

Sviluppo di protocolli di campionamento e di valutazione della dose per settori industriali con presenza di NORM

R. Ugolini¹, F. Trotti¹, E. Caldognetto¹, S. Bucci², I. Peroni², A. De Stena², G. Pratesi², C. Nuccetelli³, G. Venoso³, A. Bogi⁴, F. Picciolo⁵, F. Leonardi⁶, L. Luzzi⁷, G. La Verde⁸, F.R. Trevisi⁶, M. Pugliese⁸

¹ARPAV - Dipartimento Regionale Rischi Tecnologici e Fisici - Unità Organizzativa Complessa Agenti Fisici

²ARPAT – Unità Operativa Radioattività e Amianto – Settore Laboratorio Area Vasto Centro

³Istituto Superiore di Sanità Roma - Centro Nazionale per la Protezione dalle Radiazioni e Fisica Computazionale

⁴Azienda USL Toscana Sud Est - Laboratorio di Sanità Pubblica

⁵Università degli Studi di Siena - DFTA

⁶INAIL- Istituto nazionale per l'assicurazione contro gli infortuni sul lavoro - Settore Ricerca – DiMEILA

⁷Sapienza, Università di Roma

⁸Università degli Studi di Napoli "Federico II" - Dipartimento di Fisica "Ettore Pancini"

raffaella.ugolini@arpa.veneto.it

Riassunto

Nell'ambito delle attività del progetto INAIL - BRIC ID 30 "Protocolli operativi e metodologie di calcolo per l'attuazione della nuova normativa di radioprotezione, recepimento della Direttiva 59/2013/Euratom, in settori industriali NORM di particolare impatto radiologico", è stato sviluppato un approccio metodologico per gli adempimenti previsti dall'art. 22 del D.lgs. 101/2020. Una proposta di protocollo per la misura della concentrazione di attività delle matrici e per la valutazione della dose efficace per lavoratori e popolazione è stata elaborata per il settore della produzione di cemento e per l'industria dello zirconio e zirconio.

INTRODUZIONE

Nell'ambito delle attività del progetto INAIL - BRIC ID 30 "Protocolli operativi e metodologie di calcolo per l'attuazione della nuova normativa di radioprotezione, recepimento della Direttiva 59/2013/Euratom, in settori industriali NORM di particolare impatto radiologico" è stata elaborata una proposta metodologica per l'attuazione dell'art. 22 del D.lgs. 101/2020 con l'obiettivo di sviluppare uno strumento di supporto non solo per gli esercenti, ma anche per gli esperti di radioprotezione e per tutte le figure tecniche coinvolte nelle fasi di controllo.

Di seguito vengono presentate le metodologie sviluppate per due dei settori industriali elencati nell'allegato II del D.lgs. 101/2020:

- produzione di cemento;
- industria dello zirconio e dello zirconio.

LA METODOLOGIA: SCHEMA GENERALE

Nello sviluppo della proposta metodologica gli studi del passato sono stati integrati con nuovi approfondimenti, visite presso aziende NORM, analisi di campioni in laboratorio, misure in

campo e confronti con gli esercenti. La metodologia finora sviluppata si basa sulla conoscenza del ciclo produttivo, che è fondamentale per poter individuare correttamente le matrici da sottoporre ad analisi. L'individuazione delle matrici di interesse è strettamente correlata agli scenari espositivi per i lavoratori e per il pubblico. A scopo metodologico, le matrici nel ciclo produttivo possono essere suddivise in 5 gruppi: materie prime, residui, effluenti liquidi, effluenti aeriformi, prodotti. La radioattività naturale entra nell'impianto industriale con le materie prime e, a seconda delle lavorazioni eseguite, si può ritrovare nei residui, negli effluenti e nei prodotti. Analizzando con un certo dettaglio le fasi lavorative e i processi chimici e fisici presenti, è possibile individuare le matrici di interesse.

È rappresentato in forma di tabella il legame tra le informazioni acquisite per le matrici e gli scenari di esposizione per i lavoratori e la popolazione (Tabella 1, Tabella 6).

