

Laura Giordani¹, Sandro Meloni(†)², Massimo Oddone²

PRESENZA DI RADIONUCLIDI NATURALI ED ARTIFICIALI NELL'AREA BOSCO NEGRI - 2: RISULTATI DELLE INDAGINI RADIOMETRICHE SUI CAMPIONI DI SUOLO, SERIE ^{238}U e ^{232}Th ; ^{40}K e ^{137}Cs

¹Dipartimento di Chimica Generale, Università degli Studi di Pavia, Via Taramelli 12 I-27100 Pavia.
e-mail: giordani.laura@tiscali.it

²Istituto C.N.R. per l'Energetica e le Interfasi, Dipartimento di Chimica Generale – Università degli Studi di Pavia
e-mail: massimo.oddone@unipv.it

Abstract

Presence of natural and artificial radionuclides in the Siro Negri Forest - 2: Results of the radiometric evaluation on the soil samples, ^{238}U and ^{232}Th decay chains; ^{40}K and ^{137}Cs . In the second part of this research we have studied the natural and artificial radioactivity in the soils of the Siro Negri forest. The analysis with high resolution gamma spectrometry have allowed the determination of:

- specific activity of the radionuclides of the two natural series of the Uranium (^{234}Th , $^{234\text{m}}\text{Pa}$, ^{214}Pb and ^{214}Bi) and of the Thorium (^{228}Ac and ^{212}Pb) from which we have calculated the specific activity of the ^{238}U , in the first case, and of the ^{232}Th , in the second case, at the different depth in the three sampling stations; also we have verified the secular equilibrium, demonstration that the soil profile is undisturbed;
- specific activity of the ^{40}K , an other primordial radionuclide;
- specific activity of the ^{137}Cs , the only artificial radionuclide, introduced in the environment from the accident in the nuclear power reactor at Chernobyl, in the 1986.

The secular equilibrium for the Uranium series has been verified through the calculation of some parameters (relationship of mean activities of ^{214}Bi and ^{234}Th , correlation between $^{234}\text{Th} - ^{214}\text{Pb}$ and $^{234}\text{Th} - ^{214}\text{Bi}$, presence of the peak at 1001 keV of the $^{234\text{m}}\text{Pa}$). The mean activity for the gamma decay products (^{214}Pb and ^{214}Bi) is about 4.0 ± 6.0 Bq. In the third station, located in South West part of the forest (station C), we have found the inferior value, only 3.0 Bq, at 45 cm depth (layer S). The mean specific activity of the ^{238}U are comprised between about 20 and 60 Bq kg^{-1} with more significant variation in the south pedological profile of the forest; moreover we have found that the distribution of the activity of ^{238}U , in the forest soil's, depend from the texture (in particular, from the percentage of clay and silt) and the cation exchange capacity values.

Also the secular equilibrium for the Thorium series have been verified using the comparison of mean activities of the daughters, ^{228}Ac and ^{212}Pb (relationship and correlation coefficient); the decay products activity is comprised between 4.0 ± 6.0 Bq, with minimum value about 3.0 Bq, in station C, at the depth of the S layer. The mean specific activity of ^{232}Th (calculated from the activity of the ^{228}Ac) is comprised between 30 and 50 Bq/kg for stations A, B and between 20 and 60 for the station C. Also the specific activity of this radioisotope depend of the chemical and physical characteristics of soil, in particular we have determined that depends from the distribution of clay and silt and from the cation exchange capacity values. Percentage of water in soil solution (humidity %) is other important characteristic of soils that influences the specific activity of the ^{232}Th .

The results of the ^{40}K have been obtained using a characteristic peak of this radionuclide for gamma spectrometry (at 1460 keV energy). The mean specific activity, of this radionuclide, is about 683 Bq kg^{-1} in the station A, 656 Bq kg^{-1} for the station B and 720 Bq/kg in the station C. Also, the migration and distribution of this radioisotope is influenced from the presence of river's water and for this reason the specific activity in the station located in the North East part of the forest (A) and in the South West part of the forest (C) is the highest. In the pedological profile of the three stations the lowest concentration measured is 600 Bq kg^{-1} (at 70 cm depth, in the layer S, for the station B) and the highest is 900 Bq kg^{-1} (at 90 cm depth in station C). We have found that also the distribution of the ^{40}K , in soil layer, is influenced from the humidity and cation exchange capacity. For this reason we assert that the distribution and migration of natural radionuclide (^{238}U and his decay products, ^{232}Th and his products and ^{40}K) varies in function of two soils characteristics: the water content (humidity) and cation exchange capacity value, in the soil profile.

The measurements of the activity for the ^{137}Cs have been carried out using the characteristic gamma peak of this radionuclide, at 661,7 keV. The maximum of the activity for this radionuclide is localized in upper layer between 10 and 15 cm depth and the specific activity in this layer is 22 Bq kg^{-1} for station A and about 17 Bq kg^{-1} for station B and C while the other depths the specific activity, in each stations, is less than 1 Bq kg^{-1} .

It depends on the fact that in the superficial soil layers of the forest there's the highest contents of organic matter (3%) and acid pH. Caesium adsorption on soil and soil constituents is an ion exchange phenomenon that it can be modified if the soil's organic matter is associated with clay minerals. The acid reaction of soils is an important parameter to be observed: in fact, acid pH favours the development of fungi, accumulators of ^{137}Cs . Also, some species of fungi not only accumulate radiocaesium efficiently but also have slow turnover rate for this element, thus forming the major radiocaesium pool in the soil.

Key words: Caesium-137, radionuclides migration, soil, Thorium-232, Uranium-238.

Riassunto

Nella seconda parte di questo lavoro sono state eseguite le indagini radiometriche per la valutazione della radioattività naturale ed artificiale nei campioni di suolo provenienti dal Bosco Siro Negri.

Le analisi mediante spettrometria gamma ad alta risoluzione hanno permesso la determinazione di:

- attività specifiche di radionuclidi delle due serie naturali dell'Uranio (^{234}Th , $^{234\text{m}}\text{Pa}$, ^{214}Pb e ^{214}Bi) e del Torio (^{228}Ac e ^{212}Pb) dalle quali è stata calcolata l'attività specifica del capostipite, ^{238}U nel primo caso e ^{232}Th nel secondo, alle diverse profondità nelle tre stazioni di campionamento; inoltre, è stato verificato l'equilibrio secolare, indice di condizioni indisturbate, dal punto di vista antropico, per il contesto boschivo;

- attività specifica del ^{40}K , anch'esso di origine primordiale;
- attività specifica di ^{137}Cs , unico radionuclide artificiale, introdotto nell'ambiente in grande quantità a seguito dell'incidente alla centrale nucleare di Chernobyl nel 1986.

Per la serie dell'Uranio l'equilibrio secolare è stato verificato mediante il calcolo di alcuni parametri (rapporti delle attività medie di ^{214}Bi e ^{234}Th , correlazioni tra $^{234}\text{Th} - ^{214}\text{Pb}$ e $^{234}\text{Th} - ^{214}\text{Bi}$, presenza del picco a 1001 keV del $^{234\text{m}}\text{Pa}$). Le attività specifiche medie del capostipite, ^{238}U , sono risultate comprese tra circa 20 e 60 Bq/kg con variazioni più significative lungo il profilo pedologico dello scavo sud (zona depressa confinante con il canale Mangialochino). L'andamento delle attività specifiche per l' ^{238}U è influenzato dalla tessitura e dalla CSC del suolo.

Anche per la serie del Torio è stato verificato l'equilibrio secolare utilizzando il confronto tra le attività medie dei figli ^{228}Ac e ^{212}Pb (il rapporto ed il coefficiente di correlazione). Le attività specifiche del ^{232}Th sono state calcolate (successivamente alla verifica dell'equilibrio secolare) utilizzando le attività del ^{228}Ac ed hanno valori compresi tra 20 e 65 Bq/kg. Il massimo ed il minimo sono stati raggiunti a profondità differenti (il primo a 45 cm di profondità ed il secondo a 90 cm) nello scavo sud mentre si osservano variazioni meno significative per i campioni degli altri due scavi.

Procedendo nel profilo pedologico, si osserva una relazione tra le attività specifiche del ^{228}Ac (^{232}Th) ed alcune caratteristiche chimico-fisiche come la tessitura (percentuali di argilla e limo), l'umidità e la CSC del suolo.

Per il ^{40}K le attività specifiche sono risultate comprese tra 600 e 900 Bq/kg, in aumento progressivo dallo scavo nord allo scavo sud, nel quale le attività specifiche più elevate riguardano i campioni prelevati negli strati più profondi. Le migrazioni e diffusioni di tale radionuclide sono influenzate dall'umidità, dalla CSC e dall'azione di trasporto esercitata dalle acque del fiume e di falda.

Infine, la determinazione dell'attività specifica del ^{137}Cs , ci permette di affermare che la distribuzione di questo radionuclide riguarda lo strato più superficiale del suolo come conseguenza sia delle caratteristiche chimico-fisiche (tessitura, quantità di sostanza organica e pH) sia della copertura vegetale e, in particolar modo, della presenza di specie fungine in grado di accumulare il radiocesio. Per quanto riguarda le caratteristiche chimico-fisiche del suolo, i risultati della prima parte di questo lavoro, permettono di affermare che entro i primi 10-15 cm dalla superficie è concentrata la maggiore quantità di sostanza organica (circa il 3%) mentre, pur non essendo la percentuale di argilla molto elevata, l'associazione argilla-sostanza organica è in grado di favorire l'immobilizzazione del ^{137}Cs negli strati superficiali. Inoltre, a questa profondità, il suolo mostra reazione acida (pH circa 4,5) ambiente favorevole per lo sviluppo di microflora fungina.

Parole chiave: Cesio-137, migrazione di radionuclidi, suolo, Torio-232, Uranio-238.

1. Introduzione

L'obiettivo della seconda parte di questo lavoro è la valutazione dell'andamento della radioattività naturale ed artificiale nel contesto boschivo sottoposto ad indagine.

La radioattività naturale dipende da alcuni radionuclidi generati durante la formazione del Sistema Solare che, a causa del loro elevato tempo di dimezzamento (tempo nel quale il numero di atomi radioattivi si dimezza) non sono ancora decaduti nella loro forma stabile, ma persistono nell'ambiente nelle tre serie (fig. 1) dell'Uranio (il cui capostipite è l'isotopo ^{238}U), del Torio (capostipite ^{232}Th) e dell'Attinio (capostipite ^{235}U) con i rispettivi prodotti di decadimento (figli della serie radioattiva) anch'essi in grado di decadere attraverso decadimenti α e β successivi, ai quali sono associate emissioni di radiazioni gamma, sino al raggiungimento di una forma stabile (^{208}Pb per ^{238}U e ^{206}Pb per ^{232}Th).

Per le indagini mediante spettrometria gamma sono stati utilizzati: ^{234}Th , $^{234\text{m}}\text{Pa}$, il ^{214}Pb ed il ^{214}Bi della serie dell'Uranio e l' ^{228}Ac , ^{212}Pb della serie del Torio. Per entrambe le famiglie, sono state determinate le concentrazioni in attività dei figli ed è stato verificato l'equilibrio secolare, indice di condizioni indisturbate per gli orizzonti pedologici.

Per concludere le valutazioni sulla radioattività prodotta dai radionuclidi naturali è stata determinata l'attività specifica del ^{40}K , anch'esso appartenente ai radionuclidi primordiali.

Le concentrazioni in attività di tutti questi radioisotopi variano in modo significativo al variare delle caratteristiche chimico-fisiche e geomorfologiche dei suoli pur conservando spesso, in profili pedologici non soggetti ad attività antropiche, correlazioni elevate.

Per completare le valutazioni sulla radioattività ambientale, è stata determinata l'attività dell'unico radionuclide artificiale riscontrabile nei suoli, il ^{137}Cs . Introdotto nell'ambiente dall'incidente avvenuto nel 1986 al reattore nucleare di Chernobyl persiste ancora oggi nel suolo, a causa dell'elevato tempo di dimezzamento (30 anni), in percentuali diverse a seconda delle differenti caratteristiche chimico-fisiche.

Per le analisi sono stati utilizzati i campioni prelevati nel giugno 2005 allo scopo di approfondire le relazioni tra le caratteristiche chimico-fisiche (presentate nella prima parte), la distribuzione dei radionuclidi nel profilo pedologico e le eventuali migrazioni orizzontali e verticali.

2. Risultati delle indagini radiometriche

2.1. Caratteristiche strumentali

Le misure mediante spettrometria γ , sono state condotte con rivelatore HPGe, EG&G ORTEC GMX, di tipo n, con efficienza del 30% e risoluzione 1,69 keV sul picco a 1332,5 keV del ^{60}Co . Il rivelatore è collegato ad un appropriato sistema di acquisizione dei dati, DSPEC EG&G ORTEC ed al software Gamma Vision 6.0 (EG&G ORTEC) per

U 92	^{238}U ($4,49 \cdot 10^9$ anni)		^{234}U ($2,44 \cdot 10^5$ anni)				
Pa 91	α ↓ β ↗	^{234}Pa (1,2min) ^{234}Pa (6,66ore)	β ↘ α ↓				
Th 90	^{234}Th (24,1giorni)		^{230}Th ($7,70 \cdot 10^4$ anni)				
Ac 89			α ↓				
Ra 88			^{226}Ra ($1,26 \cdot 10^3$ anni)				
Fr 87			α ↓				
Rn 86			^{222}Rn (3,82giorni)				
At 85			α ↓	^{218}At (2,0s)			
Po 84			β ↘ α ↓	^{218}Po (3,05min)	α ↓	^{214}Po ($1,6 \cdot 10^{-4}$ s)	^{210}Po (138giorni)
Bi 83			α ↓	^{214}Bi (19,7min)	β ↗ α ↓	^{210}Bi (5,0anni)	α ↓
Pb 82			β ↘ α ↓	^{214}Pb (26,8min)	β ↗ α ↓	^{210}Pb (22,3anni)	α ↓ ^{206}Pb (STABILE)
Tl 81			β ↗ α ↓	^{210}Tl (1,32min)	β ↗ α ↓	^{206}Tl (4,19min)	

Fig. 1 - Schema dei decadimenti per la serie dell'Uranio.

