DISTRIBUZIONE DI 239-PU, 240-PU E 137-CS NEI SEDIMENTI DEL GOLFO DI GAETA: OSSERVAZIONI SUI MECCANISMI DI ACCUMULO E SULLE VELOCITÀ DI SEDIMENTAZIONE

R. DEL FANTI, C. PAPUCCI
Enea - Dipartimento Protezione ambientale e salute dell'uomo, S. Teresa

RIASSUNTO

Nell'area compresa fra il promontorio di Gaeta e la foce del fiume Volturno e' stato condotto uno studio sui meccanismi di dispersione e/o accumulo del Plutonio immesso nell'ambiente marino dalle ricadute radioattive conseguenti alle passate esplosioni nucleari nell'atmosfera.
Le concentrazioni del 239,240-Pu nei sedimenti superficiali marini sono 10-15 volte piu' elevate che nei sedimenti fluviali e sono strettamente correlate con la porosita'.
Gli inventari di 239,240-Pu nelle carote di sedimento decrescono con l'aumentare della profondita' della colonna d'acqua e della granulometria dei sedimenti e mostrano valori superiori alla deposizione da fallout nella fascia batimetrica compresa tra -30 m e -50 m, in relazione alla maggiore sedimentazione di particelle medio-fini esportate dai fiumi.
Dalle distribuzioni verticali del 239,240-Pu sono state stimate per l'area di studio velocita' di sedimentazione massime comprese tra 0.5 e 1.5 cm.anno-1.

ABSTRACT

A study was carried out in the Gaeta Gulf (Tyrrhenian Sea), on fallout Plutonium behaviour in the coastal marine environment. The use of this radionuclide as tracer also allowed an estimate of the sedimentation rate in the area.
Plutonium concentrations in marine surface sediments are 10-15 times higher than in adjacent river sediments and are highly correlated with sediment porosities.
239,240-Pu inventories in the sediment cores decrease with increasing water depth and sediment grain-size, and are higher than the average input from fallout at these latitudes in the bathymetric belt -30 m to -50 m, in relation with the higher sedimentation of fine particles exported by rivers.
The sedimentation rates, calculated from the 239,240-Pu vertical profiles, range between 0.5 and 1.5 cm.y-1.

INTRODUZIONE

L'uso dell'energia nucleare nelle ultime decadi ha immesso nell'ambiente marino una notevole quantita' di radionuclidi. Sebbene uno sforzo considerevole sia stato fatto per studiare a fondo le vie attraverso le quali certi radionuclidi possono ritornare all'ecosistema umano, la conoscenza dei meccanismi di dispersione e di accumulo dei radioisotopi a lunga vita rimane un'elemento chiave per la valutazione dell'impatto sull'uomo dall'immissione controllata o accidentale di sostanze radioattive.
In questo ambito, l'ENEA-STE ha da tempo intrapreso lo studio dei principali fenomeni di dispersione dei radionuclidi nell'ambiente costiero italiano.
Le indagini radioecologiche condotte lungo il fiume Garigliano e nel Golfo di Gaeta nel periodo 1980-82 avevano come scopo principale la determinazione dei livelli di radioattivita', sia nell'ambiente marino, sia in quello fluviale, per una valutazione del contributo degli scarichi dovuti all'esercizio della centrale e l'identificazione dei principali processi responsabili delle distribuzioni areali osservate.
Gli studi erano limitati a due principali radionuclidi: il 60-Co (presente solo negli scarichi della centrale) e il 137-Cs, presente sia negli scarichi della centrale, sia nel fallout derivante da esperimenti nucleari condotti nell'atmosfera.
Le zone di massimo accumulo di radionuclidi erano state individuate nella parte terminale del fiume Garigliano e, per quanto riguarda l'ambiente marino, nella fascia batimetrica compresa tra i 40 e i 70 m e nell'interno del Golfo di Gaeta, corrispondenti alle aree in cui le condizioni idrodinamiche consentono la deposizione delle particelle fini cui i radionuclidi sono associati (Papucci & Lavarello, 1983).
L'analisi dei rapporti 60-Co/137-Cs ha inoltre permesso di dividere la zona marina studiata in tre aree principali:

- una zona adiacente alla costa, caratterizzata da sedimenti grossolani, con basse concentrazioni di radionuclidi;
- una zona sotto la diretta influenza del fiume Garigliano, caratterizzata da un rapporto medio 60-CO/137-Cs di 0.40;
- una zona sotto l'influenza dei fiumi Garigliano e Volturno,caratterizzata da un rapporto medio di 0.27, (Papucci & Lavarello, 1983).