Nell'ambito del progetto, è stata sviluppata una metodologia generale, che è possibile adattare e declinare per i diversi settori industriali NORM indicati nella normativa. La metodologia generale si articola in due fasi:

- Fase 1. Verifica del rispetto dei livelli di esenzione in termini di concentrazione di attività.
- Fase 2. Verifica del rispetto dei livelli di esenzione in termini di dose efficace.

I dettagli sono illustrati nell'articolo *“La radioprotezione applicata alle industrie NORM: sviluppo di un sistema di strumenti metodologici, conoscitivi e formativi a sostegno degli stakeholders. Stato dell'arte del progetto di INAIL”*, pubblicato in questo volume (Trevisi R. et al., 2022).

FASE 1. VERIFICA DEL RISPETTO DEI LIVELLI DI ESENZIONE IN TERMINI DI CONCENTRAZIONE DI ATTIVITÀ

Nella fase 1 viene verificata l'esenzione in termini di concentrazione di attività. Per fare ciò, occorre per prima cosa campionare e sottoporre ad analisi le matrici solide riferite alla pratica; è necessario conoscere la destinazione dei residui per poter procedere correttamente al confronto con i livelli di esenzione della normativa, che possono assumere valori diversi (vedi Appendice). La fase 1 della metodologia viene quindi riassunta attraverso una tabella (si vedano di seguito le Tabelle 2 e 7) in cui sono indicate le informazioni riguardo le tecniche di analisi e i radionuclidi da determinare.

FASE 2. VERIFICA DEL RISPETTO DEI LIVELLI DI ESENZIONE IN TERMINI DI DOSE EFFICACE.

La fase 2 della verifica di esenzione della pratica prevede la valutazione della dose efficace per lavoratori e individui rappresentativi della popolazione. Prima di procedere con il calcolo, è necessario completare la raccolta dei dati di input per i modelli, che comprendono sicuramente, oltre a quanto già raccolto nella fase 1, la misura della concentrazione di attività dei radionuclidi negli effluenti (laddove presenti), in altri residui e/o materie prime e/o nei prodotti.

Un aspetto importante da chiarire in questa fase è la distinzione tra lavoratori ed individui della popolazione ai sensi della normativa, visto che i rispettivi livelli di esenzione in termini di dose efficace sono diversi.

L'allontanamento dei residui dall'azienda NORM che li produce è un secondo aspetto rilevante. La normativa introduce i livelli di allontanamento, espressi in termini di concentrazione di attività, come condizione da rispettare per i residui affinché questi possano lasciare l'azienda NORM (vedi Appendice). Tali livelli garantiscono che la dose efficace per lavoratori e popolazione sia inferiore rispettivamente a 1 mSv/anno e 0,3 mSv/anno.

Per quanto riguarda i prodotti, questi vanno considerati per gli adempimenti dell'art. 22 nel caso siano previste delle lavorazioni all'interno dell'azienda che comportano l'esposizione dei lavoratori.

Una volta acquisiti tutti i dati di input, si procede con la valutazione della dose efficace per la quali è opportuno fare uso di strumenti di screening che semplificano il calcolo e forniscono una prima indicazione sull'esposizione (ISPRA, 2015). Si può eventualmente procedere in un secondo momento ad un calcolo più approfondito nel caso in cui la stima di screening fornisca valori di dose efficace superiori ai livelli di esenzione/allontanamento.

La fase 2 della metodologia viene quindi riassunta in due tabelle; nella prima sono indicate le matrici aggiuntive da sottoporre a campionamento ed analisi, e nella seconda vengono presentati gli scenari espositivi e le vie di esposizione da considerare per il calcolo della dose efficace per lavoratori e individui della popolazione.

Si riportano di seguito le proposte metodologiche sviluppate per i seguenti settori industriali della Tabella II-1 del D.lgs. 101/2020: "Produzione di cemento" e "Industria dello zirconio e dello zirconio".