	Matrice	Attività specifica certificata (Bq kg^{-1})	Capostipite serie	$t_{1/2}$ anni	Th mg kg^{-1}	U mg kg^{-1}	K mg kg^{-1}
IAEA-RGU1	SiO_2	4940	^{238}U	$4,5 \cdot 10^9$	1	400	20
IAEA-RGTh1	SiO_2	3250	^{232}Th	$1,4 \cdot 10^{10}$	800	6,3	200
Radionuclide							
IAEA-RGK1	K_2SO_4	$1,2 \cdot 10^8$	^{40}K	$1,3 \cdot 10^9$	0,01	0,001	$4,5 \cdot 10^5$
IAEA-SOIL 6	suolo	54	^{137}Cs	30			
composizione Capostipite serie							
IAEA-PECHBLENDA S-8	U_3O_8 0,140%	14231	^{238}U	$4,5 \cdot 10^9$		14000	

Tab. 1 - Caratteristiche dei cinque materiali di riferimento utilizzati per le analisi.

l'analisi spettrale.

Per le calibrazioni in energia ed efficienza sono state utilizzate sorgenti puntiformi dell'LMRI (Laboratoire de Métrologie des Rayonnements Ionisants) costituite da dieci radionuclidi le cui

energie gamma interessano la regione spettrale da 59,5 keV (^{241}Am) a 1836,1 keV (^{88}Y).

Nella seguente tabella (Tab. 1) si riassumono le caratteristiche principali dei materiali di riferimento utilizzati per il controllo di qualità delle analisi.

2.2. Serie del ^{238}U

L'Uranio è un elemento che si trova negli strati più superficiali della crosta terrestre ed esiste solo in forma di isotopi instabili con elevato tempo di dimezzamento, il che giustifica la loro attuale presenza nonostante l'origine risalga alla formazione del Sistema Solare. L'Uranio naturale è costituito da una miscela di ^{235}U (0,72%)¹, ^{238}U (99,27%) ed i loro rispettivi prodotti di decadimento che costituiscono le serie dell'Attinio e dell'Uranio. Queste due serie iniziano con un isotopo capostipite, nel primo caso l' ^{235}U nel secondo l' ^{238}U , e terminano, dopo un certo numero di decadimenti α e β che generano isotopi instabili, con un isotopo stabile del piombo, nel primo caso il ^{207}Pb e nel secondo il ^{206}Pb .

Il tempo di dimezzamento del capostipite della serie dell'Uranio, l'isotopo ^{238}U , è pari a $4,47 \cdot 10^9$ anni pertanto, in natura l'attività specifica di quest'ultimo radionuclide e dei suoi figli è significativamente più elevata rispetto alla stessa prodotta dalla serie dell'Attinio il cui capostipite, l' ^{235}U , impiega $7,04 \cdot 10^8$ anni per dimezzare la propria attività. Nel presente lavoro si analizza nel dettaglio l'andamento della serie dell'Uranio (Fig.1), per la valutazione della radioattività ambientale.

Il capostipite, l'isotopo 238 dell'Uranio, decade α (particella costituita da due protoni e due

neutroni, ossia un nucleo di elio) e produce il primo "figlio" della serie radioattiva, il ^{234}Th . Di seguito si hanno successivi decadimenti α e β (emissione di elettroni) sino alla formazione del radioisotopo 226 del Radio (^{226}Ra) che decade α e produce l'unico gas nobile della serie, l'isotopo 222 del Radon (^{222}Rn : tempo di dimezzamento 3,82 giorni) che, in quanto tale, si può allontanare producendo una diminuzione dell'attività specifica dei prodotti di decadimento successivi (come ^{214}Pb e ^{214}Bi). La perdita di questo gas nobile può avvenire come conseguenza di perturbazioni esterne, alterazioni geopedologiche, attività antropiche, ma anche nella fase di campionamento del suolo. Per quest'ultima ragione, prima di effettuare le indagini per la verifica dell'equilibrio secolare nella serie, è stato necessario attendere alcuni giorni (circa 20) affinché venissero ripristinate le condizioni d'equilibrio alterate durante il campionamento. In caso contrario si possono verificare errori anche del 10÷20% sulla determinazione di ^{214}Pb e ^{214}Bi (Tsabaris *et al.*, 2007). La serie termina con l'isotopo 206 del piombo (^{206}Pb) che è stabile.

Nelle condizioni di equilibrio secolare l'attività di ogni membro della serie rimane uguale, cambia solo il numero di atomi radioattivi presenti che sarà minore per radioisotopi con tempo di dimezzamento maggiore.

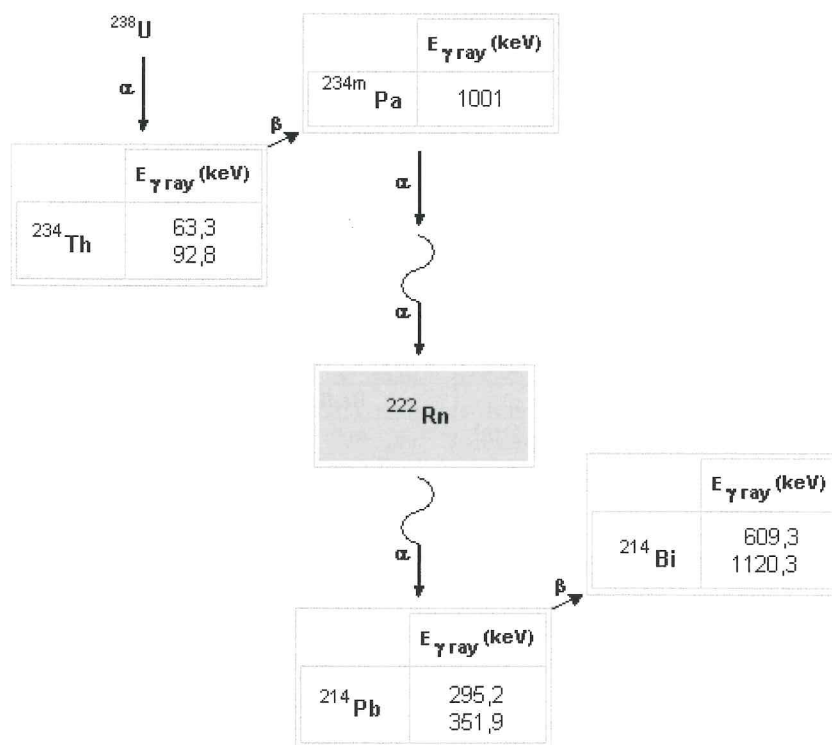


Fig. 2 - Energie γ degli isotopi della serie dell'Uranio, utilizzare per le indagini radiometriche.

Per quanto riguarda la determinazione dell'attività dei singoli radionuclidi della serie, come descritto nel paragrafo precedente, è stata

Per la verifica dell'equilibrio secolare sono state determinate le attività², espresse in Bq³ (Becquerel), del ²³⁴Th, un radioisotopo che precede

Radionuclide	Tempo di dimezzamento	Energie (keV)	Probabilità % di transizione γ
²³⁴ Th	24,1 giorni	63,29	4,47
		92,80	2,60
^{234m} Pa	1,2 minuti	1001,03	0,39
²¹⁴ Pb	26,8 minuti	351,92	35,80
		295,21	18,50
²¹⁴ Bi	19,7 minuti	609,31	44,79
		1120,29	15,36

Tab. 2 - Informazioni relative ai picchi γ utilizzati per le indagini spettrometriche.

utilizzata la spettrometria gamma ad alta risoluzione. L'utilizzo di questo metodo analitico è possibile in quanto, associate ai decadimenti α e β , si hanno emissioni di radiazioni γ ad energia caratteristica per ogni radionuclide.

In Fig. 2 si mostrano i radioisotopi emettitori di radiazioni γ della serie dell'Uranio con le rispettive energie γ caratteristiche.

In Tab. 2 si riportano le informazioni relative ai picchi γ utilizzati per la determinazione analitica delle attività dei radionuclidi appartenenti alla serie dell'²³⁸U.

nella sequenza dei decadimenti il ²²²Rn, del ²¹⁴Pb e del ²¹⁴Bi, prodotti di decadimento successivi alla formazione del gas nobile. Se sono verificate le condizioni d'equilibrio le attività di tutti i membri della serie devono rimanere pressoché uguali (si considerano tali, a meno del 10% d'errore sulla determinazione analitica). Si procede, pertanto, verificando che:

- i rapporti tra le attività medie di ²¹⁴Bi e ²³⁴Th siano circa uguali ad uno;
- i coefficienti di correlazione delle attività medie di ²³⁴Th - ²¹⁴Bi e ²³⁴Th - ²¹⁴Pb

Campione	10 cm (A1)	25 cm (A2)	40 cm (A3)	55 cm (A4)	70 cm (A5)	85 cm (A6)	110cm (A7)
²³⁴ Th	5,6±0,1	6,1±0,3	4,9±0,8	5,5±0,6	6,4±0,9	4,9±0,4	5,6±0,4
²¹⁴ Bi	5,1±0,8	5,0±0,4	4,7±0,2	4,6±0,4	6,3±0,2	4,7±0,4	5,2±0,3
²¹⁴ Pb	4,9±0,3	5,1±0,1	4,6±0,2	5,0±0,2	6,1±0,3	4,8±0,1	5,3±0,6
²¹⁴ Bi/ ²³⁴ Th	0,9	0,8	1,0	0,8	1,0	1,0	0,9
Coefficiente di correlazione ²³⁴ Th - ²¹⁴ Pb	0,82						
²³⁴ Th - ²¹⁴ Bi	0,76						
^{234m} Pa - 1001 keV	PRESENTE	PRESENTE	PRESENTE	PRESENTE	PRESENTE	PRESENTE	PRESENTE

Tab. 3 - Parametri per la verifica dell'equilibrio secolare nella serie dell'Uranio per lo scavo A.

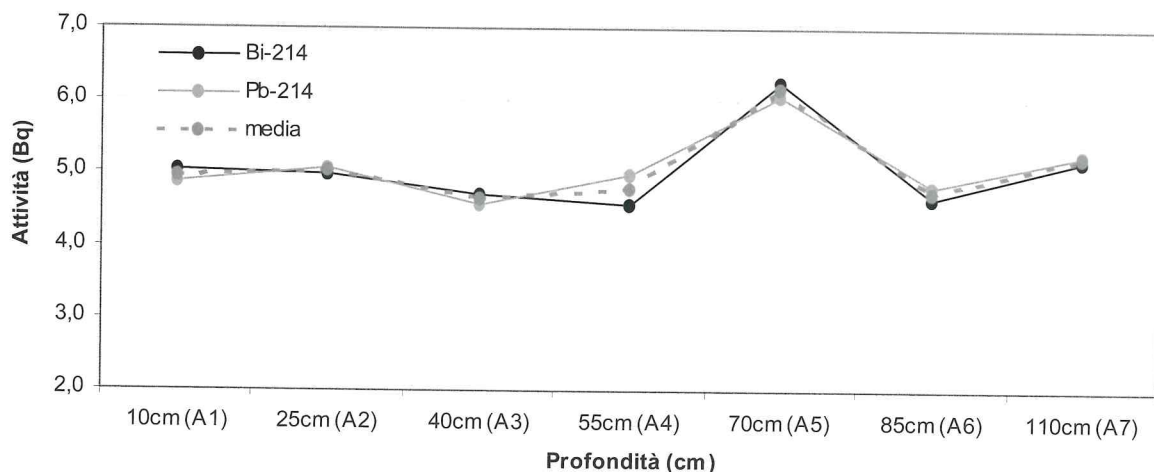
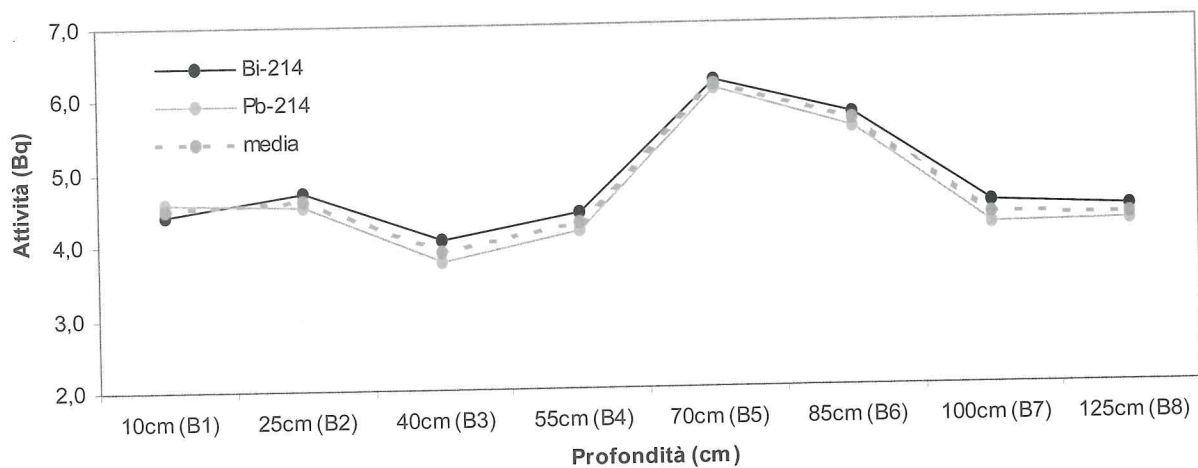


Fig. 3 - Andamento delle attività (Bq) di ²¹⁴Pb e ²¹⁴Bi e dell'attività media nello scavo A.

