

Ritrovamento di una sorgente per la produzione di acqua radioattiva: la fiala Pagliani

Campi¹ F., Badalamenti² P., Codispoti¹ L., Forte² M., Garlati¹ L., Porta¹ A.,

¹Politecnico di Milano - Dipartimento di Energia, via La Masa, 34 20156 Milano

²ARPA Lombardia Centro - Regionale Radioprotezione, via F. Juvara, 22 20129 Milano

Nel maggio 2017, a seguito di un allarme al portale radiometrico presso il termovalorizzatore A2A Silla2 di Milano, è stata rinvenuta una sorgente di radio 226 in un sacchetto di rifiuti urbani.

Tale sorgente consiste in un piccolo cilindro ceramico contenente radio 226 alloggiato all'interno di un supporto aperto in argento. Sul cilindro è riportata la seguente dicitura: "Fiala Radioemanogena ... Torino 1924". A valle di una ricerca bibliografica estesa, è emerso che tale fiala rappresenta un esemplare di valenza storica dei dispositivi per la produzione di acqua arricchita al radon 222 prodotti negli anni che vanno dal 1910 al 1930 dal prof. Luigi Pagliani, professore presso l'Istituto di Igiene dell'università di Torino.

Sono state effettuate alcune misurazioni in spettrometria gamma sulla sorgente e in scintillazione liquida sull'acqua prodotta utilizzando la fiala secondo le indicazioni fornite dallo stesso Pagliani nelle sue pubblicazioni. In tal modo è stato possibile caratterizzare la sorgente determinandone l'attività di Rn-222 rilasciata giornalmente nell'acqua e stimare la dose derivante dal consumo della medesima così "radioattivata".

Tali risultati vengono confrontati con quanto stimato sperimentalmente da Pagliani.

INTRODUZIONE

Presso l'ingresso dell'impianto termovalorizzatore "Silla 2" della società A2A, sito in via L.C. Silla in Milano, è presente un sistema radiometrico fisso a portale per il controllo dei carichi di materiale entranti. Normalmente gli allarmi che si verificano portano al ritrovamento e isolamento di rifiuti urbani contaminati da radio farmaci (Campi F., 2016). Talvolta a seguito di un allarme al portale si rinviene nei rifiuti oggetti contenenti radionuclidi a vita lunga, tipicamente quadranti luminescenti, rivelatori di fumo e altri dispositivi industriali contenenti sorgenti radioattive di modeste attività.

Il giorno 15 maggio 2017, in un carico di rifiuti urbani che aveva generato un allarme al portale, è stato individuato e isolato un oggetto che, a seguito di una prima caratterizzazione radiometrica in campo, è risultato contenere circa 500 kBq di radio 226. Su di esso erano evidenti delle diciture che hanno permesso immediatamente di datarlo e, successivamente, di avviare un'indagine che ha portato a comprenderne l'origine e la funzione per cui fu realizzato quasi cento anni fa.

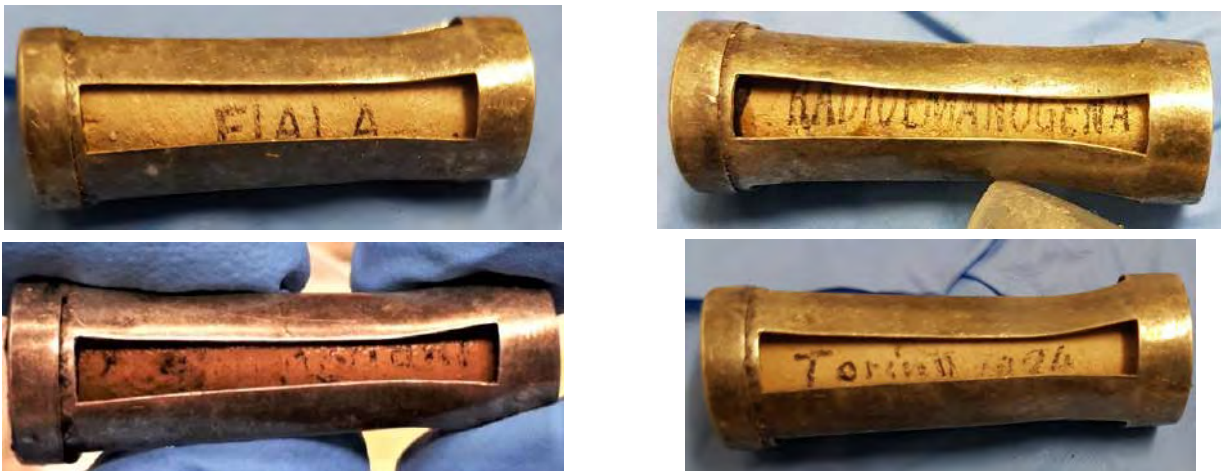
LA FIALA PAGLIANI E LA SUA STORIA

Luigi Pagliani (1847 – 1932), dopo la laurea in medicina e chirurgia all'Università di Torino, si dedicò alla medicina sociale, alla prevenzione e allo studio dei fattori ambientali nocivi alla salute, fondando il primo laboratorio d'igiene in Italia. Nel corso degli anni di docenza presso l'Università di Torino si occupò anche di qualità dell'acqua, studiando un progetto di risanamento della città attraverso un sistema fognario. Inoltre a partire dal 1910 si trovano suoi scritti sulle proprietà delle acque utilizzate per il consumo umano. In particolare si interessa delle acque minerali arricchite in Emanazione, nome attribuito ai tempi al radon 222, evocato anche come *Spirito delle Sorgenti*.