PROPOSTA METODOLOGICA PER IL SETTORE INDUSTRIALE "PRODUZIONE DI CEMENTO"

La Tabella II-1 dell'Allegato 2 del D.lgs. 101/2020 individua tra i settori industriali NORM anche la produzione di cemento con riferimento alla pratica della manutenzione dei forni per la produzione di clinker. Vengono automaticamente esclusi dagli obblighi introdotti dal D.lgs. 101/2020 tutti i cementifici che non hanno un forno clinker. Il clinker è il principale componente dei cementi, viene prodotto a partire prevalentemente da calcare e argilla che sono opportunamente macinati e miscelati prima di essere immessi nel forno. Nel forno, calcare, argilla e altri ingredienti subiscono un processo termico ad alte temperature (1500 °C) e danno origine al clinker. Il clinker si presenta come un insieme di palline solide che, dopo il raffreddamento, vengono macinate per poter essere miscelate a gesso e altri materiali per formare i diversi tipi di cemento. Da un punto di vista radioprotezionistico, la parte del ciclo produttivo di maggiore interesse è proprio il processo termico, durante il quale i due radionuclidi maggiormente volatili, Po-210 e Pb-210, si separano dagli altri e si concentrano nelle polveri e nelle incrostazioni del forno. Le incrostazioni devono essere rimosse durante le operazioni di manutenzione (mediamente 1 o 2 volte all'anno) e vengono re-immesse nel forno. L'operazione di rimozione delle incrostazioni può essere svolta manualmente o con l'aiuto di mezzi meccanici.

Per quanto riguarda l'individuazione delle matrici e degli scenari espositivi per lavoratori e pubblico, nella Tabella 1 sono riportate le matrici identificate nel ciclo produttivo della produzione di cemento; per ciascuna matrice viene indicato il tipo di esposizione (lavoratori e/o popolazione) e il possibile scenario espositivo.

Tabella 1 - Matrici e scenari espositivi per il settore industriale "produzione di cemento"

Matrice		Esposizione di	Scenari espositivi
Materie prime	Pozzolane, ceneri volanti, altri materiali con contenuto significativo di NORM	Lavoratori/popolazione	Trasporto
Residui	Polveri di abbattimento del forno clinker, incrostazioni del forno clinker	Lavoratori	Rimozione delle incrostazioni, gestione, raccolta, carico, scarico, trasporto
Effluenti gassosi	Polveri/gas emessi dal camino del forno clinker	Popolazione	Rilascio di effluenti gassosi dal camino del forno clinker

Non sono presenti effluenti liquidi perché non viene utilizzata acqua nella produzione di cemento.

Considerando l'identificazione della "pratica" relativamente ai cementifici, si deduce che le materie prime non dovrebbero essere di interesse per gli adempimenti dell'art. 22. Tuttavia, nella metodologia si suggerisce di considerarle nel caso in cui siano presenti materiali noti per il contenuto non trascurabile di radionuclidi naturali, per poterne tener conto nella valutazione più generale di sicurezza dei lavoratori ai sensi del D.lgs. 81/2008.

Fase 1. Verifica del rispetto dei livelli di esenzione in termini di concentrazione di attività

In Tabella 2 sono mostrate le matrici da sottoporre a campionamento e analisi ai fini della verifica di esenzione in termini di concentrazione di attività; per ogni matrice sono indicati la tecnica di analisi da adottare e i radionuclidi da misurare.

I radionuclidi delle catene di decadimento di U-238 e di Th-232 sono in disequilibrio in entrambi i residui, quindi tramite spettrometria gamma vanno misurate le concentrazioni di attività per i rispettivi segmenti di catena. Vista la presenza del processo termico, i campioni vanno sottoposti anche a spettrometria alfa per la determinazione della concentrazione di attività del Po-210.

Tabella 2 - Matrici solide e tecniche di analisi

	Matrice	Tecnica di analisi	Radionuclidi
Residui	Polveri di abbattimento del forno clinker	Spettrometria gamma Spettrometria alfa	K-40, segmenti di catena U-238 e Th-232, Po-210
	Incrostazioni del forno clinker	Spettrometria gamma Spettrometria alfa	K-40, segmenti di catena U-238 e Th-232, Po-210

Nel caso dei cementifici, sia le polveri di abbattimento del forno clinker sia le incrostazioni sono generalmente riciclate nell'impianto, pertanto i livelli di esenzione da considerare ai fini dell'esenzione sono quelli dell'Allegato II, sezione II, paragrafo 2, punti 1 e 2 del D.lgs. 101/2020 (riportati nell' Appendice del presente lavoro).