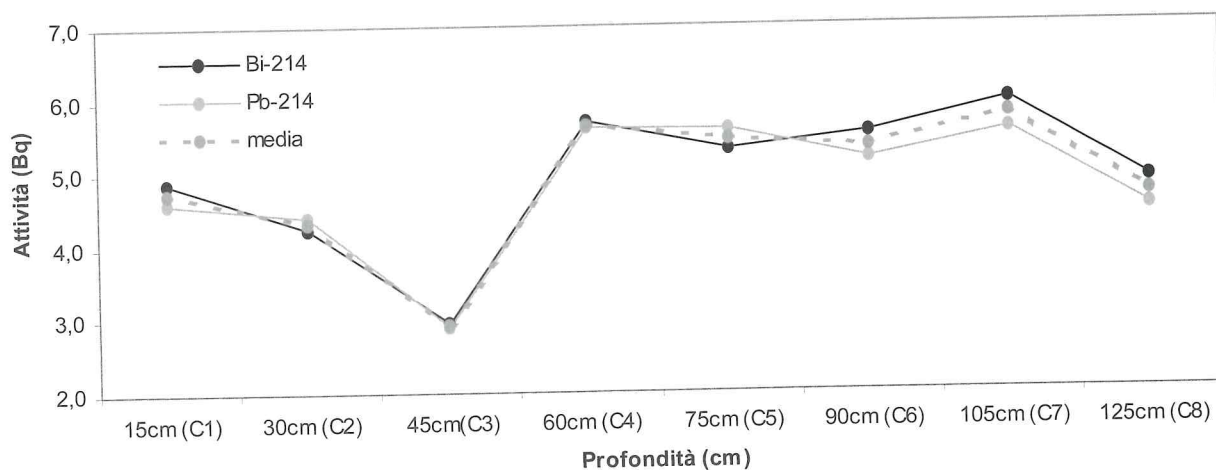
	Campione	10 cm (B1)	25 cm (B2)	40 cm (B3)	55 cm (B4)	70 cm (B5)	85 cm (B6)	100 cm (B7)	125 cm (B8)
Attività (Bq)	^{234}Th	5±1	5±1	4,3±0,2	5±1	6±1	6±2	5±1	5,20±0,04
	^{214}Bi	4,4±0,2	4,7±0,1	4,1±0,1	4,4±0,1	6,2±0,1	5,8±0,1	4,5±0,2	4,4±0,2
	^{214}Pb	4,6±0,2	4,5±0,1	3,8±0,1	4,2±0,3	6,1±0,3	5,5±0,2	4,2±0,3	4,2±0,3
	$^{214}\text{Bi}/^{234}\text{Th}$	0,9	1,0	1,0	1,0	1,0	0,9	1,0	0,9
Coefficiente di correlazione	$^{234}\text{Th} - ^{214}\text{Pb}$: 0,94								
	$^{234}\text{Th} - ^{214}\text{Bi}$: 0,95								
	$^{234\text{m}}\text{Pa} - 1001 \text{ keV}$	PRESENTE	PRESENTE	PRESENTE	PRESENTE	PRESENTE	PRESENTE	PRESENTE	PRESENTE

Tab. 4 - Parametri per la verifica dell'equilibrio secolare nella serie dell'Uranio per lo scavo B.

Fig. 4 - Andamento delle attività (Bq) di ^{214}Pb e ^{214}Bi e dell'attività media nello scavo B.

	Campione	15 cm (C1)	30 cm (C2)	45 cm (C3)	60 cm (C4)	75 cm (C5)	90 cm (C6)	105 cm (C7)	125 cm (C8)
Attività (Bq)	^{234}Th	6±1	4,6±0,4	3±1	6±1	6,0±0,4	6,7±0,3	6±1	5±1
	^{214}Bi	4,9±0,4	4,2±0,1	3,0±0,1	5,7±0,3	5,3±0,2	5,5±0,5	6±1	4,9±0,2
	^{214}Pb	4,6±0,2	4,40±0,01	2,9±0,2	5,6±0,1	5,6±0,3	5,2±0,1	5,6±0,1	4,5±0,1
	$^{214}\text{Bi}/^{234}\text{Th}$	0,8	0,9	1,0	0,9	0,9	0,8	1,0	1,0
Coefficiente di correlazione	$^{234}\text{Th} - ^{214}\text{Pb}$: 0,90								
	$^{234}\text{Th} - ^{214}\text{Bi}$: 0,93								
	$^{234\text{m}}\text{Pa} - 1001 \text{ keV}$	PRESENTE	PRESENTE	PRESENTE	PRESENTE	PRESENTE	PRESENTE	PRESENTE	PRESENTE

Tab. 5 - Parametri per la verifica dell'equilibrio secolare nella serie dell'Uranio per lo scavo C.

Fig. 5 - Andamento delle attività (Bq) di ^{214}Pb e ^{214}Bi e dell'attività media nello scavo C.

siano circa il 90%;

- sia presente il picco a 1001 keV del ^{234m}Pa (Adsley *et al.*, 1998).

Per quanto riguarda il profilo pedologico delle tre stazioni di campionamento le ipotesi di verifica, per la serie dell'Uranio, mostrano che non vi sono alterazioni nell'equilibrio secolare. Nelle Tabelle e grafici si riportano i risultati delle indagini per gli scavi A, B e C (Tab. 3÷5, Fig. 3÷5).

Per tutti gli scavi i rapporti $^{214}\text{Bi}/^{234}\text{Th}$ sono compresi tra 0,8 e 1,0; le correlazioni tra $^{234}\text{Th} - ^{214}\text{Pb}$ e $^{234}\text{Th} - ^{214}\text{Bi}$ sono superiori al 90% per gli scavi B e C, circa l'80% per lo scavo A. Infine, per tutte le

stazioni di campionamento, a tutte le profondità, è stato evidenziato il picco a 1001 keV del ^{234m}Pa .

Le attività di ^{214}Pb e ^{214}Bi nello scavo A sono circa costanti, di poco inferiori a 5,0 Bq, sino allo strato S (55 cm di profondità) mentre l'attività maggiore (circa 6,0 Bq) è stata determinata a 70 cm dalla superficie. Per lo scavo B si ha un andamento meno regolare con attività comprese tra 4,0 e 6,0 Bq e valore più elevato in corrispondenza dello strato S. Infine, lo scavo C mostra, per questi due radioisotopi, attività tra 3,0÷6,0 Bq con valore inferiore in corrispondenza dello strato S e tra 5,0÷6,0 Bq da 60 cm di profondità al fondo dello

Campione	10 cm (A1)	25 cm (A2)	40 cm (A3)	55 cm (A4)	70 cm (A5)	85 cm (A6)	110 cm (A7)
^{238}U (Bq kg ⁻¹)	53±1	44±3	42±2	38±3	53±2	43±4	41±2

Tab. 6 - Attività specifiche dell' ^{238}U nello scavo A.

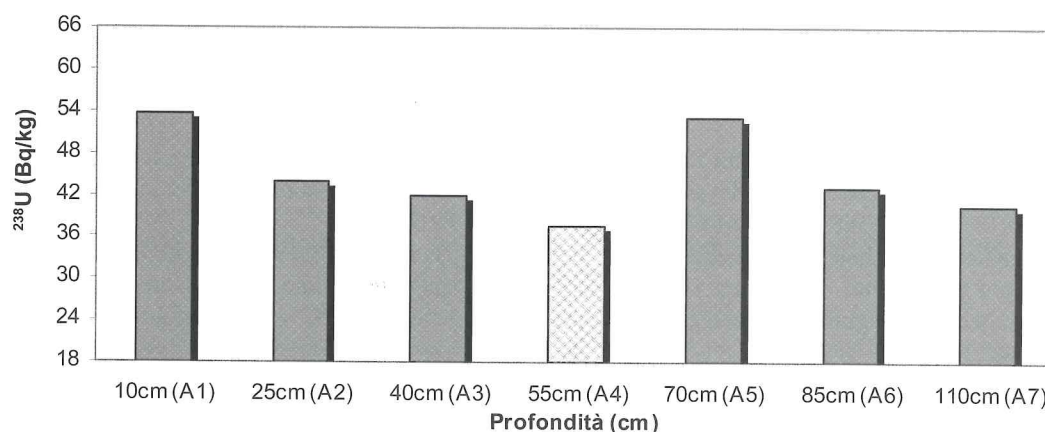


Fig. 6 - Grafico ad istogramma che mostra l'andamento dell'attività specifica dell' ^{238}U nel profilo pedologico dello scavo A.

Campione	10 cm (B1)	25 cm (B2)	40 cm (B3)	55 cm (B4)	70 cm (B5)	85 cm (B6)	100 cm (B7)	125 cm (B8)
^{238}U (Bq kg ⁻¹)	37±1	39±1	30±2	35±1	46±1	53±1	39±2	37±1

Tab. 7 - Attività specifiche dell' ^{238}U nello scavo B.

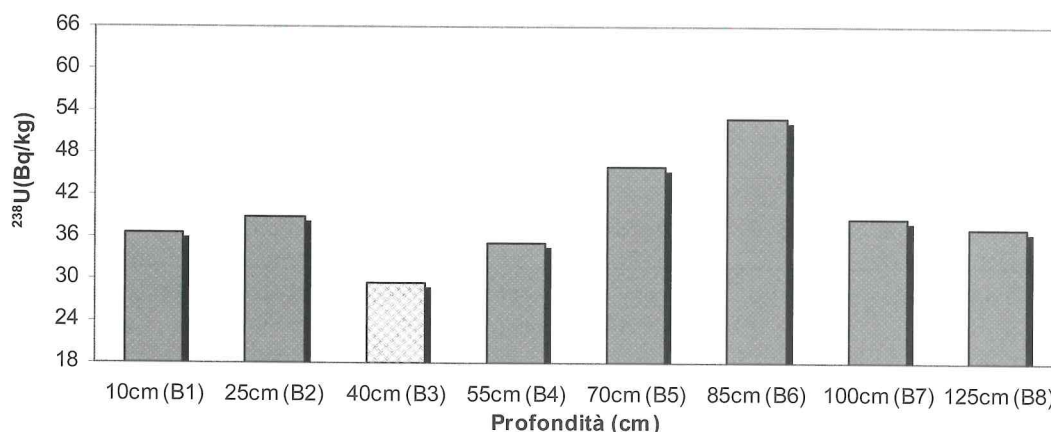
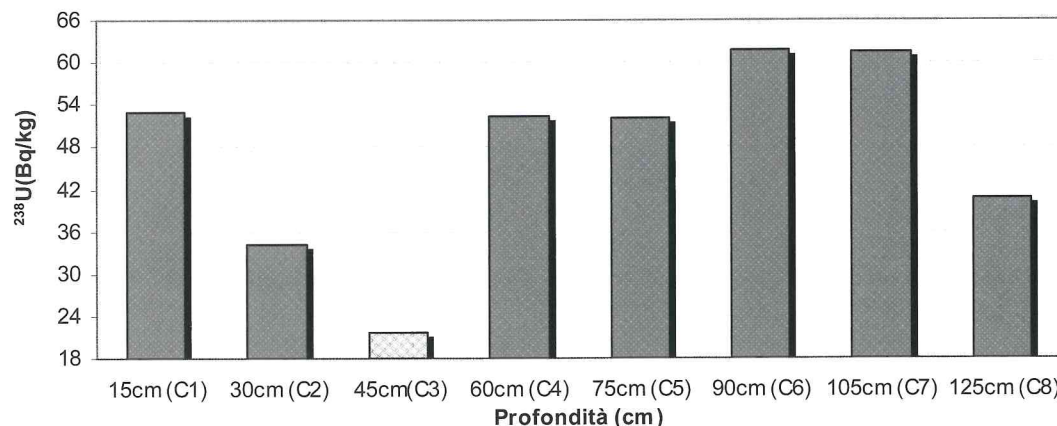


Fig. 7 - Grafico ad istogramma che mostra l'andamento dell'attività specifica dell' ^{238}U nel profilo pedologico dello scavo B.

Campione	15 cm (C1)	30 cm (C2)	45 cm (C3)	60 cm (C4)	75 cm (C5)	90 cm (C6)	105 cm (C7)	125 cm (C8)
^{238}U (Bq kg ⁻¹)	53±2	34±1	21,7±0,3	52,5±0,4	52±2	62±3	61±3	41±2

Tab. 8 - Attività specifiche dell' ^{238}U nello scavo C.Fig. 8 - Grafico ad istogramma che mostra l'andamento dell'attività specifica dell' ^{238}U nel profilo pedologico dello scavo C.

scavo. Le attività di ^{214}Pb e ^{214}Bi all'interno dei tre scavi mostrano che non vi sono rilevanti differenze nella distribuzione all'interno del profilo pedologico né migrazioni orizzontali dei radionuclidi. Tali conclusioni permettono di stabilire che non sono presenti alterazioni significative nell'equilibrio per la serie dell'Uranio.

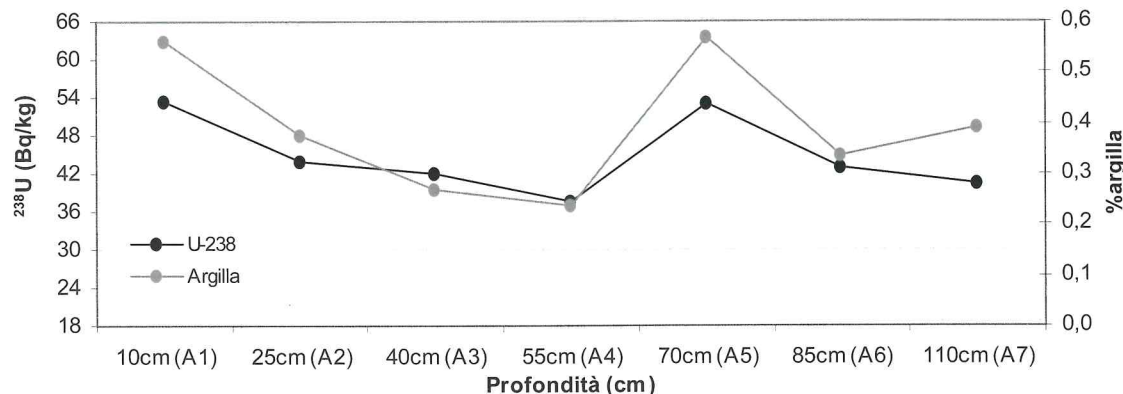
Di seguito (Tab. 6÷8 e Fig. 6÷8) si riporta una valutazione approssimativa dell'andamento delle attività specifiche⁴ del capostipite della serie (^{238}U) calcolate sulla base delle attività dei figli.

Negli scavi A e B l'attività specifica massima per l' ^{238}U è di 54 Bq kg⁻¹ mentre per lo scavo C è di poco superiore (~ 62 Bq kg⁻¹). Nel profilo pedologico la maggiore attività specifica riguarda principalmente gli orizzonti più profondi. Gli scavi

A e C mostrano valore elevato anche nello strato più superficiale e valore minimo in corrispondenza dello strato S.

I risultati delle indagini dimostrano una significativa relazione tra l'andamento delle attività specifiche dell' ^{238}U e la tessitura del suolo. In particolare modo, come si osserva nei grafici seguenti (Fig. 9 a, b; 10 a, b; 11 a, b), risultano influenti le percentuali di limo ed argilla.

Come si può osservare per gli scavi A e C è evidente una notevole dipendenza tra l'andamento delle percentuali di argilla e limo e le attività specifiche del capostipite della serie dell'Uranio. La Fig. 11a mostra una relazione significativa tra l'andamento delle attività dell' ^{238}U e la quantità di argilla sino a 60 cm. Per lo scavo B, in particolar

Fig. 9 a - Andamento dell'attività specifica dell' ^{238}U al variare della percentuale di argilla alle diverse profondità dello scavo A.