Le indagini sono proseguite nel 1984 con lo scopo di analizzare, sulla base delle conoscenze acquisite nei precedenti studi, il comportamento di un radionuclide da fallout a lunga vita, il Plutonio. Sono state percio' prelevate carote indisturbate di sedimento nell'area d'influenza del Garigliano ed in un'area ad elevata

concentrazione di radionuclidi sotto l'influenza di Garigliano e Volturno. Sono stati inoltre raccolti campioni di sedimento superficiale nell'asta terminale del fiume Garigliano.
Su questi campioni sono state eseguite determinazioni di 239,240-Pu e di 137-Cs. Si sono quindi analizzate:

a) le distribuzioni dei due radionuclidi in ambiente fluviale e marino, per evidenziare i fattori che le determinano e le differenze tra i due ambienti;
b) le distribuzioni verticali, per calcolare, con l'uso del Plutonio come tracciante, alcuni parametri ambientali, come la velocita' di sedimentazione e l'entita' del mescolamento fisico e biologico degli strati superficiali di sedimento.

MATERIALI E METODI

I campioni di sedimento superficiale sono stati raccolti con benna tipo van Veen.
Per il prelievo ed il sezionamento delle carote di sedimento direttamente "in campo" e' stato utilizzato un sistema messo a punto presso questo laboratorio, costituito da un carotatore di Reineck modificato e da un estrusore che permette il sezionamento delle carote in strati da un centimetro (Papucci et al., 1986).
Le analisi di Plutonio sono state eseguite secondo la procedura messa a punto da Wong (Wong,1971), ma con dissoluzione completa dei campioni mediante attacco sequenziale con HNO_3-HF, HCl-H_3BO_3, HNO_3-$HClO_4$.
L'elettrodeposizione finale e' stata eseguita secondo il metodo di Talvitie (1972).
La spettrometria alfa e' stata eseguita con rivelatori di Silicio a barriera superficiale con un'area attiva di 450 mm2. Il valore del fondo era mediamente di 4 x 10E-4 cpm nella regione del 239,240-Pu.
La spettrometria gamma e' stata effettuata con rivelatori di Germanio iperpuro (efficienza 30%, risoluzione 1.7 KeV a 1332 KeV), connessi ad un sistema per l'analisi automatica degli spettri.
L'accuratezza dei risultati veniva controllata con l'analisi di materiali standard di riferimento del National Bureau of Standards e dell'International Atomic Energy Agency (Jennings et al., 1985).
Di tutti i campioni marini e' stata misurata la porosita' sulla base della perdita di peso durante l'essicazione, eseguita in stufa con ventilazione forzata, a 40'C, fino a peso costante.

RISULTATI

Nella Fig. 1 sono riportate le concentrazioni di Plutonio nei sedimenti superficiali e le porosita' dei campioni marini.
Riportando in grafico le concentrazioni di Plutonio

contro la porosita' dei sedimenti (Fig. 2) si ottiene, se si esclude la stazione 36, una retta con un elevato coefficiente di correlazione, confermando i risultati gia' ottenuti per un'altra area costiera italiana, il Golfo di La Spezia (Jennings et al., 1985).
La stretta correlazione esistente tra concentrazioni di 239,240-Pu e la porosita' dei sedimenti superficiali dimostra che questo parametro, facilmente misurabile, e' utile quanto l'analisi granulometrica per la predizione delle aree di accumulo dei radionuclidi.
Il fatto che la relazione lineare non sia verificata per la stazione 36, situata a 100 m di profondita', puo' essere spiegato con una bassa velocita' di sedimentazione e rilevanti fenomeni di mescolamento fisico e biologico che, riportando in superficie il sedimento sottostante non contaminato, producono una diluizione della concentrazione superficiale del radionuclide.
L'associazione del Plutonio con il materiale particellato e' infatti dovuta prevalentemente all'adsorbimento sugli strati superficiali di ossidi idrati di ferro e manganese (Edgington & Nelson, 1984) e non e' quindi determinata dall'affinita' del radionuclide per una particolare classe granulometrica o specie mineralogica.
Le concentrazioni di Plutonio nell'ambiente fluviale sono molto inferiori rispetto a quelle misurate nell'ambiente marino in sedimenti con porosita' simile. I rapporti 239,240-Pu/137-Cs sono 10 - 15 volte piu' elevati nell'ambiente marino (Fig. 1) ma si mantengono relativamente costanti nel fiume e in mare.
Nelle Figure 3 e 4 sono riportate le distribuzioni verticali di di 239,240-Pu e 137-Cs. Le profondita' delle carote sono state corrette per la compattazione sulla base di misure di porosita' (Matsumoto & Wong, 1977). Per nessuno dei due radionuclidi e' possibile individuare un ben definito massimo subsuperficiale corrispondente alla massima deposizione di radioattivita', verificatasi nel 1963.
Il caratteristico andamento con massimo subsuperficiale, come e' spesso osservato in ambiente lacustre o in altre aree costiere, appare smussato nei sedimenti del Golfo di Gaeta, evidentemente a causa di rilevanti fenomeni di mescolamento.
Il rapporto 239,240-Pu/137-Cs si mantiene costante all'interno delle singole carote; non c'e' evidenza quindi di migrazione post-deposizionale dei radionuclidi nella colonna di sedimento.
Gli inventari di 239,240-Pu nei sedimenti (Fig. 5), variano tra 30 e 330 Bq m-2 e, nella fascia compresa tra le batimetriche dei 20 e 50 m, sono da 2 a 4 volte piu' elevati della deposizione cumulativa da fallout, che e' 81 Bq m-2 a queste latitudini (Perkins & Thomas, 1980).