Fase 2. Verifica del rispetto dei livelli di esenzione in termini di dose efficace

In Tabella 3 sono mostrate le ulteriori matrici da sottoporre a campionamento ed analisi nel caso sia necessario procedere con la valutazione della dose efficace per lavoratori e popolazione.

Tabella 3 - Matrici aggiuntive da sottoporre a campionamento ed analisi

	Matrice	Tecnica di analisi	Radionuclidi
Effluenti	Effluente aeriforme in uscita dal forno clinker	Spettrometria gamma Spettrometria alfa	K-40, segmenti di catena U-238 e Th-232, Po-210

La concentrazione di attività dei radionuclidi nell'effluente aeriforme in uscita dal camino del forno clinker è indispensabile per poter valutare la dose efficace alla popolazione. È possibile, tuttavia, con opportune considerazioni e assunzioni, dedurre la concentrazione di attività nell'effluente aeriforme a partire dalle misure eseguite sulle polveri di abbattimento dello stesso forno.

Nelle tabelle 4 e 5 sono elencati, in riferimento alle matrici, gli scenari specifici e le vie di esposizione per lavoratori e popolazione.

Tabella 4 - Matrici e scenari di esposizione per i lavoratori

Matrice	Nome delle matrici	Scenari specifici	Vie di esposizione
Residui	Polveri di abbattimento del forno clinker	Gestione, raccolta, carico, scarico, trasporto	Irraggiamento, inalazione, radon
	Incrostazioni del forno clinker	Rimozione delle incrostazioni, gestione, raccolta, carico, scarico, trasporto	Irraggiamento, inalazione, radon

Tabella 5 - Matrici e scenari di esposizione per la popolazione

Matrice	Nome delle matrici	Scenari specifici	Vie di esposizione
Effluenti	Effluente aeriforme in uscita dal forno clinker	Rilascio dal camino del forno clinker	Irraggiamento, inalazione, catena alimentare

PROPOSTA METODOLOGIA PER L'INDUSTRIA DELLO ZIRCONE E DELLO ZIRCONIO, PRODUZIONE DI REFRAATTARI

Il settore industriale definito in Tabella II-2 come "Industria dello zirconio e dello zirconio" è molto ampio e comprende come pratica "la lavorazione delle sabbie zirconifere, la produzione di refrattari, ceramiche, piastrelle, la produzione di ossido di zirconio e zirconio metallico". La proposta di metodologia è stata sviluppata basandosi sul ciclo produttivo della produzione di refrattari, ma è sicuramente modificabile ed adattabile anche alle altre tipologie di produzioni del medesimo settore.

Nella produzione di refrattari, le sabbie zirconifere, mescolate con allumina e silice, sono sottoposte ad un processo termico ad alta temperatura (1900 °C nel caso di materiale elettrofuso AZS): il materiale fuso viene colato in stampi, lasciato raffreddare e rilavorato tramite operazioni di taglio e finissaggio per ottenere i mattoni refrattari delle giuste dimensioni.

La norma non identifica come pratica un particolare momento del ciclo produttivo, pertanto per gli adempimenti dell'art. 22 va considerato l'intero ciclo produttivo. Inoltre, è noto che la concentrazione di attività dei radionuclidi della catena dell'U-238 nelle sabbie zirconifere naturali è compresa tra 2000 Bq/kg e 4000 Bq/kg, superiore a 1000 Bq/kg (cioè al livello di esenzione previsto dalla normativa). Segue da ciò che l'esenzione della pratica è possibile solo se si verifica il rispetto dei livelli di dose efficace per lavoratori e popolazione.

Per quanto riguarda l'individuazione delle matrici e degli scenari espositivi, nella Tabella 6 sono riportate le matrici identificate nel ciclo produttivo della produzione di refrattari; per ciascuna matrice viene indicato il tipo di esposizione (lavoratori e/o popolazione) e il possibile scenario espositivo.