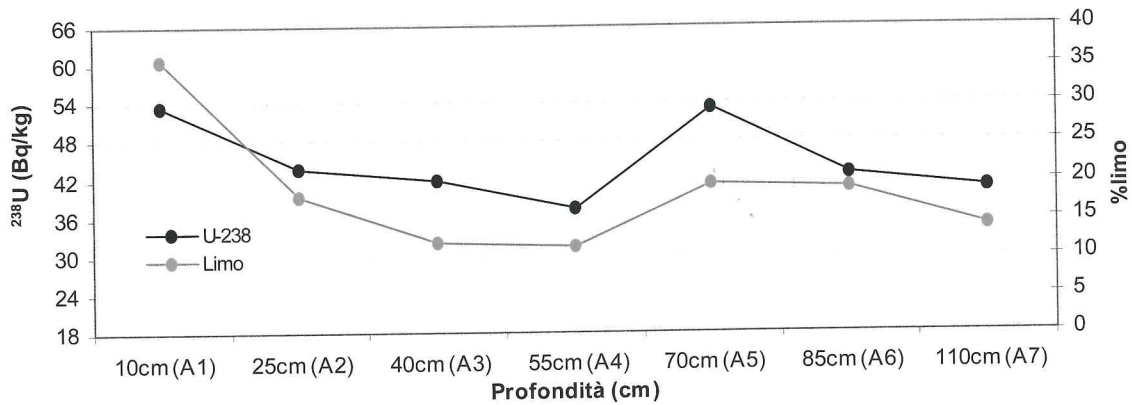


Fig. 9 b - Andamento dell'attività specifica dell'²³⁸U al variare della percentuale di limo alle diverse profondità dello scavo A.

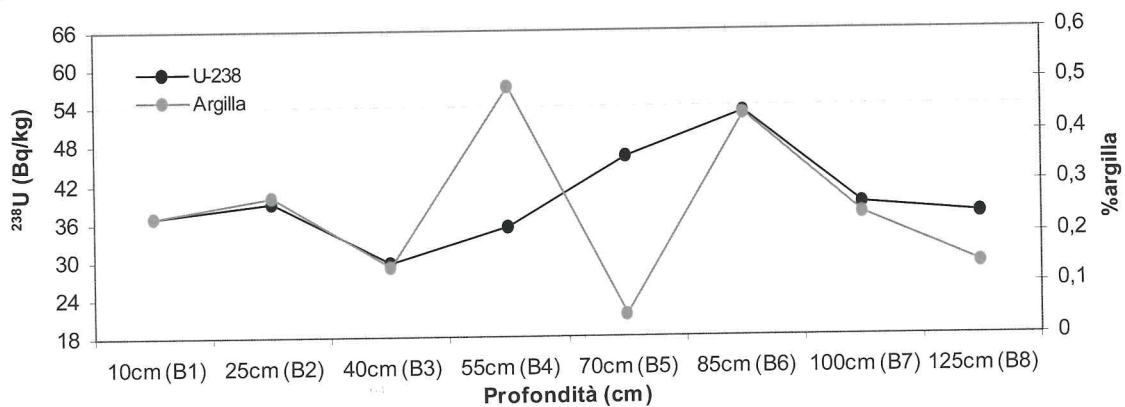


Fig. 10 a - Andamento dell'attività specifica dell'²³⁸U al variare della percentuale di argilla alle diverse profondità dello scavo B.

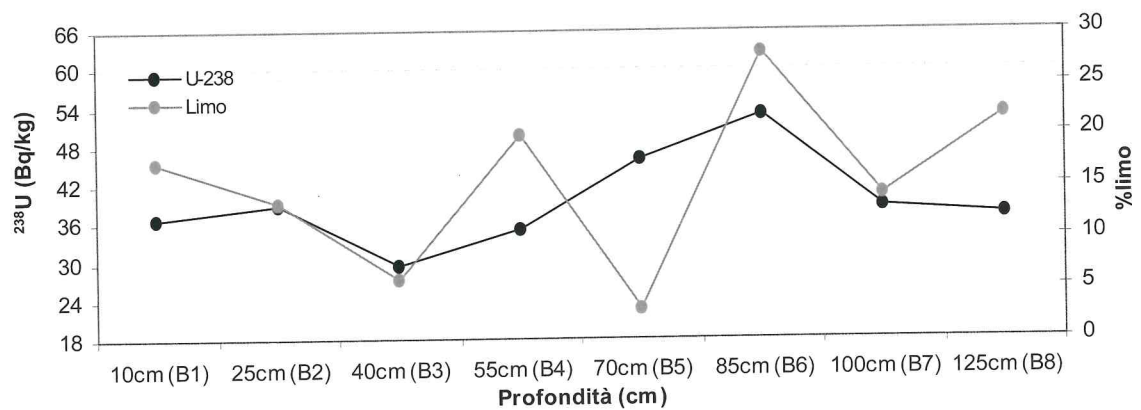


Fig. 10 b - Andamento dell'attività specifica dell'²³⁸U al variare della percentuale di limo alle diverse profondità dello scavo B.

modo tra 55 e 85 cm di profondità, non si verifica questa relazione mentre negli strati superficiali (entro i 45 cm di profondità) si osserva una perfetta corrispondenza tra l'andamento dell'attività specifica dell'²³⁸U e la percentuale di particelle di diametro inferiore. Inoltre, tale grandezza è direttamente proporzionale alla capacità di scambio cationico del suolo sino alla profondità di circa 50

cm per gli scavi A, B e sino al fondo scavo per C (Fig. 12).

2.3. Serie del ²³²Th

Anche il Torio, come l'Uranio, è un elemento che si trova negli strati più superficiali della crosta terrestre ed esiste in natura sotto forma di isotopi instabili. Alcuni di questi appartengono alla serie

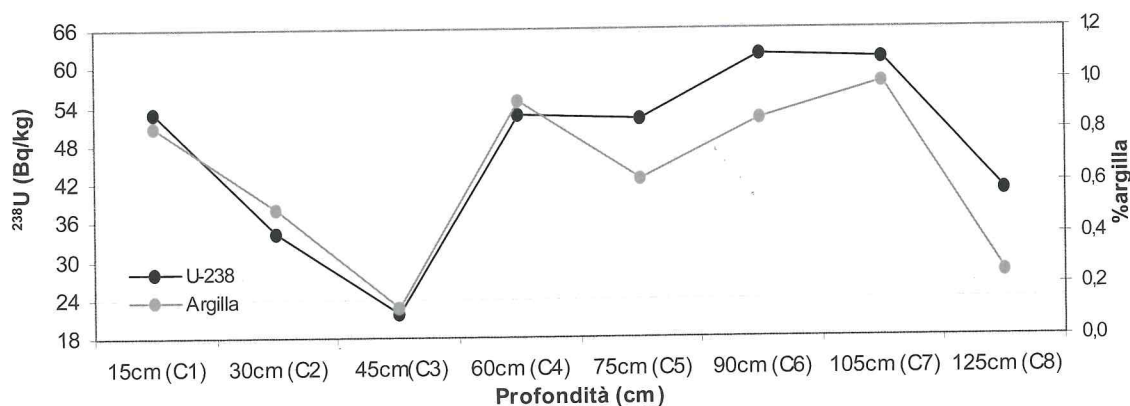


Fig. 11a - Andamento dell'attività specifica dell' ^{238}U al variare della percentuale di argilla alle diverse profondità dello scavo C.

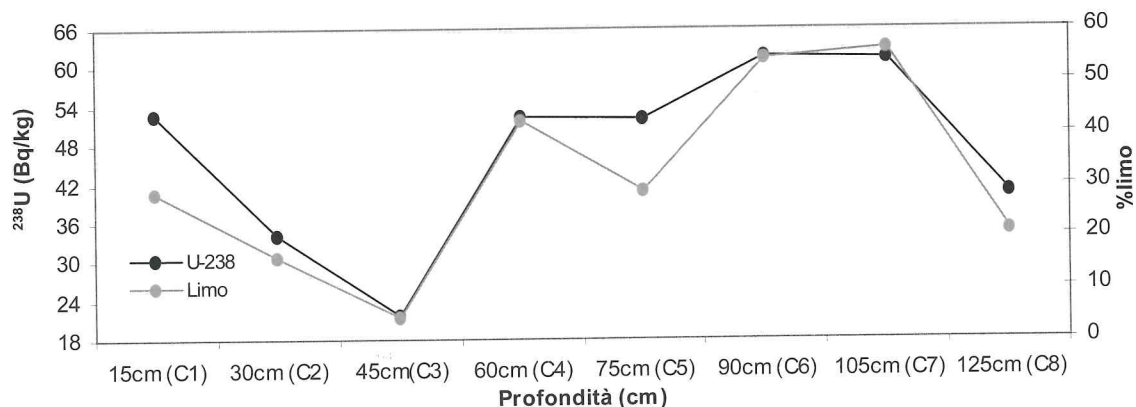


Fig. 11b - Andamento dell'attività specifica dell' ^{238}U al variare della percentuale di limo alle diverse profondità dello scavo C

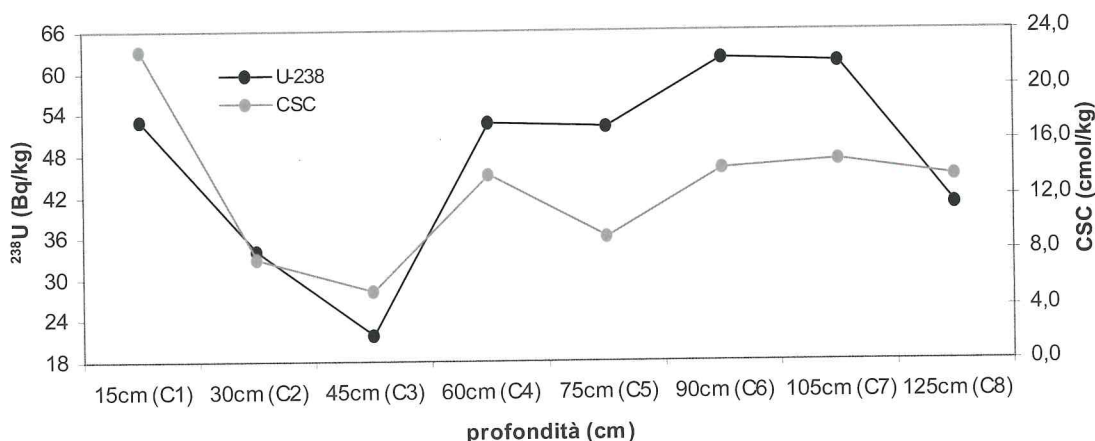


Fig. 12 - Andamento dell'attività specifica dell' ^{238}U al variare della CSC alle diverse profondità dello scavo C.

dell'Uranio in quanto prodotti di decadimento dell' ^{238}U (^{234}Th - tempo di dimezzamento: 24,1 giorni - e ^{230}Th - tempo di dimezzamento: $7,70 \cdot 10^4$ anni) mentre il ^{232}Th è il capostipite della serie del Torio, con un tempo di dimezzamento di $1,39 \cdot 10^{10}$ anni.

In Fig. 13 si mostra lo schema di decadimento del ^{232}Th : per decadimento α del capostipite si genera il primo figlio della serie radioattiva, il ^{228}Ra , che decade β e genera il ^{228}Ac (isotopo 228 dell'attinio). Da questo, in seguito ad un decadimento β , si genera il ^{228}Th che decade α a dare il ^{224}Ra dal quale, per

Th 90	^{234}Th ($1,39 \cdot 10^{10}$ anni)		^{228}Th (1,90anni)		
Ac 89	$\downarrow \alpha$	^{228}Ac (6,13ore)	$\downarrow \alpha$		
Ra 88	^{228}Ra (6,7anni)		^{228}Ra (3,64giorni)		
Fr 87			$\downarrow \alpha$		
Rn 86			^{224}Rn (52s)		
At 85			$\downarrow \alpha$	^{216}At ($3 \cdot 10^{-4}$ s)	
Po 84			^{216}Po (0,158s)	$\downarrow \alpha$ (0,013%)	^{212}Po ($3 \cdot 10^{-7}$ s)
Bi 83			(~100%) $\downarrow \alpha$	^{212}Bi (60,5min)	$\downarrow \alpha$ (66,3%)
Pb 82			^{212}Pb (10,6ore)	$\downarrow \alpha$ (33,7%)	^{208}Pb (STABILE)
Tl 81				^{208}Tl (3,1min)	

Fig. 13 - Schema dei decadimenti per la serie del Torio.

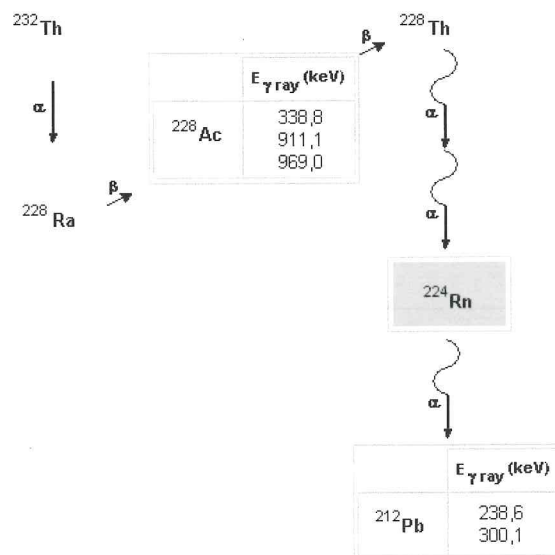


Fig. 14 - Energie γ degli isotopi della serie del Torio, utilizzate per le indagini radiometriche.

Radionuclide	Tempo di dimezzamento	Energie (keV)	Probabilità % di transizione γ
^{228}Ac	6,13 ore	911,20	26,6
		968,97	16,2
		338,32	11,3
^{212}Pb	10,6 ore	238,63	43,7
		300,09	33,4

Tab. 9 - Informazioni relative ai picchi γ utilizzati per le indagini spettrometriche.

decadimento α , ha origine il ^{224}Rn (isotopo 224 del radon) che, analogamente al ^{222}Rn prodotto di decadimento della serie dell' ^{238}U , si può allontanare provocando una diminuzione delle attività specifiche dei figli. Anche per la determinazione analitica delle attività di questi radionuclidi è stata utilizzata la spettrometria γ ad alta risoluzione. In Fig. 14 sono riportati i radioisotopi γ emittenti della serie

del Torio con le rispettive energie γ caratteristiche. In Tab. 9 si riportano le informazioni relative ai picchi γ utilizzati per la determinazione analitica delle attività di ^{228}Ac e ^{212}Pb . Il ^{208}Tl è stato escluso dalla determinazione perché solamente il 33% dei decadimenti α del ^{212}Bi portano alla formazione di questo radionuclide con la conseguenza che la sua attività è circa 1/3 dell'attività del capostipite.