Partendo dalla constatazione che *"Nelle regioni dove la Radioemanazione è relativamente abbondante nell'aria respirata e si trova anche nell'acqua usata dalle popolazioni, queste, a parità di altre condizioni, sono più sane, più forti, e meglio sviluppate"* (Pagliani L., 1910), si dedicò allo sviluppo di un *Apparecchio Radioemanogeno* per permettere a chiunque di beneficiare degli effetti dell'acqua attivata in Emanazione. In laboratorio mise a punto il metodo di produzione della *Fiala Radioemanogena "Pagliani"*: trattasi di *"determinate dosi di (sali di) Radio, suggellate in una capsula a pareti porose e finemente permeabili, da tenersi entro l'acqua da radioattivare. [...] La capsula in cui è chiuso è di materiale resistentissimo alla sua immersione nell'acqua. Per maggiore*

difesa la stessa capsula è provveduta ancora di una gabbietta di argento fino, con catenella per la sospensione nel recipiente dell'acqua da radioattivare. [...] Le Fiale Radioemanogene "Pagliani" sono preparate dello stesso Prof. L. Pagliani e portano le indicazioni: Fiala Radioemanogena, sua propria firma e la data: Torino – 192...". Quanto descritto da Pagliani nel suo articolo è esattamente quanto riportato sulla fiala rinvenuta presso il termovalorizzatore Silla 2 e mostrato nella fig. 1: "Fiala Radioemanogena....(ani) Torino 1924".

Figura 1 – Le scritte riportate sulla fiala Pagliani.



Scritte riportate sul cilindro ceramico della fiala. Sono evidenti le diciture *Fiala*, *Radioemanogena*, *Torino 1924*, mentre risulta identificabile la parte finale della scritta della terza immagine (*ani*).

Secondo quanto noto all'epoca, il radon "conferisce ad esse (le acque) virtù salutari universalmente proclamate [...] attivanti il ricambio organico e potentemente preventive e curative delle diatesi uricemica e gottosa, dell'arterio-sclerosi, del diabete, dei calcoli renali ed epatici, dell'artrite, degli esaurimenti cerebrali e genitali, ecc..." (da una pagina pubblicitaria dell'epoca, di cui una parte riportata in fig. 8). Per tale motivo "l'uso dell'acqua, resa radioattiva colla Fiala Radioemanogena "Pagliani" è perciò raccomandabile, oltre che nelle forme morbose sopra accennate [...] anche come abituale acqua di bevanda, particolarmente, alle persone di debole costituzione o esaurite per strapazzi funzionali, alle donne lattanti o nell'epoca critica e in genere nell'incipiente od inoltrata vecchiaia nei due sessi. Non vi sono controindicazioni anche a forti dosi, né si manifesta assuefazione per continuo uso".

Assieme alla fiala venivano fornite le indicazioni necessarie per un corretto uso della stessa: "L'uso della Fiala Radioemanogena è molto semplice: poiché basta per servirsene, tenerla, munita del suo astuccio di argento, sospesa od in fondo di un recipiente pieno dell'acqua da radioattivare della capacità voluta (circa un litro al giorno), e, man mano se ne preleva per consumarla, sostituirla con altrettanta acqua; in misura però da ricambiarne l'intera quantità una sola volta nelle 24 ore. Se si fa passare nel recipiente più acqua in tale tempo, resta corrispondentemente diminuita la dose in essa di Radioemanazione e viceversa; poiché ciascuna Fiala dà giornalmente sempre la stessa indicata quantità di Radioemanazione".

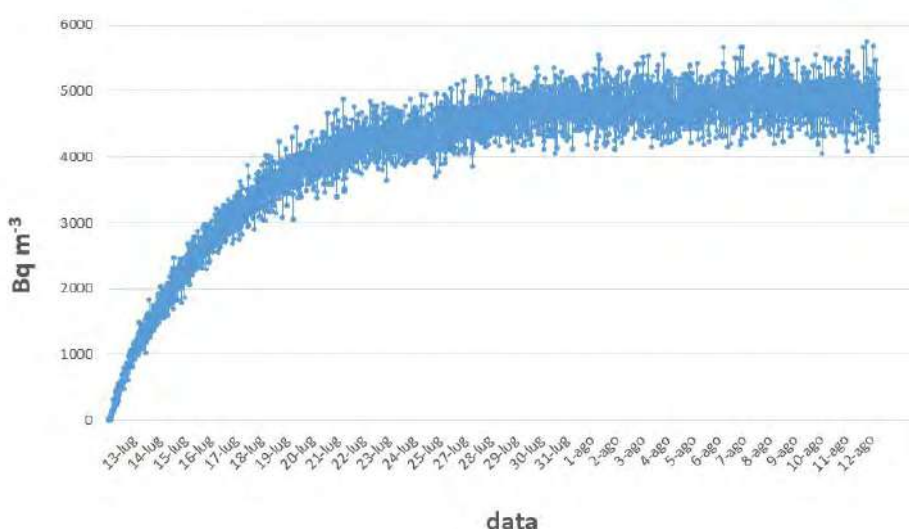
Essendo Pagliani uno sperimentatore, forniva indicazioni anche per la verifica sperimentale della presenza del Radio (tramite elettroscopio o tramite lastra fotografica), mentre "La dose di Radioemanazione data nelle 24 ore ad un litro di acqua dai diversi tipi di Fiale può essere determinata [...] con un elettrometro speciale, come il Fontaktoskop [...]; sperimentando ogni Fiala dopo averla tenuta per circa una decina di giorni a bagno in acqua comune, perché ne sia ben regolata la permeabilità delle pareti".