Tabella 6 - Matrici e scenari espositivi per l'industria dello zirconio e dello zirconio

Matrice	Nome delle matrici	Esposizione di	Scenari espositivi
Materie prime	– materie prime di origine naturale e artificiale	Lavoratori	Esposizione ai cumuli, trasporto
		Popolazione	trasporto
Residui	<ul style="list-style-type: none"> – polvere di abbattimento del forno fusorio – polvere di abbattimento dell'impianto di macinazione – fango del depuratore interno – scarto di macinazione – sabbie dal raffreddamento dei mattoni refrattari 	Lavoratori	Gestione, raccolta, carico, scarico, trasporto
		Popolazione	Trasporto, allontanamento (recupero)
Effluenti liquidi	Acqua reflua	Popolazione	Rilascio in fognatura
Effluenti gassosi	Polveri/gas emessi dal camino del forno fusorio e dal camino dell'impianto di macinazione	Popolazione	Rilascio di effluenti gassosi dal camino del forno fusorio e dal camino di macinazione
Prodotti	Mattoni refrattari	Lavoratori	Finitura dei mattoni refrattari, trasporto

Fase 1. Verifica del rispetto dei livelli di esenzione in termini di concentrazione di attività

In Tabella 7 sono mostrate le matrici da sottoporre a campionamento e analisi ai fini della verifica di esenzione in termini di concentrazione di attività; per ogni matrice sono indicati la tecnica di analisi da adottare e i radionuclidi da misurare. I radionuclidi delle catene di decadimento di U-238 e di Th-232 sono in equilibrio solo nelle materie prime di origine naturale, in tutte le altre matrici si instaura una condizione di disequilibrio. Vista la presenza del processo termico, le polveri di abbattimento del forno fusorio devono essere sottoposte anche a spettrometria alfa per la determinazione della concentrazione di attività del Po-210.

Tabella 7 - Matrici solide e tecniche di analisi

Matrice	Nome delle matrici	Tecnica di analisi	Radionuclidi
Materie prime	Materie prime di origine naturale	Spettrometria gamma	K-40, catena U-238 e Th-232
	Materie prime di origine artificiale		K-40, segmenti di catena U-238 e Th-232
Residui	Polvere di abbattimento del forno fusorio	Spettrometria gamma Spettrometria alfa	K-40, segmenti di catena U-238 e Th-232, Po-210
	Polvere di abbattimento dell'impianto di macinazione	Spettrometria gamma	K-40, segmenti di catena U-238 e Th-232
	Scarto di macinazione		
	Fango del depuratore interno		
	Sabbie dal raffreddamento dei mattoni refrattari		

Fase 2. Verifica del rispetto dei livelli di esenzione in termini di dose efficace

In Tabella 8 sono mostrate le ulteriori matrici da sottoporre a campionamento ed analisi per la valutazione della dose efficace per lavoratori e popolazione.

Tabella 8 - Matrici aggiuntive da sottoporre a campionamento ed analisi

Matrice	Nome delle matrici	Tecnica di analisi	Radionuclidi
Effluenti	Effluente liquido (acqua reflua)	Scintillazione liquida Spettrometria gamma Spettrometria alfa	Alfa e beta totale K-40, segmenti di catena U-238 e Th-232, Po-210
	Acqua in ingresso all'impianto		
	Effluente aeriforme in uscita dal camino del forno fusorio	Spettrometria gamma Spettrometria alfa	K-40, segmenti di catena U-238 e Th-232, Po-210
	Effluente aeriforme in uscita dal camino dell'impianto di macinazione		

La misura della concentrazione di attività nell'acqua in ingresso è utile per valutare un'eventuale presenza di radionuclidi di origine naturale prima della lavorazione industriale.

È possibile, con opportune considerazioni e assunzioni, dedurre la concentrazione di attività nei due effluenti aeriformi a partire dalle misure eseguite sulle polveri di abbattimento degli stessi camini.

Nelle Tabelle 9 e 10 sono elencati gli scenari specifici e le vie di esposizione rispettivamente per lavoratori e popolazione in funzione di ciascuna matrice.