	Profondità	10 cm (A1)	25 cm (A2)	40 cm (A3)	55 cm (A4)	70 cm (A5)	85 cm (A6)	110 cm (A7)
Attività (Bq)	^{228}Ac	4,6 \pm 0,3	5,1 \pm 0,2	4,5 \pm 0,2	5,4 \pm 0,2	6,5 \pm 0,4	5,3 \pm 0,2	5,5 \pm 0,4
	^{212}Pb	4,6 \pm 0,1	4,5 \pm 0,3	4,6 \pm 0,5	4,5 \pm 0,3	5,7 \pm 0,8	4,8 \pm 0,1	5,4 \pm 0,1
	$^{212}\text{Pb}/^{228}\text{Ac}$	1,0	0,9	1,0	0,8	0,9	0,9	1,0
Coefficiente di correlazione	$^{228}\text{Ac}/^{212}\text{Pb}$: 0,81							

Tab. 10 - Parametri per la verifica dell'equilibrio secolare nella serie del Torio per lo scavo A.

	Profondità	10 cm (B1)	25 cm (B2)	40 cm (B3)	55 cm (B4)	70 cm (B5)	85 cm (B6)	100 cm (B7)	125 cm (B8)
Attività (Bq)	^{228}Ac	4,3 \pm 0,2	4,4 \pm 0,09	4,3 \pm 0,03	4,9 \pm 0,3	4,2 \pm 0,4	5,6 \pm 0,3	4,0 \pm 0,01	4,7 \pm 0,1
	^{212}Pb	4,3 \pm 0,7	4,5 \pm 0,7	3,9 \pm 0,2	4,4 \pm 0,3	4,3 \pm 0,2	5,6 \pm 0,6	3,7 \pm 0,4	4,4 \pm 0,3
	$^{212}\text{Pb}/^{228}\text{Ac}$	1,0	1,0	0,9	0,9	1,0	1,0	0,9	0,9
Coefficiente di correlazione	$^{228}\text{Ac}/^{212}\text{Pb}$: 0,92								

Tab. 11 - Parametri per la verifica dell'equilibrio secolare nella serie del Torio per lo scavo B.

	Profondità	15 cm (C1)	30 cm (C2)	45 cm (C3)	60 cm (C4)	75 cm (C5)	90 cm (C6)	105 cm (C7)	125 cm (C8)
Attività (Bq)	^{228}Ac	4,3 \pm 0,2	4,3 \pm 0,3	2,91 \pm 0,03	5,2 \pm 0,3	5,2 \pm 0,1	5,5 \pm 0,3	4,9 \pm 0,3	4,3 \pm 0,1
	^{212}Pb	4,0 \pm 0,2	4,3 \pm 0,3	2,5 \pm 0,3	5,1 \pm 0,4	4,5 \pm 0,1	5,16 \pm 0,05	5,1 \pm 0,4	4,4 \pm 0,4
	$^{212}\text{Pb}/^{228}\text{Ac}$	0,9	0,9	0,8	1,0	0,9	0,9	1,0	1,0
Coefficiente di correlazione	$^{228}\text{Ac}/^{212}\text{Pb}$: 0,94								

Tab. 12 - Parametri per la verifica dell'equilibrio secolare nella serie del Torio per lo scavo C.

Pertanto, per verificare le condizioni d'equilibrio secolare per la serie del Torio sono state determinate le attività alle diverse energie e le attività medie di ^{228}Ac e ^{212}Pb ; di queste sono stati calcolati i rapporti (attività media ^{228}Ac /attività media ^{212}Pb), ed i coefficienti di correlazione tra ^{228}Ac e ^{212}Pb utilizzando, per la matrice di correlazione,

tutti i risultati ottenuti per ciascun radionuclide alle diverse profondità, all'interno di ogni scavo. Nelle seguenti tabelle (Tab. 10-12) sono riportati tutti i parametri utilizzati per la verifica dell'equilibrio secolare:

- le attività di ^{228}Ac e ^{212}Pb ;
- il rapporto delle attività medie di ^{212}Pb e

Profondità	10 cm (A1)	25 cm (A2)	40 cm (A3)	55 cm (A4)	70 cm (A5)	85 cm (A6)	110 cm (A7)
$^{228}\text{Ac (Bq kg}^{-1}) - ^{232}\text{Th}$	50±3	44±2	40±2	43±2	56±3	48±2	43±3

Tab. 13 - Attività specifiche dell' ^{228}Ac (^{232}Th) nello scavo A.

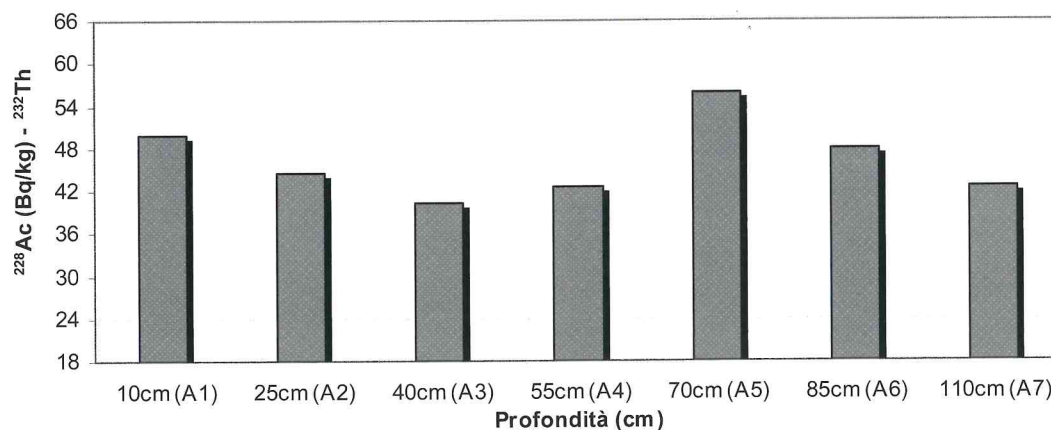


Fig. 15 - Grafico ad istogramma che mostra l'andamento dell'attività specifica del ^{232}Th nel profilo pedologico dello scavo A.

Profondità	10 cm (B1)	25 cm (B2)	40 cm (B3)	55 cm (B4)	70 cm (B5)	85 cm (B6)	100 cm (B7)	125 cm (B8)
$^{228}\text{Ac (Bq kg}^{-1}) - ^{232}\text{Th}$	35±1	37±1	32,5±0,4	40±2	32±3	52±3	35,3±0,1	40±1

Tab. 14 - Attività specifiche dell' ^{228}Ac (^{232}Th) nello scavo B.

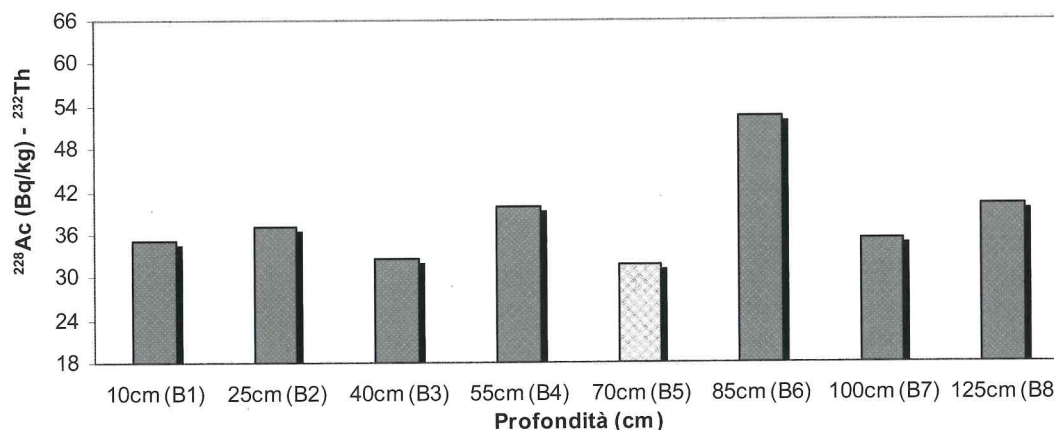


Fig. 16 - Grafico ad istogramma che mostra l'andamento dell'attività specifica del ^{232}Th nel profilo pedologico dello scavo B.

Profondità	15 cm (C1)	30 cm (C2)	45 cm (C3)	60 cm (C4)	75 cm (C5)	90 cm (C6)	105 cm (C7)	125 cm (C8)
$^{228}\text{Ac (Bq kg}^{-1}) - ^{232}\text{Th}$	48±2	34±3	21,1±0,2	48±3	49±1	64±3	52±3	37±1

Tab. 15 - Attività specifiche dell' ^{228}Ac (^{232}Th) nello scavo C.

^{228}Ac (indicato semplicemente con $^{212}\text{Pb}/^{228}\text{Ac}$);
 • il coefficiente di correlazione tra ^{228}Ac e ^{212}Pb .

Per tutti gli scavi, il rapporto delle attività

medie di ^{212}Pb e ^{228}Ac è circa uguale ad uno e, ad eccezione dello scavo A, i coefficienti di correlazione mostrano anche per la serie del Torio correlazione superiore al 90% per i due radionuclidi della

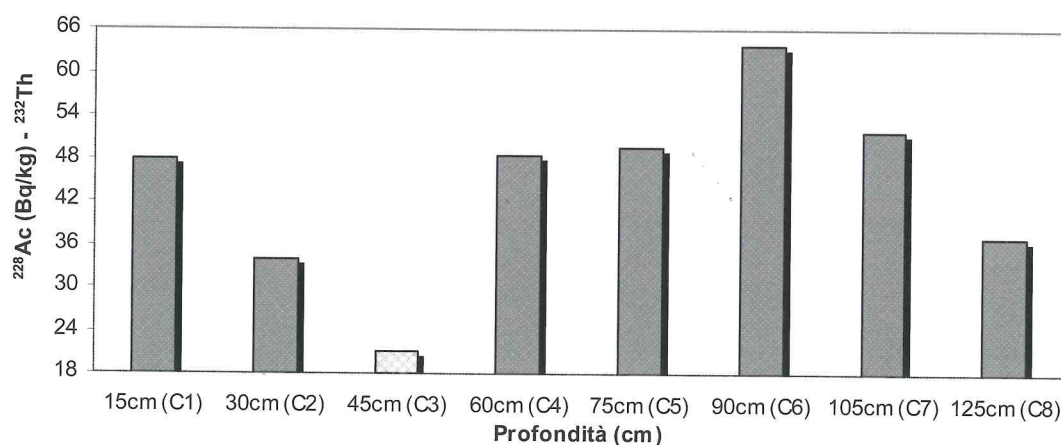


Fig. 17 - Grafico ad istogramma che mostra l'andamento dell'attività specifica del ^{232}Th nel profilo pedologico dello scavo C.

serie. Pertanto, si può affermare che nel contesto boschivo non vi sono alterazioni dell'equilibrio per questa serie. Nelle tabelle e grafici (Tab. 13÷15 e Fig. 15÷17) si riportano, in via approssimativa, le attività specifiche del ^{232}Th calcolate sulle attività dell' ^{228}Ac .

Negli scavi A e B le attività specifiche del ^{228}Ac (indicative delle attività specifiche del ^{232}Th) presentano andamento similare con valori compresi tra 56 e 40 Bq kg^{-1} per lo scavo A e tra 52÷32 Bq kg^{-1} per lo scavo B. Nello scavo C risulta evidente una maggiore variabilità per il profilo pedologico, con valori compresi tra 64 e 21 Bq kg^{-1} alle diverse profondità. Dalla superficie alla profondità di 45 cm (in corrispondenza dello strato S) il valore si dimezza mentre da 60 a 75 cm tornano i valori delle attività specifiche superficiali ed a 90 cm l'attività più elevata dell'intero contesto boschivo.

Quanto osservato per il ^{232}Th è in accordo con i risultati ottenuti per l' ^{238}U : le attività specifiche negli scavi A e B sono confrontabili e variano da un massimo di circa 54 Bq kg^{-1} ad un minimo di circa 30 Bq kg^{-1} , nello scavo C si osserva una variazione più significativa delle attività specifiche con un valore

massimo di circa 60 Bq kg^{-1} ed un minimo di 20 Bq kg^{-1} . Il valore inferiore per lo scavo C si raggiunge alla profondità di 45 cm, nello strato S, caratterizzato da una forte diminuzione nelle percentuali di limo ed argilla, bassa capacità di scambio cationico ed umidità.

2.4. ^{40}K

Per concludere la trattazione dei radionuclidi naturali responsabili della radioattività ambientale, di seguito si riportano le attività specifiche del ^{40}K nel profilo pedologico. L'isotopo 40 del potassio ha un tempo di dimezzamento di $1,3 \cdot 10^9$ anni pertanto, come l' ^{238}U ed il ^{232}Th , è ancora presente nella crosta terrestre pur essendo la sua origine da attribuire all'evento che portò alla formazione del nostro pianeta.

Il potassio è un metallo alcalino molto diffuso sulla Terra sia negli esseri viventi sia in rocce e minerali che costituiscono il suolo (principalmente silicati doppi di alluminio e potassio). In natura è presente essenzialmente come miscela degli isotopi ^{39}K (93,3%), ^{41}K (6,7%) e ^{40}K (0,012%). Quest'ultimo, nonostante sia poco abbondante nella miscela

Campione	10 cm (A1)	25 cm (A2)	40 cm (A3)	55 cm (A4)	70 cm (A5)	85 cm (A6)	110 cm (A7)
^{40}K (Bq kg^{-1})	751	667	687	635	683	719	638

Tab. 16 - Attività specifiche dell' ^{40}K nello scavo A.

naturale, ha la caratteristica d'essere radioattivo. Infatti, il ^{40}K in parte decade β trasformandosi in ^{40}Ca ed in parte, per cattura elettronica, si trasforma in ^{40}Ar (stabile) con emissione di raggi γ , caratteristici per la transizione. Per la determinazione con spettrometria γ dell'attività di questo radionuclide è stato utilizzato il picco a 1460,8 keV di energia γ

(probabilità % di transizione: 10,7).

Di seguito (Tab. 16÷18 e Fig. 18÷20) si riportano i risultati ottenuti per le tre stazioni di campionamento di Bosco Negri.