SIMULAZIONI E MISURE

Vista la rilevanza storica dell'oggetto, appellandosi al D.Lgs. 52/07, il Politecnico di Milano ha rilevato la fiala dalla società A2A che ne era detentrica, evitando così il suo smaltimento come rifiuto radioattivo. Prima del trasferimento al Laboratorio di Radioprotezione del Politecnico di Milano, è stato fatto uno smear test a secco sulla superficie esterna della fiala, per verificare l'assenza di contaminazione superficiale da radio. Di fatto, analizzando il campione in laboratorio, non sono stati trovati altri radionuclidi che i figli del radon 222.

Il giorno 12 luglio 2017 la fiala è stata trasportata presso il laboratorio di Radioprotezione del Politecnico di Milano ed è stata subito collocata all'interno di una delle camere radon presenti. La crescita della concentrazione di radon in camera è stata monitorata con uno strumento Alphaguard (Saphymo AlphaGuard DF-2000, certificato di taratura INMRI-ENEA n° 696/ARN del 2017) per un mese, raggiungendo un valore a regime (si veda fig. 2) pari a circa $5 \text{ kBq} \cdot \text{m}^{-3}$.

Figura 2 – Andamento temporale della concentrazione di radon



Andamento temporale della concentrazione di radon nell'aria della camera radon a seguito dell'inserimento della fiala Pagliani (tempo di acquisizione dati= 10 minuti).

Successivamente la fiala è stata posizionata all'interno di un contenitore in materiale plastico da 200 ml contenente acqua demineralizzata e vi è stata lasciata per 10 giorni. Da un lato questo è servito a condizionare la fiala come indicato da Luigi Pagliani, dall'altro ha consentito di verificare, tramite spettrometria gamma ad alta risoluzione sull'acqua utilizzata dopo l'estrazione della fiala, che questa non rilasciasse radio nell'acqua stessa.

A questo punto, con lo scopo di stimare le dosi derivanti dall'uso della fiala, si è voluto simulare l'utilizzo della medesima così come previsto e indicato dal suo inventore e produttore. Grazie alla documentazione fotografica e alla descrizione dell'uso fornita dal professor Pagliani, è stata riprodotta in laboratorio la modalità di utilizzo corretta.

Il giorno 13 settembre 2017 la fiala è stata appesa tramite una catenella e un cerchietto di argento al tappo in vetro di una beuta da un litro (fig. 3) riempita con 1131 ml di acqua della rete idrica di Milano¹ (per le analisi si veda tab. 1) flussata con azoto in gorgogliatore per 90 minuti per eliminare l'eventuale radon presente. Il volume di aria residua nella bottiglia tappata è di circa 5.8 ml.

¹ MM S.p.A., sito web: www.metropolitanamilanese.it/pub/page/it/MM/qualita_acqua

Tabella 1 – Analisi dell'acqua di acquedotto di Milano relative al terzo trimestre 2017 pubblicate da MM S.p.A., società di gestione del servizio idrico integrato della città.

PARAMETRO	VALORE	UNITÀ DI MISURA	PARAMETRO	VALORE	UNITÀ DI MISURA
pH	7.7	pH	potassio	2	mg/L
r. fisso 180°C	375	mg/L	sodio	17	mg/L
durezza	25	°F	arsenico	<2	µg/L
conducibilità	576	µS/cm a 20°C	bicarbonato	168	mg/L
calcio	82	mg/L	cloro residuo	0.01	mg/L
magnesio	18	mg/L	fluoruri	<0.5	mg/L
ammonio	<0.10	mg/L	nitrati	29	mg/L
cloruri	31	mg/L	nitriti	<0.20	mg/L
solforati	47	mg/L	manganese	1.5	µg/L

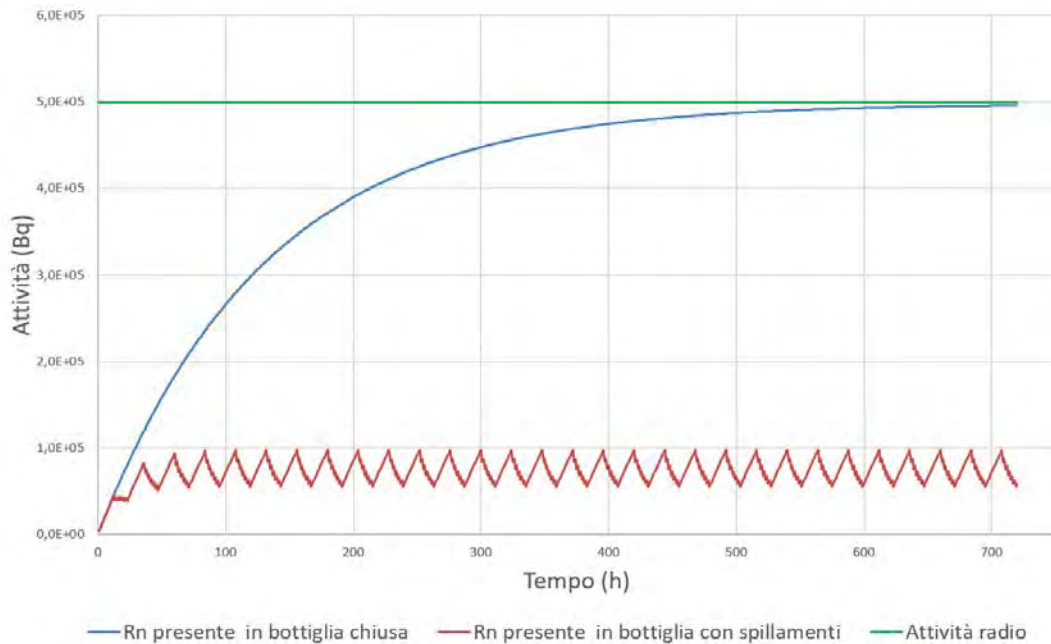
Figura 3 – Bottiglia contenente la fiala Pagliani sospesa in acqua