Tabella 9 - Matrici e scenari di esposizione per i lavoratori

Matrice	Nome delle matrici	Scenari specifici	Vie di esposizione
Materie prime	Materie prime di origine naturale e artificiale	Esposizione a cumuli, trasporto	Irraggiamento, inalazione, radon
Residui	Polvere di abbattimento del forno fusorio	Gestione, raccolta, carico, scarico, trasporto	Irraggiamento, inalazione, radon
	Polvere di abbattimento del camino dell'impianto di macinazione		
	Scarto di macinazione		
	Sabbie dal raffreddamento dei mattoni refrattari		
	Fango del depuratore interno		Irraggiamento, radon
Prodotti	Mattoni refrattari	Finitura, trasporto	Irraggiamento, radon

Tabella 10 - Matrici e scenari di esposizione per la popolazione

Matrice	Nome delle matrici	Scenari specifici	Vie di esposizione
Materie prime	Materie prime di origine naturale	Trasporto	Irraggiamento, inalazione, radon
	Materie prime di origine artificiale		
Effluenti	Effluente liquido (acqua reflua)	Rilascio in fognatura	Irraggiamento, inalazione, catena alimentare
	Effluente aeriforme in uscita dal camino del forno fusorio	Rilascio dal camino del forno fusorio	
	Effluente aeriforme in uscita dal camino di macinazione	Rilascio dal camino di macinazione	
Residui	Polvere di abbattimento del camino di macinazione, scarto di macinazione, sabbie dal raffreddamento dei mattoni refrattari, fango del depuratore interno	lo scenario dipende dal tipo di allontanamento	Irraggiamento, inalazione, radon

CONCLUSIONI

Nel presente lavoro è stata presentata una proposta metodologica per l'applicazione dell'art. 22 del D.lgs. 101/2020, elaborata nell'ambito del Progetto di Ricerca INAIL - BRIC ID 30 "Protocolli operativi e metodologie di calcolo per l'attuazione della nuova normativa di radioprotezione, recepimento della Direttiva 59/2013/Euratom, in settori industriali NORM di particolare impatto radiologico".

La metodologia generale è stata adattata finora ad alcuni settori industriali della Tabella II-1, e sono state illustrate nel dettaglio le procedure messe a punto per la produzione di cemento e per l'industria dello zirconio e dello zirconio.

APPENDICE

Livelli di esenzione/allontanamento in termini di concentrazione di attività (Allegato II Sezione II, paragrafo 2 e paragrafo 3)

Tabella A.1. Livelli di esenzione generali

Serie di U-238 e serie Th-232 equilibrio secolare per tutta la serie	Tutti i radionuclidi	1 kBq/kg
Serie di U-238 e Th-232 non in equilibrio secolare	Tutti i radionuclidi, tranne Pb-210 e Po-210	1 kBq/kg
	Pb-210 e Po-210	5 kBq/kg
K-40		10 kBq/kg

Tabella A.2. Livelli di esenzione specifici per situazioni particolari

Situazioni particolari	Radionuclidi	Livello di esenzione
Fanghi petroliferi	U-nat, Th-230, Th-232, Pb-210, Po-210	100 kBq/kg
	Ra-228	10 kBq/kg
	Per tutti gli altri radionuclidi delle serie di U-238 e Th-232	5 kBq/kg
	K-40	50 kBq/kg
Smaltimento in discarica o riutilizzo per la costruzione di strade	Serie di U-238 e serie di Th-232	0,5 kBq/kg
	Pb-210; Po-210	2.5 kBq/kg
	K-40	5 kBq/kg
Incenerimento	Valutazione della dose efficace alla popolazione	

BIBLIOGRAFIA

Decreto legislativo 31 luglio 2020 n.101. *Attuazione della direttiva 2013/59/Euratom, che stabilisce norme fondamentali di sicurezza relative alla protezione contro i pericoli derivanti dall'esposizione alle radiazioni ionizzanti, e che abroga le direttive 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom e 2003/122/Euratom e riordina la normativa di settore in attuazione dell'articolo 20, comma 1, lettera a), della legge 4 ottobre 2019, n. 117.*

Trevisi R. et al. *La radioprotezione applicata alle industrie NORM: sviluppo di un sistema di strumenti metodologici, conoscitivi e formativi a sostegno degli stakeholders. Stato dell'arte del progetto di INAIL.* 2022. XXXVIII Congresso Nazionale AIRP di Radioprotezione. Milano.

ISPRA. Task 03.02.01 *Valutazione di impatti radiologici da NORM.* 2015.