Come si osserva chiaramente dall'andamento degli istogrammi, le attività specifiche del ^{40}K nel contesto boschivo sono comprese tra 600 e 900 Bq

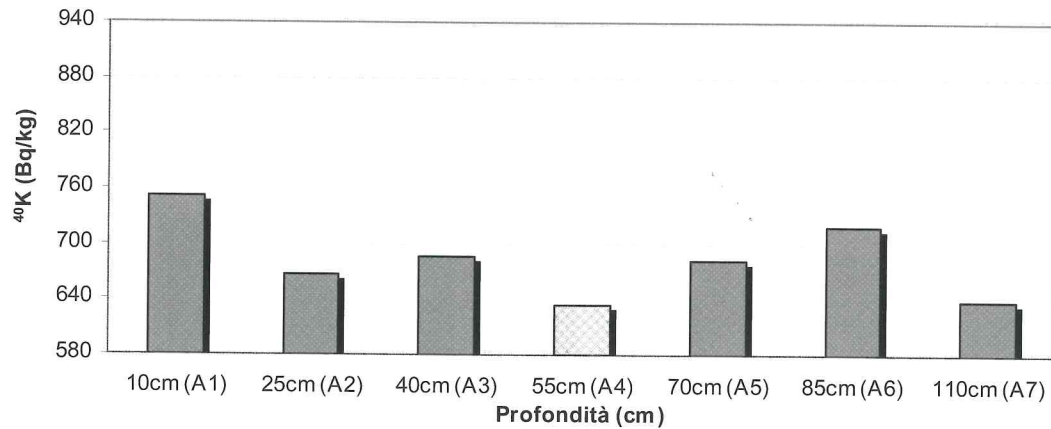


Fig. 18 - Grafico ad istogramma che mostra l'andamento dell'attività specifica del ⁴⁰K nel profilo pedologico dello scavo A.

Campione	10 cm (B1)	25 cm (B2)	40 cm (B3)	55 cm (B4)	70 cm (B5)	85 cm (B6)	100 cm (B7)	125 cm (B8)
⁴⁰ K (Bq kg ⁻¹)	614	649	611	689	600	737	696	649

Tab. 17 - Attività specifiche dell'⁴⁰K nello scavo B.

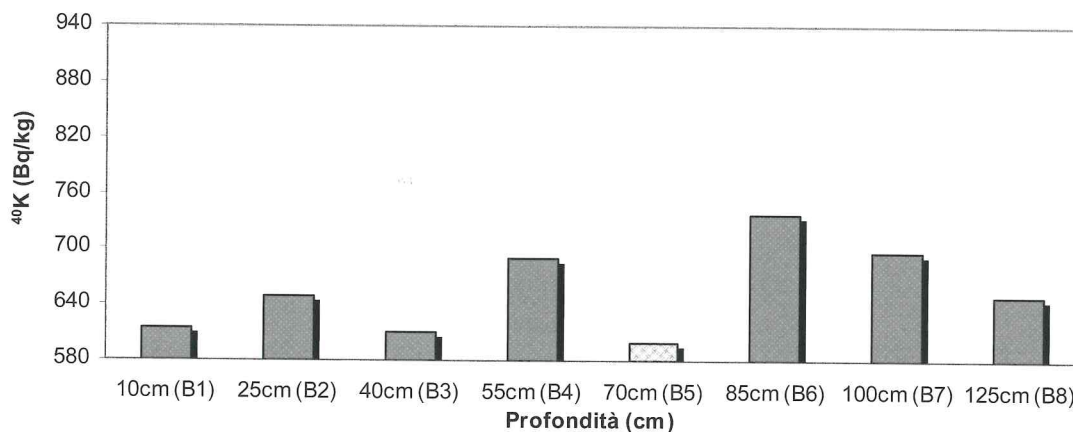


Fig. 19 - Grafico ad istogramma che mostra l'andamento dell'attività specifica del ⁴⁰K nel profilo pedologico dello scavo B.

Campione	15 cm (C1)	30 cm (C2)	45 cm (C3)	60 cm (C4)	75 cm (C5)	90 cm (C6)	105 cm (C7)	125 cm (C8)
⁴⁰ K (Bq kg ⁻¹)	756	651	609	732	709	898	754	654

Tab. 18 - Attività specifiche dell'⁴⁰K nello scavo C.

kg⁻¹, inoltre, in tutti gli scavi l'attività specifica inferiore è raggiunta in corrispondenza dello strato S. Le concentrazioni in attività più alte riguardano lo scavo C nonostante sia interessante osservare che a circa 85÷90 cm di profondità si verifica un aumento dell'attività specifica del ⁴⁰K ed un aumento progressivo dallo scavo posto a nord (scavo A: 719 Bq kg⁻¹) allo scavo sud (scavo B: 737 Bq kg⁻¹ e scavo C: 898 Bq kg⁻¹). Questo risultato può dipendere sia dall'azione esercitata dalle acque del fiume sia dalla

presenza delle acque di falda, ipotesi che trovano parziale conferma nell'andamento delle attività specifiche di questo radioisotopo e l'umidità percentuale nel profilo pedologico dei suoli, come mostrano chiaramente i seguenti grafici (Fig. 21,22,23).

Altro parametro interessante, per lo studio della distribuzione del ⁴⁰K, è la capacità di scambio cationico. L'andamento della CSC influenza notevolmente la distribuzione del ⁴⁰K negli orizzonti del profilo pedologico. Nel contesto boschivo, tale ca-

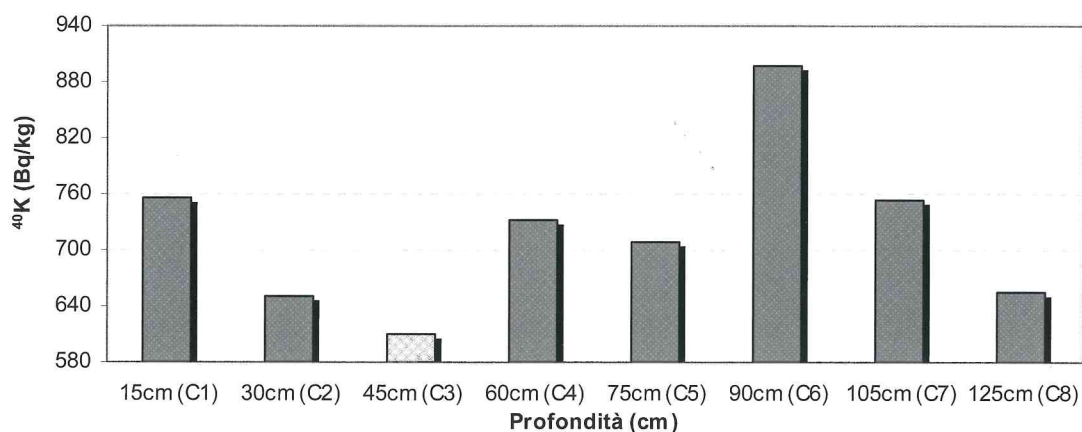


Fig. 20 - Grafico ad istogramma che mostra l'andamento dell'attività specifica del ⁴⁰K nel profilo pedologico dello scavo C.

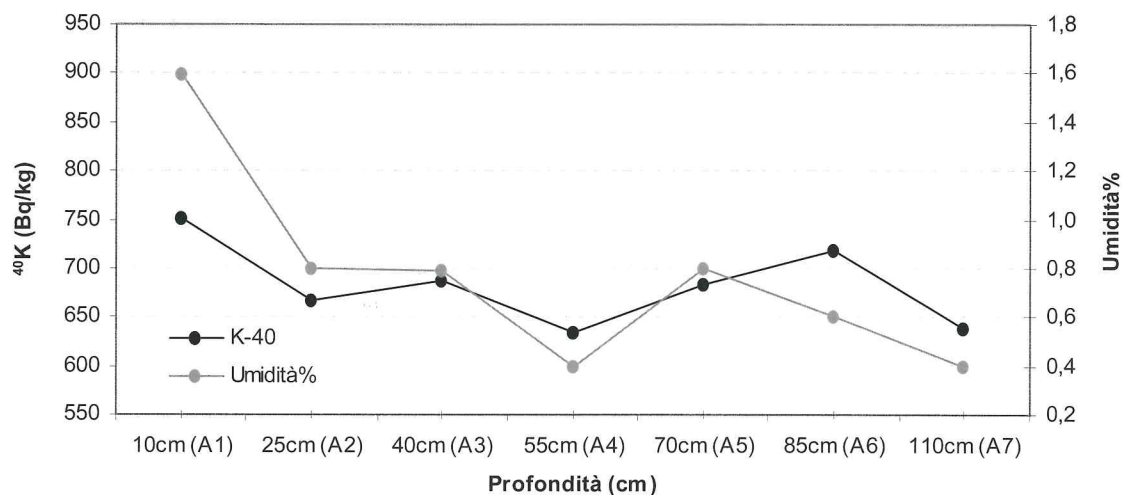


Fig. 21 - Scavo A - variazione dell'attività specifica del ⁴⁰K in funzione dell'umidità.

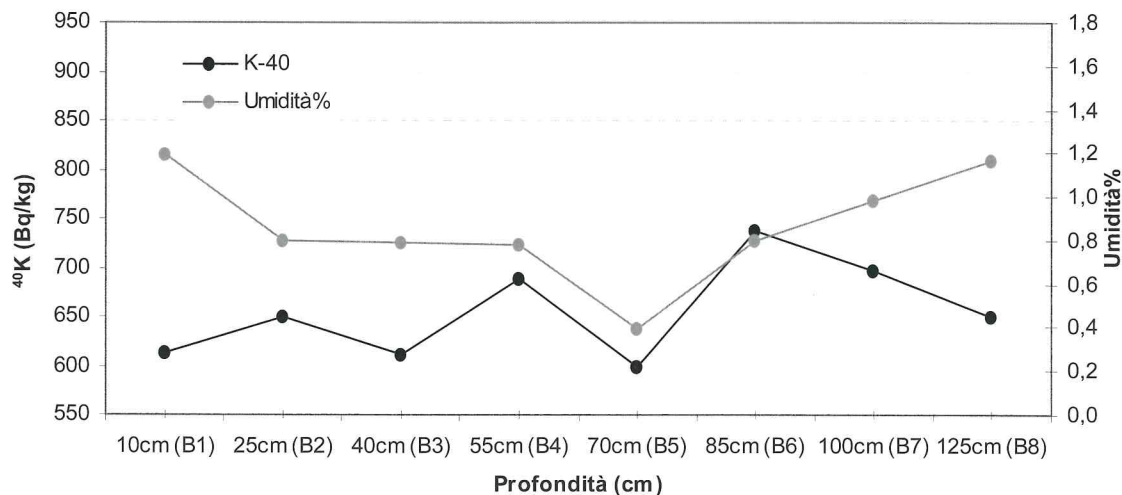


Fig. 22 - Scavo B - variazione dell'attività specifica del ⁴⁰K in funzione dell'umidità.

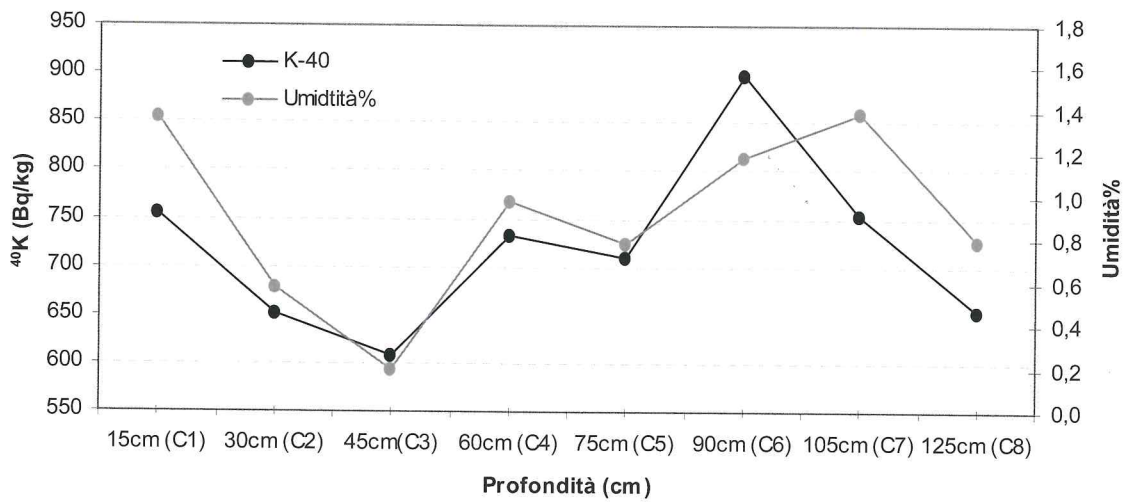


Fig. 23 - Scavo C - variazione dell'attività specifica del ^{40}K in funzione dell'umidità.

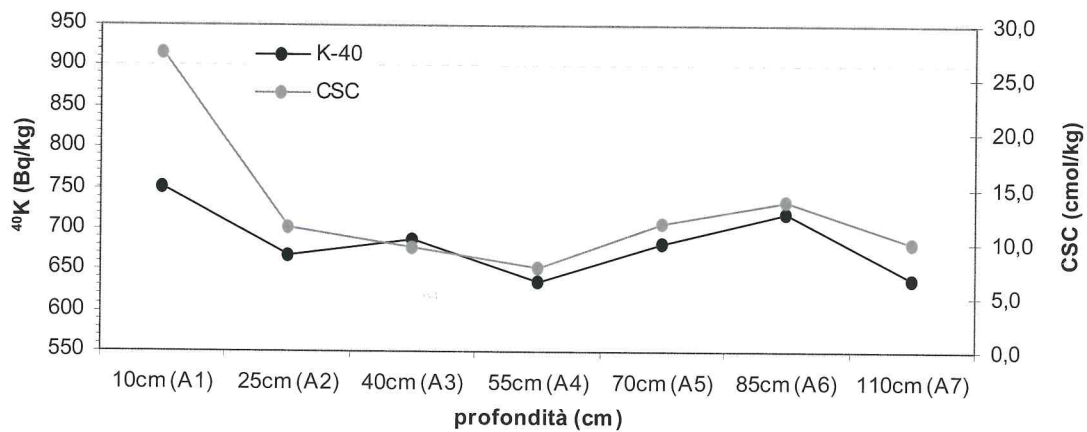


Fig. 24 - Confronto tra andamento dell'attività specifica del ^{40}K e la CSC nello scavo A.