A sinistra un'immagine della bottiglia originale tratta da una pubblicazione d'epoca, a destra la replica di laboratorio.

Come già evidenziato, Pagliani asserisce che la concentrazione di radioemanazione nell'acqua si assesta rapidamente a un valore medio giornaliero costante durante l'uso continuativo, corrispondente alla quantità di radon prodotta giornalmente. Per verificare teoricamente la fondatezza di tale asserzione è stato predisposto un foglio Excel che descrive l'andamento temporale dell'attività di radon contenuta nella bottiglia, tenendo conto della produzione, del decadimento e degli eventuali spillamenti di acqua, così da poter seguire l'andamento dell'attività del radon anche nella simulazione di un consumo quotidiano di tutta l'acqua contenuta nella bottiglia. Nei grafici riportati in fig. 4, ottenuti con la simulazione, si traccia l'andamento temporale dell'attività di radon in bottiglia nel caso in cui venga mantenuta tappata e nel caso in cui venga da subito utilizzata secondo le indicazioni di Pagliani. In tal caso, si ipotizzano sei spillamenti di acqua al giorno. Nella simulazione si è ipotizzata un'attività di radio 226 di 500 kBq, pari all'attività stimata dalle misure di rateo di dose. Come si può notare, i valori dell'attività di Rn-222 in bottiglia si stabilizzano rapidamente dopo i primi tre giorni di spillamenti.

Figura 4 – Andamento temporale delle attività.



Attività di radon nella bottiglia chiusa e in uso, con l'introduzione della fiala Pagliani a $t=0$.

Questo approccio teorico non consente tuttavia di ottenere stime accurate della effettiva concentrazione del radon in acqua ai diversi spillamenti, perché molteplici fattori non ponderabili concorrono a condizionarne i valori. Tra questi i più rilevanti sono: il coefficiente di diffusione del radon attraverso la parete ceramica della fiala, la perdita di radon dal tappo della bottiglia, l'effettiva ripartizione del radon presente tra acqua e aria, le perdite allo spillamento, ecc. Per questo motivo si è programmata una campagna di misure per la determinazione sperimentale della concentrazione di radon nell'acqua prelevata dalla bottiglia. Poiché Pagliani consiglia di consumare l'intero volume d'acqua (un litro) durante la giornata, si è deciso di simulare il consumo frazionandone il volume in 6 spillamenti, corrispondenti a circa un bicchiere da tavola ognuno, distanziati a intervalli di 1.5 ore ed effettuati versando l'acqua dalla bottiglia esattamente come farebbe un consumatore nel riempire il bicchiere. Poiché il volume d'acqua contenuto nella beuta utilizzata è di 1131 ml, ogni spillamento è stato fissato in 188.5 ml, con l'accortezza di ripristinare il volume d'acqua prelevato con altrettanta acqua di rete flussata preventivamente con azoto. Per la determinazione del contenuto di radon in ogni campione si è scelto di utilizzare il conteggio in scintillazione liquida in doppia fase, seguendo la procedura di cui si è dotata ARPA Lombardia (Forte M., 2016), basata sulla norma ISO 13164-4:2015. Per la determinazione dell'efficienza di misura è stata utilizzato uno standard di radio 226 in soluzione acquosa 0.5 molare di HCl con una concentrazione nominale di attività di 184.23 Bq/g. Con questo, tramite diluizione, sono state preparate tre vial teflonate (Zinsser Analytic) contenenti 10 ml ciascuna di scintillatore (Ultima Gold™ F, Perkin Elmer®) e 10 ml di acqua (di rete urbana flussata con azoto) additivata rispettivamente con 1.95, 10 e 99.17 Bq di Ra-226. Le vial sono state quindi poste al buio per un periodo di quattro settimane per consentire al radon di portarsi all'equilibrio secolare con il radio. Contemporaneamente si è proceduto ad effettuare gli spillamenti e le relative misure secondo il calendario riportato in tab. 2. Ogni campionamento è consistito in 6 spillamenti da 188.5 ml, iniziando alle ore 9:00 con il primo e, procedendo ad intervalli temporali di 1.5 ore, terminando alle ore 16:30 con il sesto ed ultimo della giornata.