DISCUSSIONE

Gli inventari misurati nell'area di studio (Fig. 5), sono piu' elevati della deposizione da fallout nelle zone dove prevale la deposizione di particelle esportate dai fiumi. Il massimo valore calcolato e' relativo alla stazione 04, in un'area influenzata dagli apporti sia del Volturno, sia del Garigliano.
Inventari significativamente piu' elevati della deposizione comulativa da fallout sono stati piu' volte osservati in particolari fasce batimetriche delle zone costiere degli Stati Uniti, sia Pacifiche (Beasley et al., 1982), che Atlantiche (Buesseler et al., 1985) e nel Mediterraneo (Jennings et al., 1985; Delle Site et al., 1984; Triulzi et al., 1982).
Le basse concentrazioni di Pu nei sedimenti fluviali rispetto a quelli marini di porosita' simile e la grande variazione del rapporto Pu/Cs (0.007 nei sedimenti fluviali e 0.11 in quelli marini), sembrano indicare un arricchimento di Plutonio nel particellato in concomitanza con l'aumento della salinita'.
In effetti, studi condotti negli estuari di grandi fiumi francesi (Jaendel et al., 1981) dimostrano che, all'aumentare della salinita', si registra un notevole aumento dell'attivita' specifica del Pu nella fase particolata.
La coagulazione di microcolloidi, associati alla fase dissolta in acque dolci e a quella particolata in acque salate, non e' sufficiente a spiegare il fenomeno dal punto di vista quantitativo ed e' necessario assumere che avvenga un significativo aumento dell'adsorbimento sulle particelle trasportate dal fiume del Plutonio dissolto in acqua di mare.
Jaendel ipotizza che le particelle terrigene rimangano in generale "insature" di Pu nell'ambiente fluviale e che nell'ambiente marino esse siano ancora in grado di esercitare una notevole azione di cattura.
L'eccesso di Plutonio rispetto alla deposizione da fallout rilevato nei sedimenti delle aree costiere dipende quindi solo in parte dal dilavamento dei bacini imbriferi, ed e' strettamente correlato alla concentrazione di materiale particellato in grado di esercitare un'azione di "scavenging" in acqua di mare.
Un secondo fenomeno responsabile degli elevati inventari misurati e' il mescolamento dei sedimenti superficiali causato da processi fisici o biologici. La risospensione di particelle sottili dal fondo puo' infatti ulteriormente favorire la "cattura" dall'acqua di mare di inquinanti con elevata affinita' per il particellato.
I profili verticali di Plutonio nei sedimenti del Golfo di Gaeta indicano infatti che fenomeni di mescolamento sono attivi in tutta l'area. I massimi subsuperficiali corrispondenti alla massima deposizione da fallout sono di solito smussati, non molto evidenti, e, nel caso delle

stazioni 01 e 47, non rilevabili. Il profilo non regolare della stazione 01, situata all'interno del porto di Gaeta, e' pero' probabilmente dovuto ad un rimaneggiamento meccanico del sedimento, mentre la stazione 47 mostra un andamento tipico delle zone ad elevata energia ambientale, con basse concentrazioni di plutonio in relazione con la bassa porosita' del sedimento (prevale la frazione sabbiosa). In tutte le altre stazioni dell'area i profili verticali di plutonio sono il risultato di processi di sedimentazione e di mescolamento abbastanza regolari.
Il calcolo della velocita' di sedimentazione dalla profondita' del massimo subsuperficiale dei radionuclidi e' corretto in ambienti caratterizzati da una elevata deposizione di sedimenti (>1cm anno-1) (Robbins & Edgington, 1975; Olsen et al., 1981) o in ambienti in cui i fenomeni di mescolamento sono poco evidenti (Jennings et al., 1985).
Nel caso dei profili verticali illustrati, una misura accurata della velocita' di sedimentazione non e' quindi possibile. E' pero' utile avere una stima sia del valore massimo, calcolato dalla profondita' di penetrazione del Plutonio nel sedimento, che del valore "probabile" calcolato sulla base del massimo sub-superficiale osservato.
Per questo calcolo, si corregge dapprima la profondita' di ciascuno strato per l'effetto della compattazione come descritto da Matsumoto e Wong (1977), secondo le equazioni:

