

RADIOATTIVITÀ NATURALE NELLE ACQUE DI FALDA IN ESTONIA: ANALISI DEI DATI, VALUTAZIONI DOSIMETRICHE E STRATEGIE DI MONITORAGGIO NELL'AMBITO DI UN PROGETTO EUROPEO DI COOPERAZIONE

M. Forte¹, L. Bagnato², E. Caldognetto³, S. Risica⁴, R. Rusconi¹,
F. Trotti³

¹ARPA Lombardia, via Juvara 22, 20129 Milano

²Università di Milano - Bicocca, Piazza Ateneo Nuovo 1, 20126 Milano

³ARPA Veneto, via Dominutti 8, 37135 Verona.

⁴Istituto Superiore di Sanità, Dipartimento di Tecnologie e Salute, viale Regina Elena
299, 00161 Roma.

email per contatti: m.forte@arpalombardia.it

RIASSUNTO

Una vasta parte delle falde acquifere estoni contiene quantità rilevanti di radioattività naturale ed in particolare elevate concentrazioni di isotopi del radio (²²⁶Ra e ²²⁸Ra). Il fenomeno è noto da tempo ed è stato oggetto negli anni di estese campagne di misura, dati i possibili rischi per la popolazione sotto un profilo radioprotezionistico. Dopo l'ingresso dell'Estonia nell'Unione Europea (2003), è stata recepita come legge nazionale anche la Direttiva Comunitaria 98/83 sulle acque destinate al consumo umano. Il valore di parametro per la *dose totale indicativa* di 0,1 mSv/anno è stato inteso come vero e proprio valore limite, così che al possibile problema sanitario si è aggiunto quello del mancato rispetto di un limite di legge per una vasta parte delle risorse idriche del paese.

È stato quindi varato un progetto europeo semestrale di collaborazione (*Twinning Light Project*) che è stato assegnato all'Italia e condotto da ARPA Lombardia e ARPA Veneto con la collaborazione dell'Istituto Superiore di Sanità e di due consulenti

specializzati in gestione di acquedotti e di impianti di trattamento delle acque. Il progetto ha comportato in primo luogo un esame approfondito dei dati esistenti per localizzare e quantificare il fenomeno. Sono state successivamente elaborate valutazioni radioprotezionistiche miranti a permettere successive analisi costo/beneficio sui processi di riduzione/rimozione del contenuto di radioattività. Sono stati poi esaminati i metodi analitici impiegati dai laboratori estoni, piuttosto onerosi nel caso degli isotopi del radio, e valutate le potenzialità laboratoristiche presenti nel paese. Un esame statistico delle correlazioni esistenti tra parametri chimico-fisici e radiometrici delle acque ha permesso di individuare una possibile strategia che potrebbe portare a incrementare notevolmente la conoscenza degli acquiferi anche con ridotte capacità analitiche.

È stato infine proposto un piano di monitoraggio, che consentirebbe una migliore conoscenza del problema ed una più puntuale valutazione dei rischi, e suggerite contromisure immediate per ridurre i rischi alla popolazione con particolare riguardo alla fascia più giovane. Presso alcune stazioni di trattamento delle acque sono state effettuate analisi radiometriche per valutare l'efficacia di questi trattamenti nella rimozione degli isotopi del radio.

INTRODUZIONE

Nella parte settentrionale dell'Estonia il contenuto di radioattività naturale, ed in particolare di isotopi del radio, di alcune acque di falda è relativamente elevato. Il fenomeno è noto da tempo (Mokrik 2009) e determina un contributo non trascurabile alla dose alla popolazione. Recentemente la Direttiva Comunitaria 98/83 (EC 1998) è stata recepita come legge nazionale e il valore di parametro di 0,1 mSv/anno di dose totale indicativa (TID) è stato restrittivamente trasposto come valore limite; come conseguenza una parte importante degli acquedotti estoni sono risultati non conformi al dettato legislativo.