La presenza dei fine settimana, come si evince dal calendario, va tuttavia a interrompere il regolare spillamento quotidiano che vuole simulare il consumo suggerito dell'acqua "radioattivata". Per comprendere come queste interruzioni possano condizionare le attività del radon nei campionamenti giornalieri si è di nuovo utilizzata la simulazione tramite foglio Excel, indagando tre casi particolari: il primo con l'inizio degli spillamenti (distanziati da 1.5 ore) dopo 20 giorni

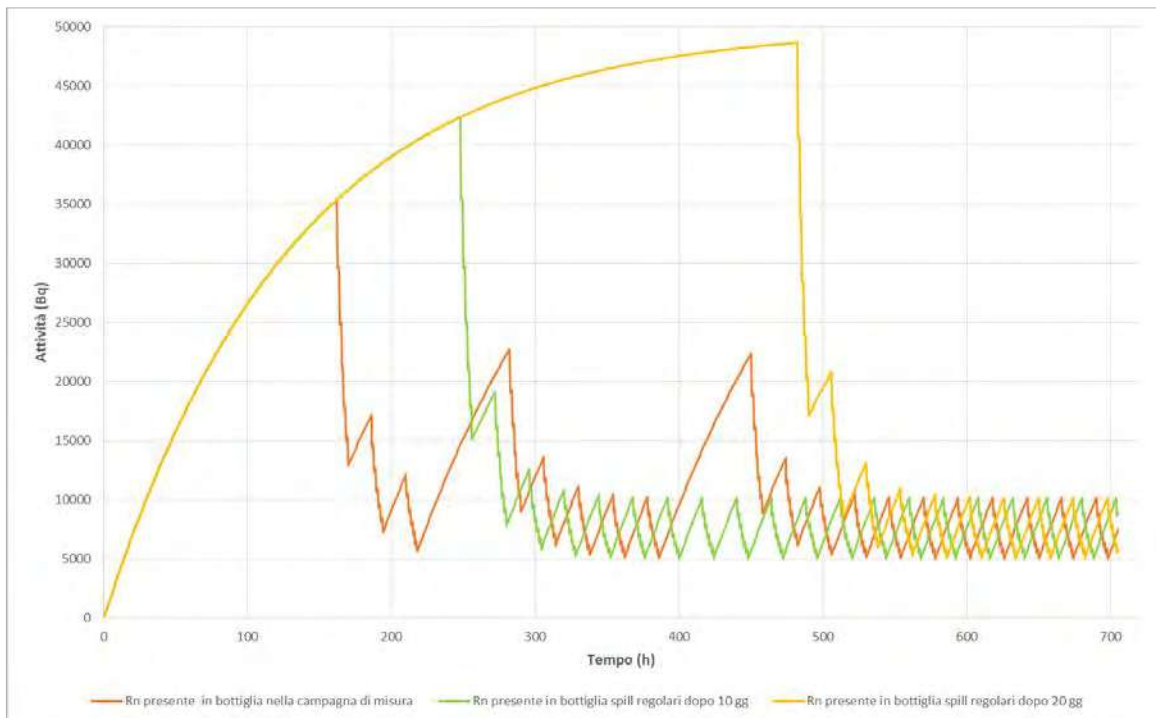
dall'inserimento della fiala nella bottiglia, con continuità anche nel fine settimana; un secondo caso con stesse condizioni del primo, ma inizio degli spillamenti dopo 10 giorni ed infine il terzo caso che riproduce il programma di prove previsto, riportato nella tabella 2. Nel seguente grafico (fig. 5) si riportano i risultati della simulazione.

Tabella 2 - Calendario campionamenti e misure

DATA	CAMPIONAMENTO	ANALISI
20/09/17	Sì	No
21/09/17	Sì	Sì
22/09/17	Sì	Sì
23/09/17	No	-
24/09/17	No	-
25/09/17	Sì	Sì
26/09/17	Sì	No
27/09/17	Sì	No
28/09/17	Sì	Sì
29/09/17	Sì	Sì

E' evidente dal grafico che l'attività giornaliera mediamente presente in bottiglia si attesta a un valore costante al quarto giorno di utilizzo regolare dell'acqua, indipendentemente da quanto tempo sia trascorso dall'inserimento della fiala nella bottiglia o da precedenti periodi di non utilizzo. Questa informazione ha consentito di attuare il programma di prove previsto senza che le interruzioni degli spillamenti in corrispondenza dei fine settimana potessero condizionare l'informazione cercata. Gli obiettivi delle prove si confermano essere da un lato la valutazione dell'attività di radon dissolto in acqua che giornalmente a regime il consumatore incorporava e dall'altro la validazione delle simulazioni con la possibilità, per confronto con i valori sperimentali, di ricavare informazioni sulla quantità di radon dispersa in aria durante gli spillamenti.

Figura 5 – Andamento temporale delle attività di radon in bottiglia



Attività di radon nella bottiglia con inizio spillamenti al 10° giorno dopo l'inserimento della fiala, al 20° e secondo il calendario dei campionamenti riportato in tabella 2.

Da ciascun spillamento sono stati ricavati due campioni da 10 ml ciascuno, introdotti in rispettive vial sotto un battente di 10 ml di scintillatore. Le vial sono state quindi agitate per un minuto, deterse esternamente con alcool etilico e poste a riposare 5 ore all'interno dell'analizzatore Quantulus (Perkin Elmer® Quantulus 1220) per consentire la separazione delle fasi liquide prima di avviare la misura. Il protocollo di misura utilizzato per tutte le vial è stato il seguente: conteggio alfa-beta totale su 60 minuti seguito da somma dei conteggi ottenuti nei canali da 100 a 1000. In fig. 6 si riporta un tipico spettro energetico raccolto durante le misure delle vial.

Figura 6 – Spettro energetico acquisito dall'analizzatore Quantulus.