$$\phi = (\phi_0 - \phi_\infty)\exp(-\alpha z) + \phi_\infty$$

dove ϕ_0 e ϕ_∞ sono le porosita' dei sedimenti all'interfaccia ($z = 0$) e alla compattazione finale ($z = \infty$) rispettivamente.
La profondita' corretta per la compattazione, z' e' calcolata secondo l'equazione:

$$z' = z + \int_0^z [(\phi_0 - \phi)/(1-\phi_0)]\, dz$$

La misura del limite superiore della velocita' di sedimentazione si ottiene dividendo la profondita' massima a cui e' rivelabile il Plutonio per il numero di anni intercorsi tra l'inizio dei tests nucleari in atmosfera e la data di campionamento. In questo modo si ottengono per tutte le stazioni del Golfo velocita' di sedimentazione <1.4 cm anno-1. In alcuni casi particolari e' poi possibile fare una stima del valore piu' probabile ottenuto dividendo la profondita' del massimo di concentrazione osservato per gli anni intercorsi tra il massimo di ricadute radioattive e la data di campionamento.

Per la carota 46 il valore stimato per questa via come piu' probabile, 0.46 cm anno-1, e' stato confermato da misure di 210-Pu (Delfanti et al., 1987).

BIBLIOGRAFIA

BEASLEY, T.M., R. CARPENTER & C.D. JENNINGS, 1982 - Plutonium, 241-Am, 137- Cs ratios, inventories and vertical profiles in Washington and Oregon continental shelf sediments. Geochim. Cosmochim. Acta, 46:1931-46.

BUESSELER, K.O., H.D. LIVINSTON & E.R. SHOLKOVITZ, 1985 - 239,240-Pu and excess 210-Pb inventories along the shelf and slope of the North-East U.S.A. Earth and Planet. Sci. Lett., 76:10-22.

DELLE SITE, A., O. FERRETTI, V. MARCHIONNI & C. PAPUCCI, 1984 - Measurements of 137-Cs, 239,240Pu and 238-Pu in some coastal sediments of the Tyrrhenian Sea. In Cigna e Myttenaere (eds.) International Symposium on the behaviour of long-lived radionuclides in the marine environment, CEC Brussels - Luxenbourg :233-43.

DELFANTI, R., G. BUFFONI, C. PAPUCCI & G. PAGANIN, 1987 - Determination of recent sedimentation rates in the Tyrrhenian Sea using 210-Pb and 239,240-Pu. In Atti della Conferenza internazionale Radioattivita' e Oceanografia. Elsevier, Amsterdam, in stampa.

EDGINGTON, D.E. & D.M. NELSON, 1984 - The chemical behaviour of long-lived radionuclides in the marine environment. In Cigna e Myttenaere (eds.) International Symposium on the behaviour of long-lived radionuclides in the marine environment. CEC, Brussels - Luxenbourg:19-68.

JAENDEL, C., J.M. MARTIN & A.J. THOMAS, 1981 - Les radionucleides artificiels dans les estuaires francais. In Inpacts of radionuclide releases into the marine environment. IAEA, Vienna: 15-32.

JENNINGS, C.D., R. DELFANTI & C. PAPUCCI, 1985 - the distribution and inventory of fallout plutonium in sediments of the Ligurian Sea near La Spezia, Italy. J. Environ. Radioactivity, 2:293-310.

MATSUMOTO, E. & C. S. WONG, 1977 - Heavy metal sedimentation in Saanich Inlet measured with 210-Pb technique. J. Geophys. Res., 82:5477-82.

OLSEN, C.R., H.J. SIMPSON, T.H. PENG, R.F. BOPP & R.M. TRIER, 1981 - Sediment mixing and accumulation rate effects on radionuclide depth profiles in Hudson Estuary sediments. J. Geophys. Res., 86:11020-8.

OLSEN, C.R., H.J. SIMPSON, T.H. PENG, R.F. BOPP & R.M. TRIER, 1981 - Sediment mixing and accumulation rate effects on radionuclide depth profiles in Hudson Estuary sediments. J. Geophys. Res., 86:11020-8.

PAPUCCI, C. & O. LAVARELLO, 1983 - La distribuzione dei radionuclidi tra Capo Circeo e l'Isola d'Ischia. In Un esempio di analisi ecologica del sistema marino costiero tra Capo Circeo e l'Isola d'Ischia. ENEA, Roma: 149-170.

