio***

Per quanto attiene il liquido (acqua) presente nel setto sinistro del serbatoio si può in conclusione affermare che:

- è presente una contaminazione da uranio in forma naturale (Unat);
- la contaminazione riscontrata è sicuramente di origine antropica ed è da attribuirsi più che verosimilmente alle attività svolte presso l'impianto Magnox;
- non è presente contaminazione da altri radionuclidi artificiali o naturali, ivi inclusi i figli dell'U-238 successivi al U-234;
- sulla base di quanto rivelato nei 7 campioni selezionati per la pre-caratterizzazione la concentrazione totale di Unat si attesta nell'intervallo 1,18-1,45 Bq/kg<sub>camp</sub> (media = 1,24 Bq/kg<sub>camp</sub>, deviazione standard campionaria = 0.09 Bq/kg<sub>camp</sub>);



	Istituto di Radioprotezione	IRP-P000-011	Rev. 0	Distrib. L	Pag. di 21 23
---	-----------------------------	--------------	-----------	---------------	------------------

- il contributo della componente disciolta alla concentrazione totale è pari in media all'81,4% (in termini assoluti circa 1 Bq/kg<sub>camp</sub>);
- per quanto attiene la componente sospesa si rileva una situazione non univocamente definita in relazione alla presenza di una significativa quantità di materiale depositato in 3 dei 7 campioni, fatto che testimonia verosimilmente della presenza di sedimento sul fondo del serbatoio;
- nei 4 campioni in cui non è presente deposito visibile, la concentrazione di uranio nella componente sospesa, determinata per confronto fra la concentrazione totale misurata nel campione in forma tal quale e dopo sua filtrazione, è risultata compresa tra l'12% e il 15% di quella totale (in termini assoluti da 0,14 a 0,17 Bq/kg<sub>camp</sub>);
- la stessa procedura applicata sui 3 campioni con significativa presenza di deposito porta a un contributo variabile fra il 22% e il 33% della concentrazione totale (in termini assoluti da 0,26 a 0,44 Bq/kg<sub>camp</sub>);
- serie di analisi comparative appositamente effettuate portano a concludere che il materiale depositato non può essere classificato come facente parte della componente sospesa, ma costituisce una matrice a sè stante che dovrà essere oggetto di valutazione nelle future azioni come ulteriore gruppo omogeneo;
- è tuttavia più che verosimile ipotizzare che esso, in ragione di azioni meccaniche, ma anche di particolari condizioni al contorno, che ne causino la ri-sospensione, possa determinare variazioni più o meno temporanee e significative dello stato radiologico della matrice liquida sovrastante;
- le analisi effettuate hanno permesso di quantificare in circa 40 Bq/g la concentrazione in attività di Unat presente in detto materiale depositato (corrispondente a una concentrazione in massa approssimativamente pari allo 0,15%);
- in termini di concentrazione il dato configura la classificazione del materiale, e quindi del sedimento sul fondo del serbatoio, come rifiuto radioattivo, anche se di massa e attività complessive al momento non quantificabili.

## 8. RIASSUNTO DEI RISULTATI E DEFINIZIONE DEL NUMERO MINIMO N/2 DI CAMPIONI NECESSARI PER LA FASE DI CARATTERIZZAZIONE

In Tabella 10 vengono riassunti i dati peculiari inerenti il contenuto di uranio naturale nelle matrici oggetto della pre-caratterizzazione e nel campione di confronto (bianco). Con essi viene altresì riportato per ciascuna delle 3 matrici in esame (acqua della vasca, acqua del setto destro del serbatoio e acqua del setto sinistro del serbatoio) il numero minimo di campioni, N/2, da utilizzarsi nella successiva fase di caratterizzazione ricavato, in via estremamente conservativa, adottando come limite di allontanamento una concentrazione di  $U_{nat}$  nell'acqua che per un'ingestione di 2 litri/giorno determina una dose efficace impegnata annua di 10  $\mu$ Sv.