Tipico spettro energetico acquisito dall'analizzatore Quantulus durante il conteggio sulle vial contenenti i campioni di acqua "radioattivata". I tre picchi che si notano corrispondono (da sinistra a destra) rispettivamente alle emissioni alfa dei seguenti radionuclidi: ^{222}Rn (5.49 MeV), ^{218}Po (6.00 MeV) e ^{214}Po (7.68 MeV).

I DATI

Tramite la misura sulle tre vial contenenti lo standard a diverse concentrazioni, si è determinata un'efficienza totale di misura media pari a 3.74 ± 0.04 . Con questa e i conteggi acquisiti nelle misure sui campioni di acqua (si è preso il conteggio medio derivato dai conteggi delle due vial prodotte per ogni spillamento) è stata valutata l'attività di radon presente in ciascuno dei sei spillamenti quotidiani. Le somme dei sei valori di attività spillata in ciascun giorno di misura sono riportate nella tab. 3.

Tabella 3 - Attività di Rn-222 presente nell'acqua giornalmente spillata dalla bottiglia.
 I dati vengono riportati con la relativa incertezza ($k=1$), componendo le incertezze di conteggio, della massa, dell'efficienza e di ripetibilità.

DATA	ATTIVITA' (Bq)	CONCENTRAZIONE DI ATTIVITA' (Bq·l ⁻¹)	CONDIZIONE A REGIME
21/09/17	4944 ± 64	4371 ± 57	No
22/09/17	3804 ± 49	3363 ± 44	No
25/09/17	6978 ± 90	6170 ± 80	No
28/09/17	3712 ± 48	3282 ± 43	No
29/09/17	3439 ± 45	3041 ± 40	Sì

Pertanto nell'ipotetico uso continuativo della fiala Pagliani, l'utilizzatore incorporerebbe quotidianamente circa 3439 ± 45 Bq di radon.

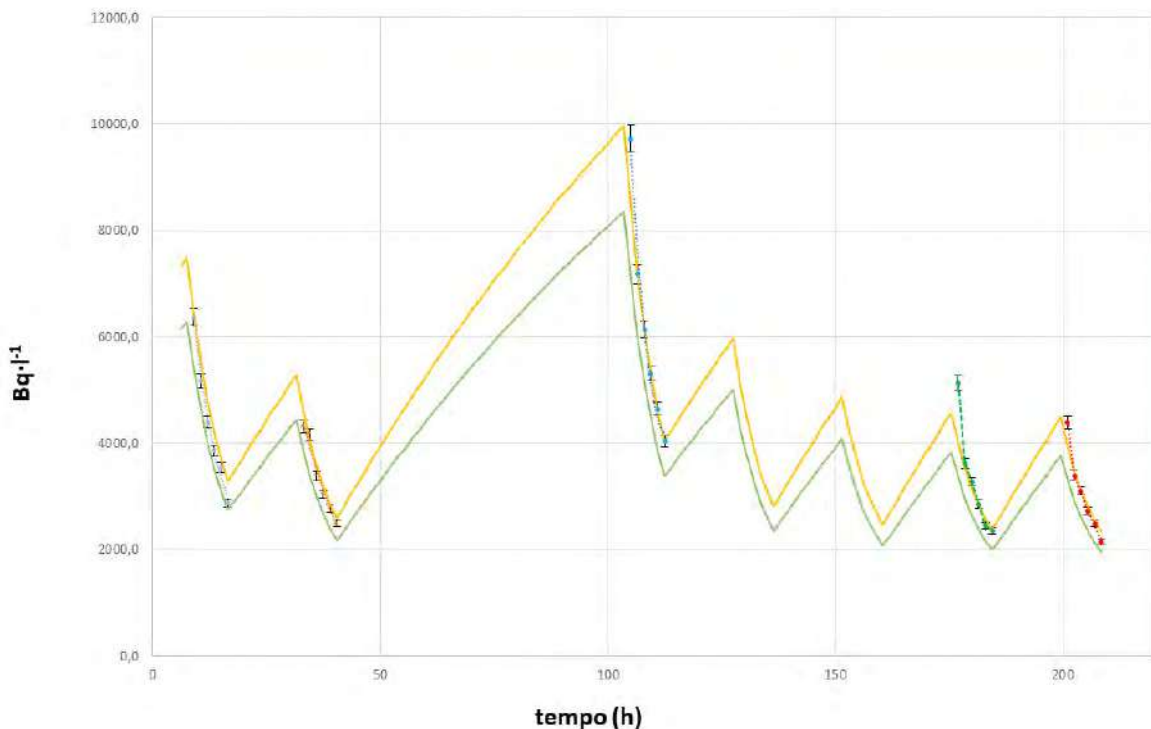
I valori di attività di Rn-222 in bottiglia misurati sono risultati sistematicamente più bassi rispetto i valori ottenuti con la simulazione. Ciò è dovuto principalmente al fatto che la simulazione non tiene conto dei fenomeni diffusivi attraverso la parete ceramica della fiala e che il gas rimanga completamente disciolto in acqua. Inoltre la simulazione trascura le fughe di radon dalla bottiglia tappata e quelle che avvengono durante le diverse fasi di spillamento per effetto dell'apertura della bottiglia e del rimescolamento dell'acqua versata. Per poter quindi confrontare graficamente

l'andamento dei valori di concentrazione di radon misurati con quello dei simulati questi ultimi sono stati scalati di un opportuno fattore.