PERKINS, R.W. & C.W. THOMAS, 1980 - Worldwide fallout. In Transuranic elements in the environment. USDOE, Washington D.C.:53-82.

ROBBINS, J. & D. N. EDGINGTON, 1975 - Determination of recent sedimentation rates in Lake Michigan using 210-Pb and 137-Cs. Geochim. Cosmochim. Acta, 39:285-304.

TALVITIE, N. A., 1972 - Electrodeposition of actinides for alpha spectrometric determination. Anal. Chem, 44:280-89.

TRIULZI, C., A. DELLE SITE & V. MARCHIONNI, 1982 - 239,240-Pu and 238-Pu in sea water, marine organisms and sediments of Taranto Gulf (Ionian Sea). Estuarine Coastal Shelf Sci., 15:109-114.

WONG, K.M., 1971 - Radiochemical determination of Plutonium in sea water, sediments and marine organisms. Anal. Chim. Acta, 56:355-64.

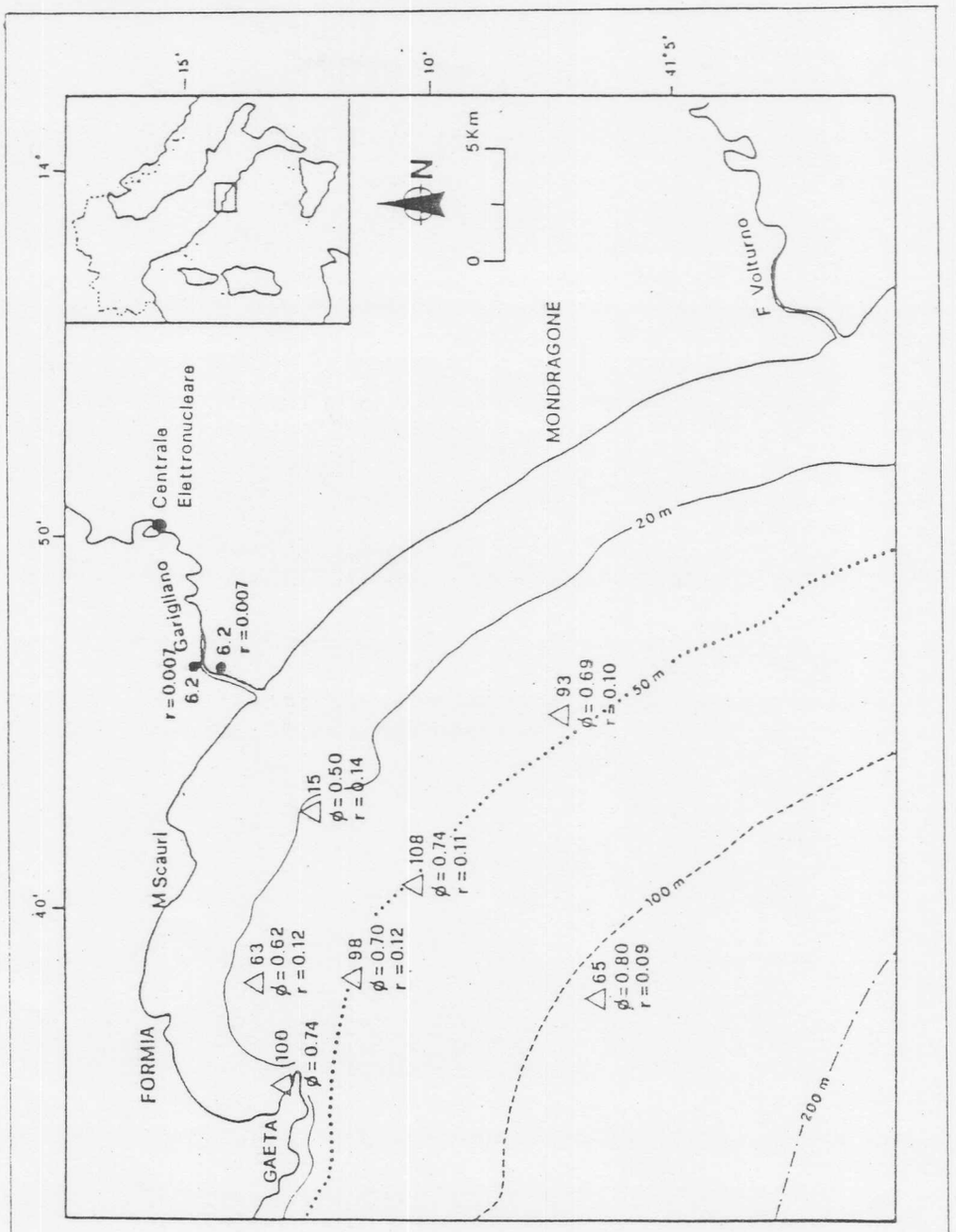

Fig. 1 - Concentrazioni superficiali di 239,240-Pu in dpm.kg-1 p.s. (Δ), porosita' dei sedimenti (φ) e rapporti 239,240-Pu/137-Cs (r).