Questa situazione, unitamente al desiderio di approfondire il tema di possibili rischi per la popolazione, ha stimolato il varo di un progetto specifico, sponsorizzato dall'Unione Europea nell'ambito dei programmi di cooperazione per l'inserimento dei nuovi paesi

membri. I principali obiettivi del progetto erano i) l'esame critico dei dati esistenti circa la radioattività nelle acque; ii) la valutazione della dose alla popolazione e di eventuali criticità connesse; iii) l'esame di possibili strategie per migliorare capacità analitiche, qualità dei dati e piani di campionamento e iv) la valutazione di possibili contromisure volte a migliorare la qualità delle acque.

Al progetto hanno partecipato ARPA Lombardia, ARPA Veneto e Istituto Superiore di Sanità. Per quanto riguarda le azioni di rimedio, hanno cooperato l'Ing. Renato Airoidi, già dirigente presso l'acquedotto di Milano e il Dr. Franco Realini, consulente in materia di impianti di trattamento acque.

Il complesso dell'attività svolta è stato riassunto in un report disponibile in rete (EC 2010). Parte dei risultati ottenuti sono stati recentemente pubblicati (Forte 2010).

ANALISI DELLA SITUAZIONE

Idrogeologia ed acquiferi in Estonia

Per quanto non sia inusuale la presenza nelle acque di radioisotopi delle famiglie radioattive naturali, e principalmente ^{234}U e ^{238}U , elevate concentrazioni di ^{226}Ra e ^{228}Ra sono un fenomeno relativamente inconsueto e normalmente limitato ad aree ristrette (IAEA 1990, Cothorn 1990). In Estonia sono presenti più acquiferi sovrapposti, derivanti da diverse epoche geologiche e denominati conseguentemente Quaternario (Q), Siluriano (S), Ordoviciano (O), Cambriano- Vendiano (Cm-V) (Perens 1997). Quest'ultimo è il più profondo: nell'Estonia centrale esso giace ad una profondità di 200-400 m e non viene sfruttato a fini acquedottistici, ma nelle aree costiere risale a circa 100 m e viene normalmente utilizzato come riserva acquifera data la sua abbondanza e la impermeabilità rispetto a possibili inquinamenti dalla superficie. L'acquifero Cambriano-Vendiano è un enorme deposito di acqua fossile (Raidla 2009), con scarsissima ricarica, costituito da siltite e arenaria e adagiato su un basamento geologico di roccia cristallina (granito e gneiss). La elevata radioattività dell'acqua è stata attribuita al contatto prolungato con la roccia cristallina e alle condizioni riducenti che

favoriscono la solubilizzazione del radio (Mokrik 2009). Da un punto di vista chimico, queste acque sono ricche di Na^+ e Cl^- e contengono quantità non trascurabili di ioni meno comuni come Ba^{2+} e F^- (Karro 2004, Marandi 2007).

Il sistema acquedottistico e i dati radiometrici

Nella prima fase del lavoro sono state raccolte e analizzate le informazioni sul sistema acquedottistico e i dati esistenti riguardanti la radioattività. Questi si riferiscono principalmente a pozzi singoli che afferiscono alle stazioni di pompaggio e distribuzione: la loro rappresentatività rispetto all'acqua realmente distribuita dalla stazione, normalmente servita da più pozzi, non è quindi completamente garantita, anche considerando il fatto che in molte stazioni di distribuzione sono presenti impianti di trattamento per abbattere il tenore di ferro e manganese e che quindi l'acqua realmente distribuita è in qualche modo "trattata".

Da un punto di vista amministrativo, il sistema di distribuzione dell'acqua potabile è composto da "*water supply zones*" (WSZ) che sono aree servite da una stazione di distribuzione (o più stazioni molto vicine e simili tra loro) in cui le acque erogate hanno tutte caratteristiche molto simili; queste WSZ possono essere anche intercomunicanti, quindi non si riferiscono necessariamente ad acquedotti distinti. In Estonia esistono 912 WSZ che servono complessivamente 1,1 milioni di persone (su un totale di 1,3 milioni). Queste hanno mediamente piccole dimensioni: 754 di esse, corrispondenti all'84% del totale, servono meno di 500 persone ciascuna.