Per avere anche una conferma sperimentale su queste ipotesi, il giorno 19 ottobre è stato misurato il radon in bottiglia dopo tre settimane dall'ultimo spillamento. In questo tempo il radon dovrebbe essersi portato ad una percentuale del 97.8% del valore all'equilibrio con la sorgente di radio; tale percentuale è stata desunta sempre dalla simulazione, supponendo di mantenere la bottiglia tappata dopo l'ultimo spillamento del 29 settembre. Il valore misurato è di 20827 Bq di Rn-222, già corretto con la citata percentuale di equilibrio. Questo valore è stato introdotto nel foglio Excel della simulazione come attività della sorgente di radio, con lo scopo di traslare i punti simulati verso valori minori e permettere il confronto dell'andamento del grafico con quello delle misure svolte. Il risultato di questa operazione è riportato in fig. 7 assieme ai dati sperimentali e alla simulazione riscalata per il fattore che meglio permette di interpolare i dati sperimentali.

Come si può osservare, mentre la simulazione ottimizzata interpola piuttosto bene quasi tutti i punti sperimentali, la simulazione ottenuta partendo dal valore di radon all'equilibrio sottostima costantemente i valori misurati. Questo fenomeno può essere causato da diversi fattori; ad esempio la curva di crescita del radon in bottiglia è stata stimata a partire dalla concentrazione del radon alla data del 29 settembre e non è un'effettiva curva di crescita partita da concentrazione nulla, quindi è soggetta ad un'incertezza non quantificabile. Analogamente non si può escludere a priori che durante la crescita del radon possano essersi verificate delle fughe di questo dalla bottiglia, giacché è stata movimentata sotto cappa più volte. Per quanto detto, la curva di crescita del radon sarà prossimamente ripetuta a partire da concentrazione nulla e protratta per un periodo di almeno quaranta giorni.

Figura 7 – Concentrazioni di radon in acqua misurate e simulate



Il grafico riporta le concentrazioni di radon in acqua misurate con le relative incertezze ($k=2$). La linea continua gialla rappresenta la simulazione degli spillamenti partendo da un'attività di radio pari a 500 kBq e riscalata di un opportuno fattore; la linea continua verde invece rappresenta la simulazione degli spillamenti partendo da un'attività di radio pari all'attività di radon misurata all'equilibrio.

Infine, per la determinazione del contenuto di radon in acqua all'equilibrio sono stati prodotti quattro campioni. Due di questi sono stati realizzati prelevando l'acqua direttamente dalla bottiglia mentre gli altri due prelevandola secondo la procedura già adottata negli spillamenti. Dalle misure è emersa una differenza pari a $490 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$, questo si traduce in una perdita di circa 90 Bq di radon in ogni spillamento.

E' sorprendente constatare come agli inizi del novecento Pagliani, con uno strumento basato sul principio dell'elettrometro a foglie d'oro (fontactoscopio), riuscisse a valutare con buona precisione il contenuto di radon nell'acqua. Pagliani nelle pubblicazioni sostiene che le sue fiale sono in grado di cedere, a seconda del modello, 200, 300 o 400 unità Mache di radon al giorno. La fiala oggetto di questo studio riporta il numero 3 stampigliato sul fondo della ceramica. Quindi si tratta presumibilmente di una fiala da 300 unità Mache. Poiché una unità Mache equivale a circa 13.4 Bq , l'acqua in cui si immerge tale fiala per il suo ideatore viene a contenere e a fornire ogni giorno 4020 Bq di radon. Nella tabella 2, il giorno 29 settembre, quando si suppone che l'uso della bottiglia abbia raggiunto la condizione di regime, si legge che l'attività giornaliera spillata è di 3439 Bq , in ottimo accordo col valore misurato da Pagliani, ancor più se si tiene conto che nell'uso del fontactoscopio non ci sono spillamenti e quindi nemmeno fughe di radon. In una pubblicità dell'epoca (fig. 8), Pagliani illustra le diverse fiale che produce. La tipo III, da 300 unità Mache, secondo il suo ideatore rilascia ogni giorno all'acqua "120 millimicroCurie" (120 nCi), che corrispondono a 3440 Bq , valore identico a quello che è stato misurato.

Figura 8 – Foglio pubblicitario d'epoca illustrativo della fiala Pagliani.

La FIALA RADIOEMOGENA è preparata sotto la responsabilità dello stesso Prof. L. PAGLIANI della R. Università di Torino, di tre tipi:

Tipo II, generante circa 200 Unità Mache di Radioemazione nelle 24 ore (80 millimicro-Curie);

Tipo III, generante circa 300 Unità Mache di Radioemazione nelle 24 ore (120 millimicro-Curie);

Tipo IV, generante circa 500 Unità Mache di Radioemazione nelle 24 ore (200 millimicro-Curie).

Il tipo II serve a radioattivare la quantità di acqua giornaliera per bevanda abituale (circa un litro) per ogni persona sana, come cura preventiva, o per sofferente di affezioni leggieri. I tipi III e IV per forme morbose più o meno gravi.

L'acqua delle Sorgenti di Gastein ha 200; di Landek 120; di Fuggi 20; di Vichy 11 Unità Mache per litro di Radioemazione.

Sono preparate pure Fiale con maggiori dosi di sale di Radio, per radioattivare insieme più litri di acqua al giorno per collettività.