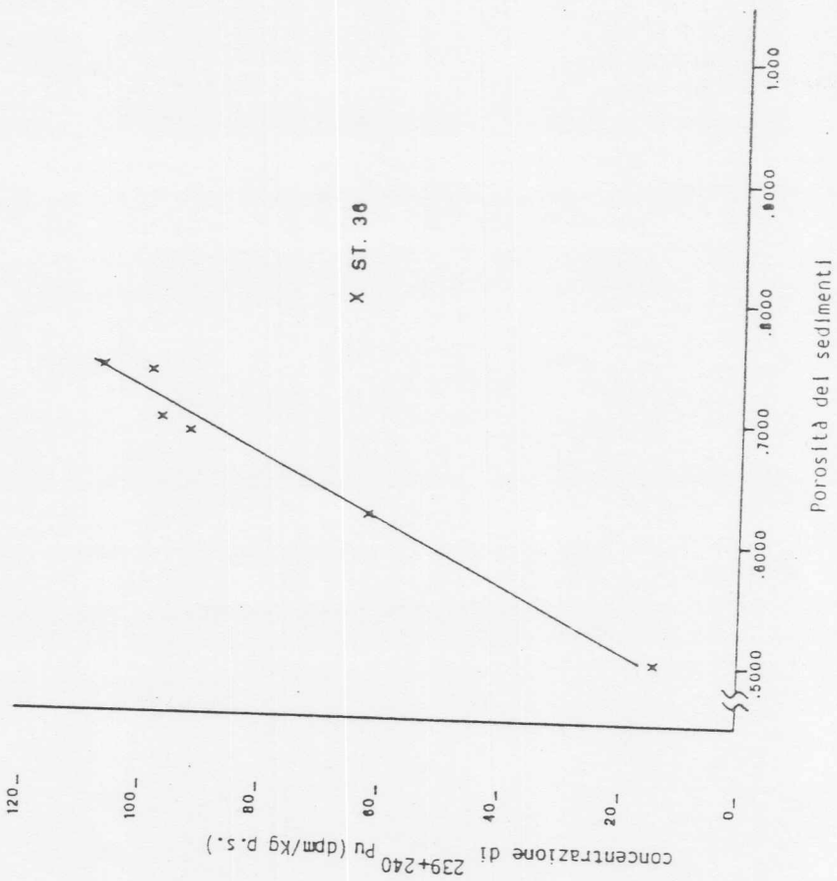

Fig. 2 - Relazione tra concentrazione di 239,240-Pu e porosita' dei sedimenti superficiali.