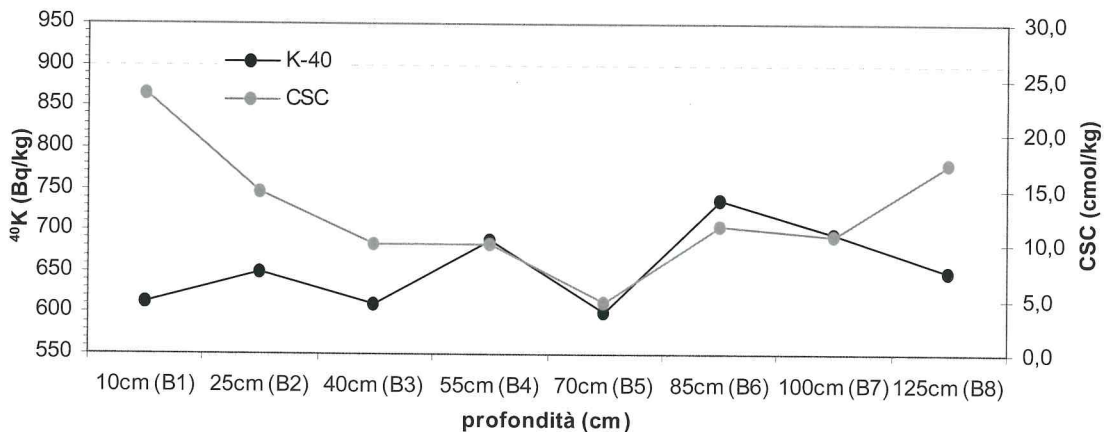


Fig. 25 - Confronto tra andamento dell'attività specifica del ^{40}K e la CSC nello scavo B.

ratteristica risulta particolarmente evidente per gli scavi A e C come si può osservare nei grafici (fig. 24÷26).

Le attività specifiche del ^{40}K sono perfettamente in accordo con i valori riportati in letteratura

per il territorio nazionale (Brai *et al.*, 2002).

2.5. ^{137}Cs

Il cesio in natura è presente unicamente come isotopo 133 (abbondanza pari al 100%) per-

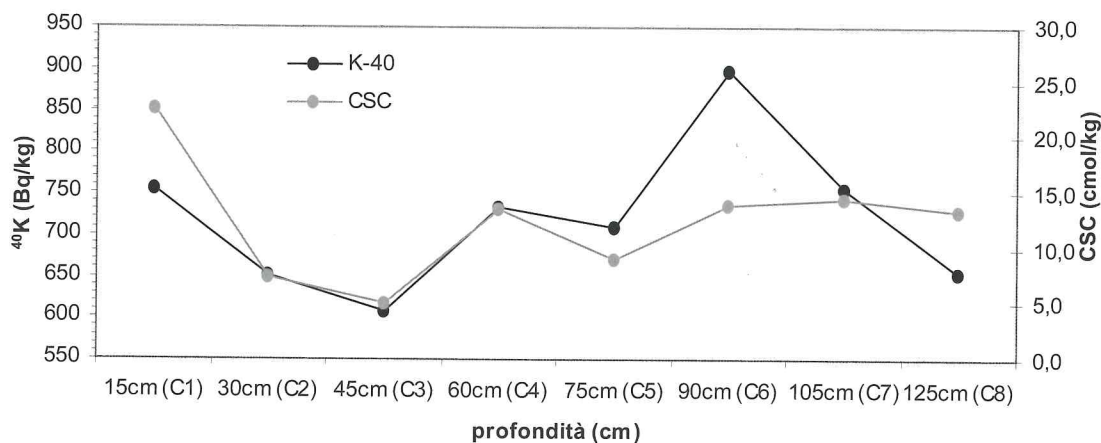


Fig. 26 - Confronto tra andamento dell'attività specifica del ^{40}K e la CSC nello scavo C.

tanto l'elemento cesio è costituito al 100% da questo radionuclide non radioattivo. Nonostante ciò vi sono alcuni isotopi del cesio, prodotti artificialmente attraverso fissione nucleare (^{134}Cs e ^{137}Cs), che a seguito di esperimenti nucleari o incidenti avvenuti in impianti come centrali nucleari sono stati dispersi nell'ambiente.

Per quanto riguarda la radioattività di natura antropica entrata a far parte del fondo ambientale, l'unico radionuclide emettitore di radiazioni γ attualmente presente, seppur in diverse concentrazioni, nelle matrici ambientali è l'isotopo 137 del Cs.

La contaminazione ambientale dovuta a questo radionuclide risale all'aprile 1986 quando, in seguito all'incidente avvenuto ad uno dei reattori della centrale nucleare di Chernobyl (Ucraina), fu prodotta una nube radioattiva che nei giorni successivi interessò, in modo più o meno rilevante, molte zone dell'Europa.

Inizialmente la contaminazione riguardò il particolato atmosferico, ma nei giorni successivi, a seguito delle ricadute umide e secche (fall-out), furono interessate anche acqua, suolo, specie vegetali ed animali. I rilievi effettuati in quei giorni nel territorio lombardo evidenziarono una contaminazione disomogenea, più consistente nella zona nord-ovest, in particolare tra Como, Lecco e Varese. Indagini condotte sul particolato atmosferico mostrarono la presenza di ^{131}I , ^{132}Te , ^{137}Cs e ^{90}Sr . I primi due radioisotopi hanno tempo di dimezzamento breve, 78,2 ore il primo e circa 8 giorni il secondo, pertanto la loro presenza nel particolato atmosferico fu ben visibile nei giorni immediatamente successivi all'incidente ma le concentrazioni diminuirono molto rapidamente in poche settimane.

Con il trascorrere del tempo l'attenzione fu indirizzata verso la determinazione delle concentrazioni di ^{137}Cs , e ^{134}Cs (il primo radionuclide ha tempo di dimezzamento di circa 30 anni, il secondo

2 anni).

La contaminazione delle acque avvenne secondo due meccanismi: per ricaduta atmosferica diretta⁵ e dilavamento del suolo. In Europa la contaminazione delle acque di superficie è diminuita rapidamente per diluizione e per assorbimento da parte dei sedimenti che costituiscono i fondali. Nelle acque profonde non sono mai state registrate elevate concentrazioni, infatti, il suolo attraverso il quale scorrono le acque meteoriche contaminate svolge azione filtrante. Giunti al suolo i radionuclidi seguono vie di dispersione come la migrazione verticale o l'assorbimento nell'apparato radicale delle piante pertanto, anche il ^{137}Cs trovandosi disperso nel suolo viene assorbito dalle piante e concentrato nelle specie fungine.

Alcuni studi condotti sulla velocità di migrazione verticale di questo radionuclide mostrano valori pari a $0,1 \pm 0,3$ cm all'anno mentre per la migrazione orizzontale (quantità trasportata dalle acque di fiumi o torrenti) si ha lo 0,2% all'anno (El-Reefly *et al.*, 2006). Chiaramente questi due parametri sono fortemente influenzati dalle caratteristiche chimico fisiche del suolo pertanto, per una valutazione significativa dello stato attuale della radioattività ambientale prodotta da questo radioisotopo, è necessario approfondire la natura di eventuali scambi e assorbimenti che si possono verificare.

La valutazione delle attività specifiche del radiocesio nell'ambito di un ambiente indisturbato dal punto di vista antropico, come Bosco Negri, permette sia una valutazione dell'attuale stato di contaminazione dell'area sia un'ulteriore verifica di eventuali diffusioni, accumuli o migrazioni.

Per la determinazione con spettrometria γ dell'attività del ^{137}Cs è stato utilizzato il picco a 661,7 keV (probabilità di transizione γ : 85,2%). Le Tab. 19-21 ed i grafici Fig. 27-29 illustrano i risultati ottenuti nelle stazioni di campionamento.

Campione	10 cm (A1)	25 cm (A2)	40 cm (A3)	55 cm (A4)	70 cm (A5)	85 cm (A6)	110 cm (A7)
^{137}Cs (Bq kg ⁻¹)	22,3	0,3	0,1	0,4	0,1	0,4	1,5

Tab. 19 - Attività specifiche dell' ^{137}Cs nello scavo A.

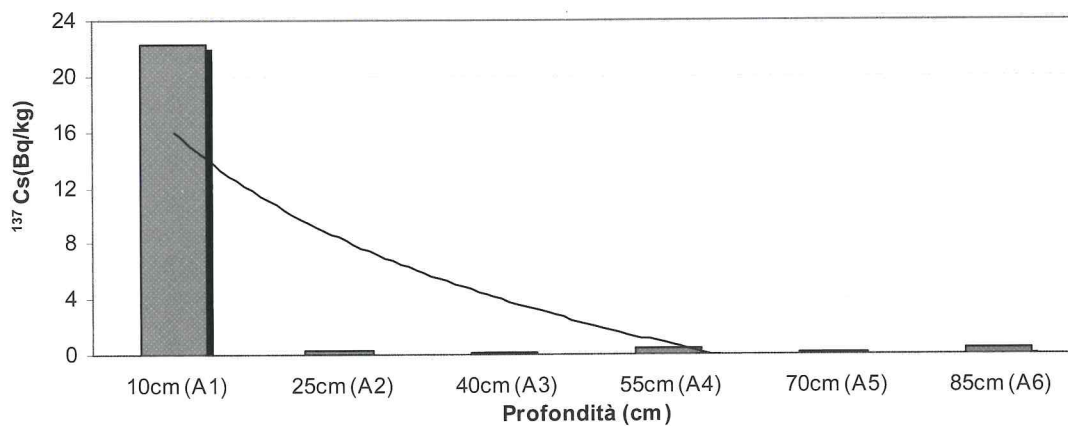


Fig. 27 - Grafico ad istogramma che rappresenta l'andamento dell'attività specifica del ^{137}Cs nello scavo A.

Campione	10 cm (B1)	25 cm (B2)	40 cm (B3)	55 cm (B4)	70 cm (B5)	85 cm (B6)	100 cm (B7)
^{137}Cs (Bq kg ⁻¹)	17,0	0,8	0,9	0,7	0,6	0,9	0,9

Tab. 20 - Attività specifiche dell' ^{137}Cs nello scavo B.

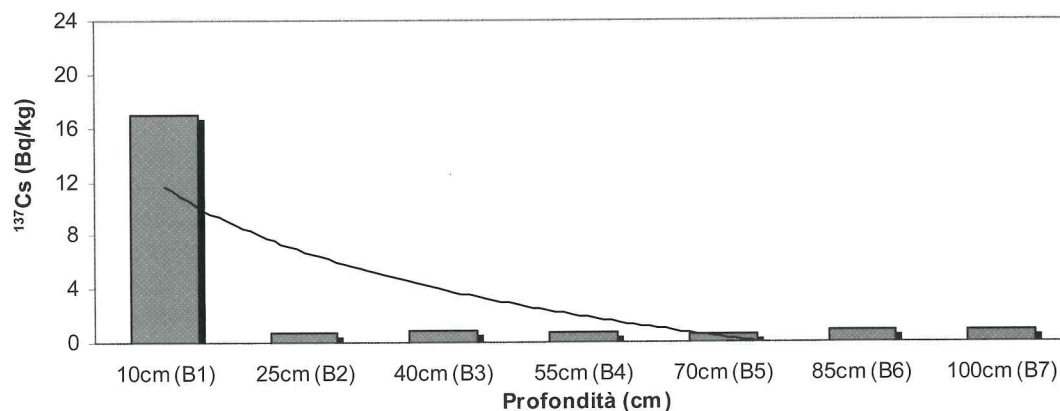


Fig. 28 - Grafico ad istogramma che rappresenta l'andamento dell'attività specifica del ^{137}Cs nello scavo B.

Campione	15 cm (C1)	30 cm (C2)	45 cm (C3)	60 cm (C4)	75 cm (C5)	90 cm (C6)	105 cm (C7)
^{137}Cs (Bq kg ⁻¹)	16,9	0,7	0,6	0,9	0,8	1,0	1,0

Tab. 21 - Attività specifiche dell' ^{137}Cs nello scavo C.

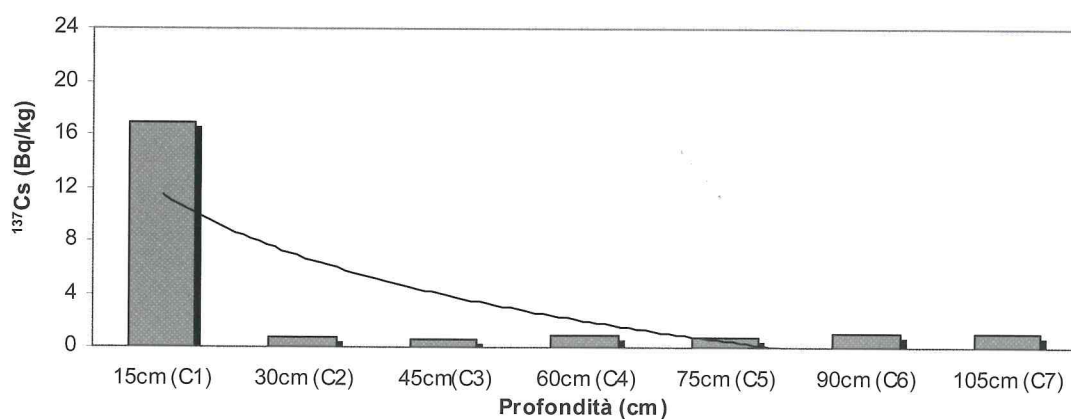


Fig. 29 - Grafico ad istogramma che rappresenta l'andamento dell'attività specifica del ^{137}Cs nello scavo C.

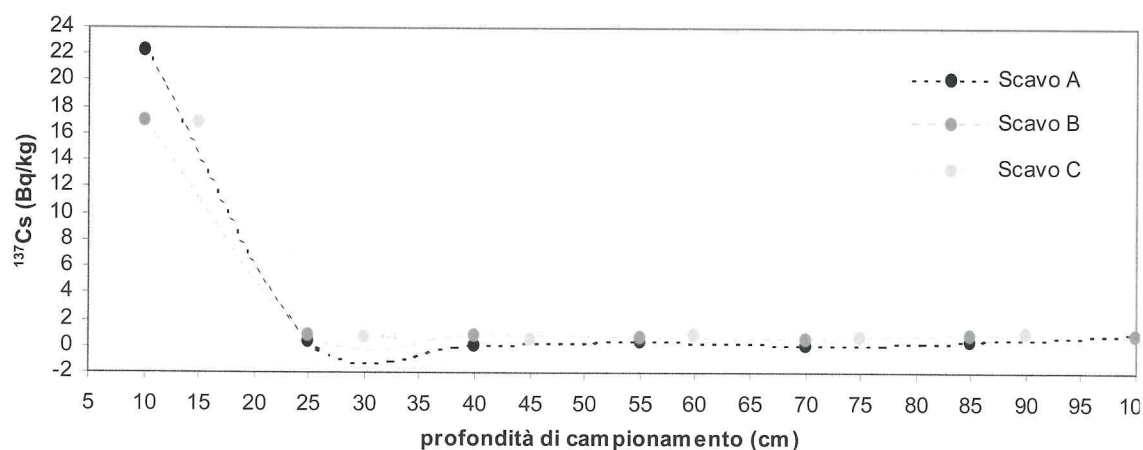


Fig. 30 - Confronto dell'andamento delle attività specifiche del ^{137}Cs nei tre scavi.