La RADIOEMANAZIONE, che, senza interruzione, per la durata di più decine di anni, è generata, in costante quantità giornaliera, da ogni singola FIALA RADIOEMOGENA «PAGLIANI», nell'acqua in cui sia questa tenuta successivamente immersa, è sempre fruibile attivissima, perchè in ogni tempo e luogo allo stato nascente. Quella delle Sorgenti naturali ha solo tale suo pieno valore se l'acqua è bevuta alle polle; perchè altrimenti si esaurisce dopo pochi giorni, nell'acqua esportata da queste e comunque conservata.

Le FIALE RADIOEMOGENE «PAGLIANI» sono inviate franche, in assegno, o assicurate contro vaglia; a lire 200 il tipo II, lire 300 il tipo III, e lire 400 il tipo IV; su richiesta al profess. Gr. Cr. L. PAGLIANI, Corso Massimo D'Azeglio, 80 - TORINO. Informazioni e schiarimenti allo stesso indirizzo.

Coll'autorizzazione della R. Prefettura di Torino.

Tipografia Sociale Torinese

Il foglio riporta le diverse tipologie di fiala e le modalità di acquisto.

LA STIMA DI DOSE

La stima di dose, per ingestione, è stata condotta determinando la dose efficace impegnata sui 50 anni successivi all'introduzione. La catena di decadimento del Rn-222 presenta componenti il cui tempo di dimezzamento efficace è estremamente breve: focalizzando l'attenzione sul solo radon si commette un errore sulla stima di dose totale inferiore a un quarantesimo circa. Considerando la situazione di contaminazione come un'esposizione cronica che si protrae per 365 giorni all'anno e ipotizzando una ingestione di 1.131 litri/giorno ad una concentrazione media di

radon di $3041 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$, con un coefficiente di dose di $1.0\text{E-}8 \text{ Sv}\cdot\text{Bq}^{-1}$ si arriva a stimare una dose impegnata di 12.6 mSv per anno di consumo.

Tale valore andrebbe confrontato con il limite di concentrazione suggerito dalla UE (Commissione Europea, 2013) per le acque potabili di $1000 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$, che su un consumo ipotizzato di 600 litri/anno porta ad una dose efficace impegnata di 6 mSv per anno di pratica.

E' necessario anche stimare la dose derivante dall'irraggiamento esterno nel caso in cui la bottiglia venisse conservata in un ambiente frequentato da persone. Il caso peggiore è quello della bottiglia posata sul comodino in prossimità del letto, per il prolungato tempo di esposizione e per la ridotta distanza. Il rateo di dose a 0.5 metri dalla bottiglia piena d'acqua contenente la fiala è stato misurato in circa $0.5 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ (Automess mod. 6150 AD-b, con certificato di taratura 256/2016 del centro LAT 104). Nell'ipotesi che tale distanza sia rappresentativa di quella media tra la persona distesa sul letto e la bottiglia e che la permanenza media a letto sia di 8 ore a notte, nell'arco dell'anno la dose integrata sarebbe approssimativamente pari a 1.5 mSv. Come si può notare, pur non essendo un valore trascurabile, la dose da irraggiamento esterno è circa un decimo rispetto quella da ingestione derivante dal consumo dell'acqua prodotta con la fiala Pagliani.

CONCLUSIONI

La simulazione realizzata ha permesso di valutare l'andamento temporale della concentrazione di radon nell'acqua in bottiglia; il buon accordo con i dati sperimentali, a parte un fattore di scala, ha confermato la sua correttezza ed efficacia. L'attività di radon misurata nei singoli spillamenti per un utilizzo a regime ha consentito di valutare la dose efficace impegnata derivante da un uso costante della fiala e ha permesso di verificare la stima del prof. Pagliani relativa al contenuto di "radioemanazione" nell'acqua prodotta mediante la sua fiala. Il valore di dose stimato di circa 12 mSv per anno di consumo dell'acqua risulta essere il doppio di quello derivante dal consumo di acqua contenente un'attività di radon corrispondente al limite previsto dalla UE per le acque potabili. Questo valore di dose in termini assoluti non comporta un rischio radiologico rilevante e potrebbe risultare anche accettabile a fronte di un beneficio, che andrebbe scientificamente dimostrato, derivante dal consumo di acqua "radioattivata". Forse un rischio radiologico non accettabile è invece legato all'eventualità che la fiala possa rilasciare nel tempo i sali di radio in essa contenuti nell'acqua a causa dell'invecchiamento del materiale usato per sigillarla o per rottura della parete ceramica. In tal caso il consumo di acqua potrebbe comportare l'ingestione di radio 226, con ben altre implicazioni radioprotezionistiche rispetto quelle viste.

Bibliografia

Campi F., Porta A., *Attuazione del piano di intervento prefettizio per le sorgenti orfane presso un impianto termovalorizzatore*, 2016, Atti Convegno Nazionale AIRP – Trieste, 19-21 ottobre.

Pagliani L., *Radio e Radioemanazione – acqua radioattiva*, 1910 circa, La Fiamma Fedele, Officine della Stampa, Firenze.

Forte M., Costantino S., Lunesu D., *ISO 13164-4:2015 - Determinazione della concentrazione di attività di ^{222}Rn nelle acque potabili mediante scintillazione liquida in doppia fase*, 2016, ARPA Lombardia.

Commissione Europea, *DIRETTIVA 2013/51/EURATOM DEL CONSIGLIO del 22 ottobre 2013 che stabilisce requisiti per la tutela della salute della popolazione relativamente alle sostanze radioattive presenti nelle acque destinate al consumo umano*, 2013, Gazzetta Ufficiale dell'Unione Europea.