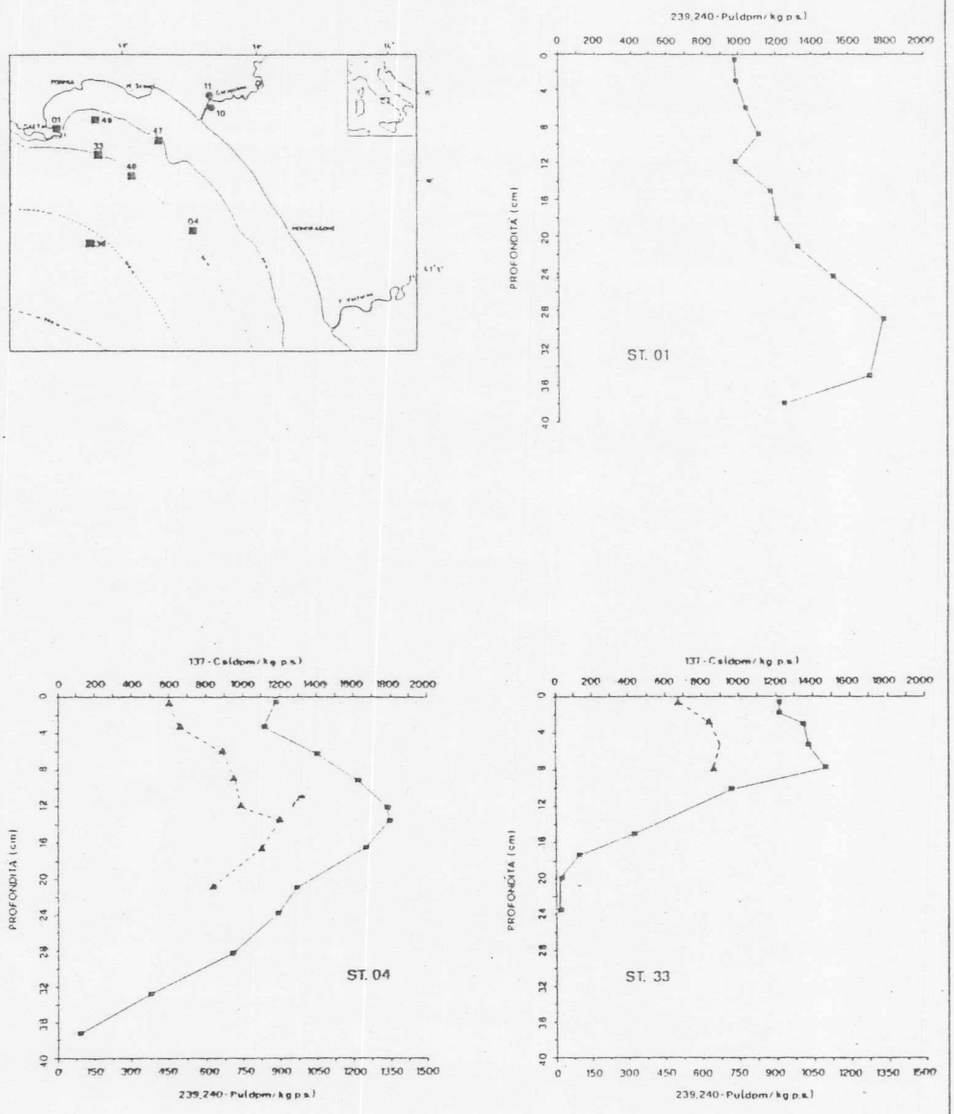

Fig. 3 - Punti di prlievo e distribuzioni verticali di 239,240-Pu (——) e 137-Cs (----). Le profondita' sono corrette per la compattazione.