L'attività specifica per questo radionuclide risulta elevata entro i 10÷15 cm di profondità in tutte le stazioni di campionamento con valore maggiore nello strato superficiale della scavo nord, confinante con il fiume Ticino, e valore costante per gli scavi B e C, quest'ultimo confinante con il canale e soggetto a numerosi fenomeni di inondazione nei periodi di piena. Nel grafico seguente (fig. 30) si riporta l'andamento del ^{137}Cs nei tre scavi.

La presenza di ^{137}Cs solo nello strato più superficiale del suolo è in perfetto accordo con quanto evidenziato dalla letteratura (Arapis & Karandinos, 2004). Infatti, essendo la velocità di migrazione verticale, per un suolo debolmente acido a basso contenuto di sostanza organica (circa 3%), compresa tra 0,1 e 0,3 cm all'anno, considerando che sono trascorsi diciannove anni dall'incidente di Chernobyl alla data di campionamento dei suoli, la massima attività per il ^{137}Cs dovrebbe interessare profondità comprese tra circa 2 e 6 cm. Il fatto che le massime attività specifiche siano state determinate a profondità superiore (10÷15 cm) dipende

dalla complessità della matrice suolo. E' possibile attribuire la maggiore attività specifica dello scavo A ad una maggiore dotazione di sostanza organica in associazione alla percentuale di argilla (Staunton, 1997). Infatti i grafici seguenti (Fig. 31÷33) mostrano chiaramente che il campione prelevato a 10 cm di profondità nello scavo A presenta una maggiore quantità di argilla, a parità di sostanza organica, rispetto al campione prelevato alla stessa profondità nello scavo B. Per quanto riguarda il campione più superficiale dello scavo C, si può affermare che l'attività specifica del ^{137}Cs , pur essendo uguale a quella del campione prelevato a 10 cm nello scavo B, è stata misurata a 15 cm di profondità dove, secondo quanto detto precedentemente, l'attività del radionuclide dovrebbe decrescere. Pertanto, si ritiene possibile che alla profondità di 10 cm nello scavo C, il ^{137}Cs sia presente in quantità superiore rispetto agli altri due scavi.

Questa affermazione ci permette anche di ipotizzare il trasporto da parte dell'acqua di ^{137}Cs , durante le inondazioni (migrazione orizzontale).

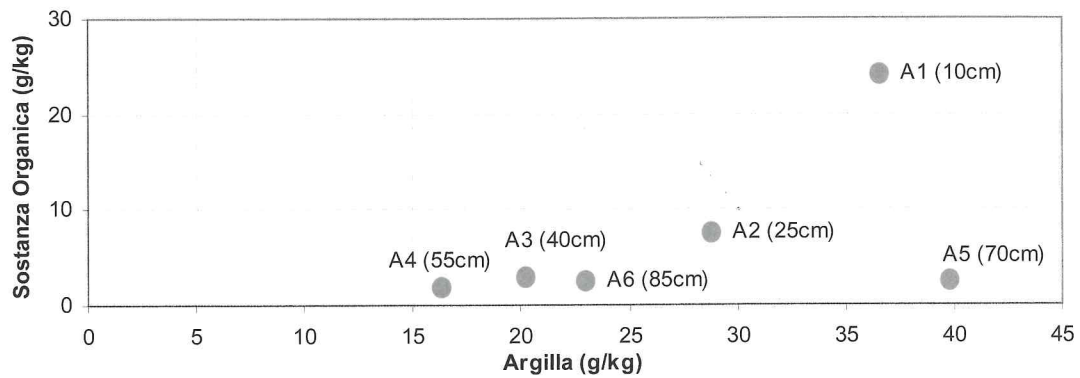


Fig. 31 - Dotazione di sostanza organica ed argilla per il profilo pedologico dello scavo A.

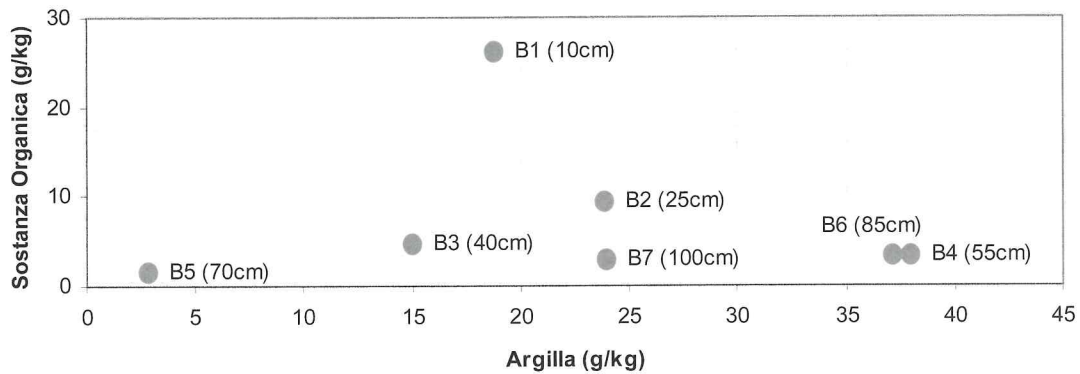


Fig. 32 - Dotazione di sostanza organica ed argilla per il profilo pedologico dello scavo B.

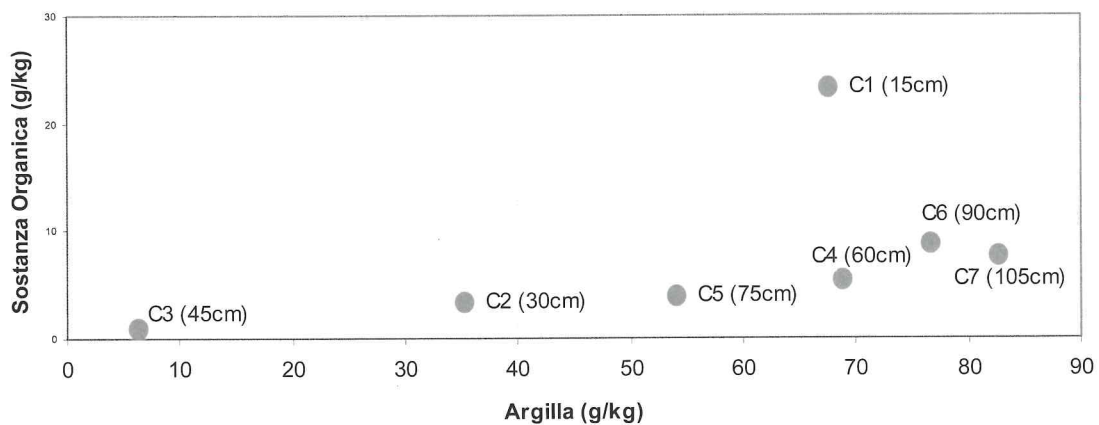


Fig. 33 - Dotazione di sostanza organica ed argilla per il profilo pedologico dello scavo C.

Tali fenomeni, nel Bosco Negri, sono più frequenti per gli scavi posti a minore distanza dai corsi d'acqua (A e C).

Altro parametro chimico che giustifica le significative attività specifiche di ^{137}Cs negli strati superficiali del suolo campionato nella riserva naturale, è l'acidità (Van Bergeijk *et al.*, 1992). Il valore di pH medio, determinato nei campioni più superficiali, indica una reazione acida per il suolo, in grado di favorire lo sviluppo di microflora fungina a disca-

pito di quella batterica. La composizione chimico-fisica del suolo in associazione alla presenza di funghi, giustifica le elevate attività di cesio riscontrate nell'area sottoposta ad indagine.

3. Conclusioni

Le indagini radiometriche condotte nella Riserva Naturale Integrale hanno dimostrato condizioni di equilibrio secolare per le due serie radioattive dell'Uranio e del Torio. Le analisi mediante spettro-

metria γ , per la serie dell'Uranio hanno evidenziato un andamento regolare per i figli dell' ^{238}U con attività medie di circa 5 Bq per gli scavi posti a nord ed al centro mentre per lo scavo posto a sud valori compresi tra 3 e 6 Bq. Le attività specifiche massime per il capostipite della serie (^{238}U) sono circa 54 Bq kg^{-1} per gli scavi A, B e circa 62 Bq kg^{-1} per lo scavo C.

L'indagine ha evidenziato, inoltre, una relazione significativa tra l'andamento delle attività specifiche dell' ^{238}U e la tessitura del suolo, in particolar modo per quanto riguarda le percentuali di argilla e limo (soprattutto per gli scavi A e C). Il valore minimo, negli scavi A e C, si raggiunge in corrispondenza dello strato caratterizzato da un'elevata percentuale di sabbia (strato S).

Inoltre, si può affermare che, sino alla profondità di circa 50 cm per gli scavi A e B e sino al fondo dello scavo C, l'attività specifica dell' ^{238}U è direttamente proporzionale alla capacità di scambio cationico.

Le attività specifiche per il capostipite della serie del Torio (^{232}Th), calcolate sulle attività dell' ^{228}Ac , hanno valori compresi tra 55 e 30 Bq kg^{-1} per gli scavi A e B ed una variazione più significativa (tra 60 e 20 Bq kg^{-1}) per lo scavo C. Negli scavi B e C il valore inferiore si raggiunge alla profondità

dello strato S caratterizzato da una forte diminuzione delle percentuali di argilla, limo e bassa capacità di scambio.

Per quanto riguarda l'isotopo 40 del potassio, le attività specifiche nel profilo pedologico del contesto boschivo, variano tra 600 e 900 Bq kg^{-1} ; il valore inferiore si raggiunge, per tutti gli scavi, in corrispondenza dello strato S. Le indagini hanno dimostrato un aumento dell'attività specifica media da nord a sud ed una significativa correlazione con umidità e capacità di scambio cationico.

Per quanto riguarda l'unico radionuclide artificiale, emettitore di radiazioni γ presente nella matrice del suolo, il ^{137}Cs , l'attività specifica media (circa 19 Bq kg^{-1}) è distribuita entro i 10÷15 cm di profondità ed inferiore ad 1 Bq kg^{-1} a maggiore profondità. L'attività specifica maggiore (circa 20 Bq kg^{-1}) è stata determinata nello scavo nord. Le indagini hanno altresì evidenziato una forte correlazione tra questo parametro ed alcune caratteristiche chimico-fisiche del suolo quali la quantità di sostanza organica in associazione alla percentuale di argilla ed il pH, quest'ultimo nello strato più superficiale evidenzia una reazione acida in grado di favorire lo sviluppo di specie fungine che agiscono da accumulatori di radiocesio.

Finanziamento

Il presente lavoro è stato realizzato su finanziamento del Ministero dell'Ambiente e della Tutela del Territorio.

Note (Footnotes)

¹ D.Lgs 230/95 modifiche ed integrazioni D.Lgs 241/00; allegato I, sezione I, punto 4 (4.1 e 4.2)

² D.Lgs 230/95: *Capo II, art. 4 (Definizioni)*: quoziente di dN diviso per dt in cui dN è il numero atteso di transizioni nucleari spontanee di una determinata quantità di un radionuclide da uno stato particolare di energia in un momento determinato t , nell'intervallo di tempo dt

³ D.Lgs 230/95: *Capo II, art. 4 (Definizioni)*: nome speciale dell'unità di attività (A); 1 Bq equivale ad una transizione per secondo 1 Bq=1 s^{-1}

⁴ Attività specifica: attività prodotta da un radionuclide in 1 chilogrammo di campione; l'unità di misura dell'attività specifica è Bq kg^{-1}

⁵ Per una maggiore comprensione dell'importanza ambientale che comporta una contaminazione di questa entità con ^{137}Cs , si sottolinei che le indagini radiometriche eseguite sul particolato atmosferico della zona di Milano hanno evidenziato la presenza di tracce di tale radioisotopo sino all'anno 2002, con picchi nei periodi invernali

Bibliografia

- ADSLEY I., BACKHOUSE J. S., NICHOLS A. L., TOOLE J., 1998, *U-238 decay chain: resolution of observed anomalies in the measured secular equilibrium between Th-234 and daughter Pa-234m*, Applied Radiation and Isotopes, 49: 1337-1344
- ARAPIS G. D., KARANDINOS M. G., 2004, *Migration of ¹³⁷Cs in the soil of sloping semi-natural ecosystems in Northern Greece*, Journal of Environmental Radioactivity, 77: 133-142
- BRAI M., BASILE S., BELLIA S., HAUSER S., PUCCIO P., RIZZO S., BARLOTTA A., LICCIARDELLO A., 2002, *Environmental radioactivity at Stromboli (Aeolian Island)*, Applied Radiation and Isotopes, 57: 99-107
- EL-REEFLY H. I., SARSHAR T., ZAGHLOUL R., 2006, *Distribution of gamma-ray emitting radionuclides in the environment of Burullus Lake: I. Soils and vegetations*, Journal of Environmental Radioactivity, 87: 148-169
- STAUNTON S., 1997, *On the mechanisms which determine the fate of radiocaesium in soil*, Analysis, 25: M24-M28
- TSABARIS C., ELEFHERIOU G., KAPSIMALIS V., ANAGNOSTOU C., VLASOU R., DURMISHI C., KEDHI M., KALFAS C.A., 2007, *Radioactivity levels of recent sediments in the Butrint Lagoon and the adjacent coast of Albania*, Applied Radiation and Isotopes, 65: 445-453
- VAN BERGEIJK K. E., NOORDIJK H., LEMBRECHTS J., FRISSEL M. J., 1992, *Influence of pH, soil type and soil organic matter content on soil-to-plant transfer of radiocaesium and strontium as analyzed by a nonparametric method*, Journal Environmental radioactivity, 15: 265-276