**Tabella 10: Pre-caratterizzazione delle matrici liquide delle componenti residue dell'ex impianto MAGNOX: dati riassuntivi inerenti la concentrazione di uranio naturale nei set di campioni analizzati e stima del numero minimo di campioni da utilizzare nella successiva fase di caratterizzazione.**

Matrice	Fase <sup>(1)</sup>	camp. usati n.	Uranio naturale					$C_{A,CD\%}$ <sup>(3)</sup> media (%)	$C_{A,CS\%}$ <sup>(4)</sup> media (%)	N/2 <sup>(5)</sup>
			min (Bq/kg <sub>camp</sub> )	max (Bq/kg <sub>camp</sub> )	$C_{A,TOT}$ <sup>(2)</sup> M (Bq/kg <sub>camp</sub> )	DSC (%)	DSG			
Bianco - acqua rete Trisaia	C.	20	1,53E-02	1,97E-02	1,69E-02	6,5%	1,06	$\cong$ 100%	$\cong$ 0%	-----
Acqua vasca in cemento	P.C.	7	1,80E-02	1,92E-02	1,85E-02	2,5%	1,03	94,9%	5,1%	18
Acqua serbatoio setto destro	P.C.	7	7,74E-03	9,20E-03	8,46E-03	6,4%	1,07	$\cong$ 100%	$\cong$ 0%	18
acqua serbatoio setto sinistro	P.C.	7	1,18E+00	1,45E+00	1,24E+00	7,5%	1,07	81,4%	18,6%	19

(1) C. = Caratterizzazione - P.C. = pre-caratterizzazione

(2)  $C_{A,TOT}$  = Concentrazione di attività totale di  $U_{nat}$  - M = media aritmetica - DSC = deviazione standard campionaria - DSG = deviazione standard geometrica -

(3)  $C_{A,CD\%}$  = contributo percentuale della componente disciolta alla concentrazione totale


(4)  $C_{A,CS\%}$  = contributo percentuale della componente sospesa alla concentrazione totale

(5) N/2 = numero minimo di campioni da analizzare per la caratterizzazione (da associare a un pari numero di campioni di bianco)

Tenuto conto che la procedura di caratterizzazione riportata nel Piano preventivava la raccolta di n. 20 campioni per ogni gruppo omogeneo di liquidi, i due inconvenienti occorsi all'atto del primo campionamento e precedentemente ricordati, ossia la suddivisione del serbatoio con necessità di costituzione di due distinti gruppi omogenei e la inutilizzabilità di 4 campioni, avevano reso indispensabile il prelievo supplementare di ulteriori 24 campioni di acqua così ripartiti:

- n. 12 campioni dal setto destro del serbatoio, di cui n. 5 a 35 cm di profondità dalla superficie e n. 7 a 1 cm dal fondo,
- n. 12 campioni dal setto sinistro del serbatoio, di cui n. 7 a 35 cm di profondità dalla superficie e n. 5 a 1 cm dal fondo.

Questo secondo campionamento, eseguito da Nucleco in data 20 luglio 2018, ha permesso di ripristinare un numero di campioni disponibili per le analisi che, alla luce di quanto riportato in Tabella 10 circa il parametro N/2, risulta idoneo per il completamento della fase di caratterizzazione complessiva finale secondo i criteri prestabiliti.

	Istituto di Radioprotezione	IRP-P000-011	<b>Rev.</b> 0	<b>Distrib.</b> L	<b>Pag.</b> 23	<b>di</b> 23
---	-----------------------------	--------------	------------------	----------------------	-------------------	-----------------

## 9. RIFERIMENTI

---

<sup>1</sup> Piano di Caratterizzazione Radiologica delle parti residue in area ENEA dell'impianto CO.NU-Magnox – Fase 1":  
Rapporto IRP-P000-010 , rev. 0, 14/3/2018.