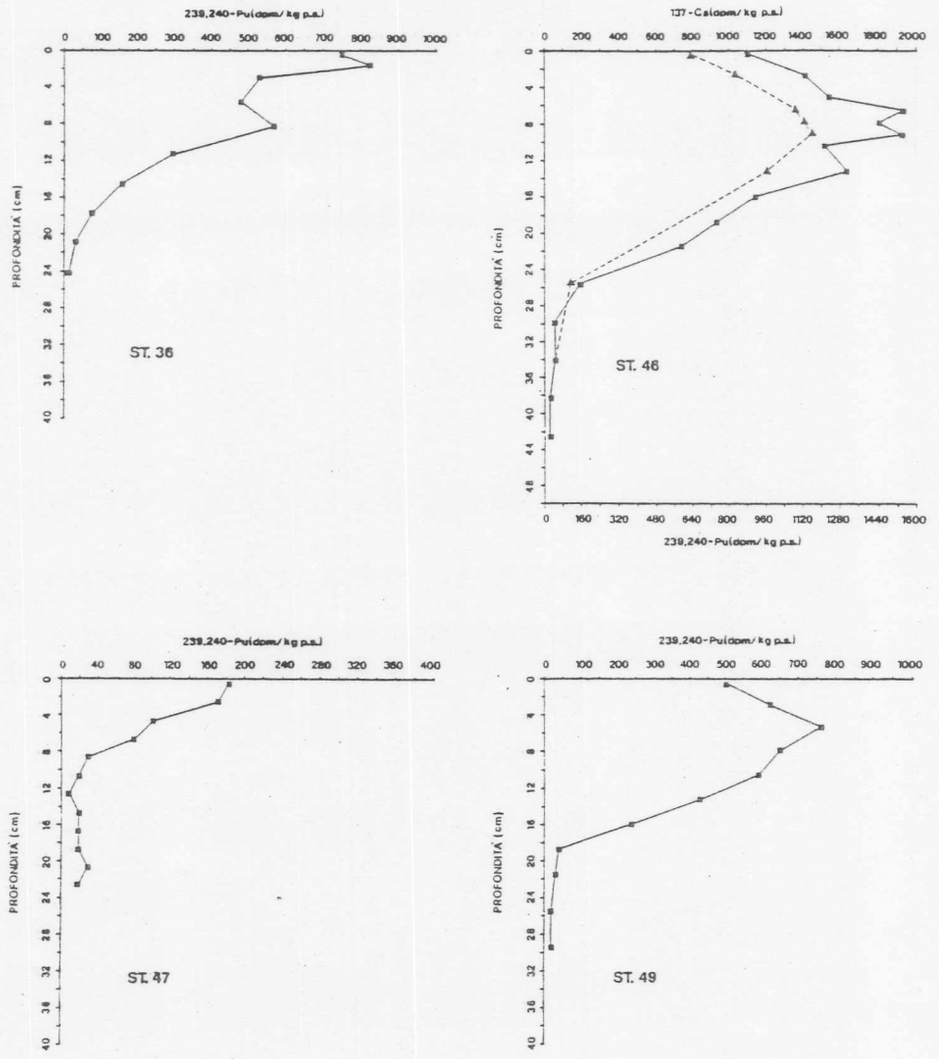

Fig. 4 - Distribuzioni verticali di 239,240-Pu (——) e 137-Cs (----). Le profondita' sono corrette per la compattazione.

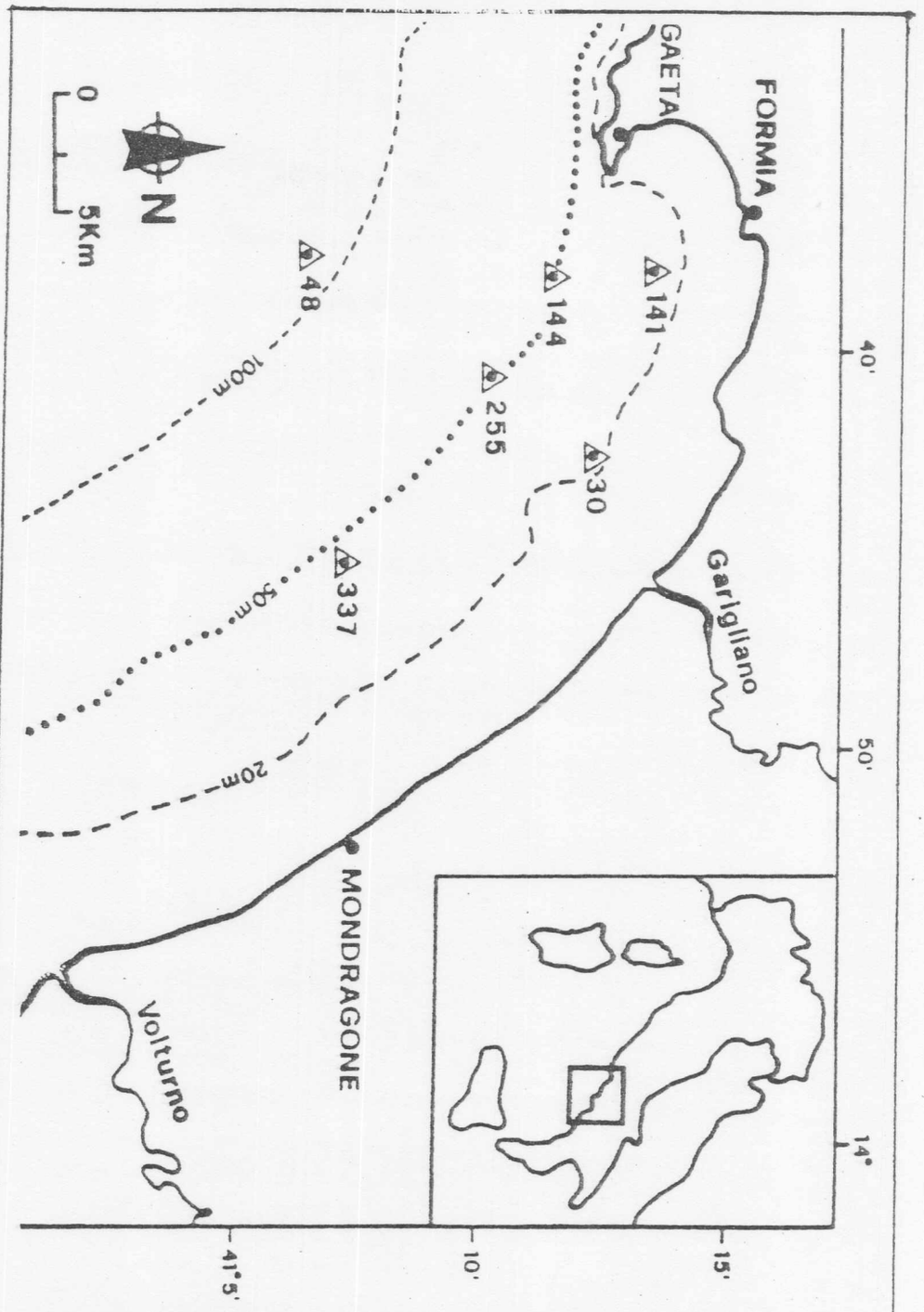

Fig. 5 - Inventari di 239,240-Pu (Bq m-2).