Nel nord dell'Estonia, ed in particolare a Tallinn, anche le acque superficiali sono utilizzate per il consumo umano. Queste non presentano ovviamente problemi da un punto di vista radioprotezionistico, ma sono meno sicure da un punto di vista chimico e batteriologico oltre ad essere meno gradite agli abitanti.

L'Istituto Geologico Estone possiede un esteso *database* relativo alle indagini chimiche e radiometriche condotte negli ultimi decenni sulle acque estoni: per quanto riguarda la radioattività sono presenti dati di attività alfa e beta totale, di concentrazione di uranio e, soprattutto, di

isotopi del radio (^{226}Ra e ^{228}Ra). La maggior parte dei dati si riferiscono al nord dell'Estonia ed in particolare alla regione di Tallinn (*Harju maakond*) (Fig. 1)¹.

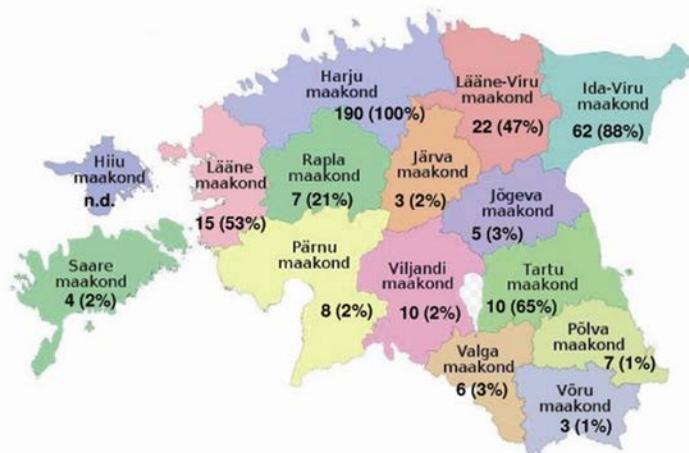


Fig. 1: Numero di dati radiometrici disponibili per regione. Tra parentesi la percentuale di popolazione che utilizza acqua il cui contenuto di radioattività è noto

Successivamente sono stati esaminati con maggior dettaglio i dati riguardanti le concentrazioni di ^{226}Ra e ^{228}Ra che rappresentano la vera criticità da un punto di vista radioprotezionistico. Nelle figure 2, 3, 4 e 5 sono riportate come classi di distribuzione le concentrazioni di ^{226}Ra e ^{228}Ra nell'acquifero Cambriano-Vendiano (il più critico dal punto di vista del contenuto di radioattività e quindi il più studiato) e nei restanti acquiferi più superficiali.

Per l'acquifero Cambriano-Vendiano si evidenzia come in oltre il 90% dei casi le concentrazioni di ^{226}Ra e ^{228}Ra siano superiori a 100 mBq/L, con valori massimi superiori a 1 Bq/l.

Un numero cospicuo di WSZ (140 su 912) si approvvigionano dall'acquifero Cambriano-Vendiano, specie nella parte settentrionale del Paese ed in particolare nelle regioni di *Harju maakond* e *Ida-Viru maakond*.

¹ Questa Figura e le seguenti sono tratte dal lavoro (Forte 2010).

Considerato che alti livelli di radioattività sono riscontrati soprattutto in questo tipo di acque, si conclude che il problema si riferisce principalmente a queste 140 WSZ che distribuiscono acqua a circa 250.000 persone (il 22% della popolazione estone).

Se consideriamo le sole WSZ che si approvvigionano di acque Cambriano-Vendiane e mettiamo in relazione il loro numero con la loro dimensione, intesa come numero di persone servite dalla singola WSZ (Fig. 6), si può notare come la maggior parte delle WSZ (83) servano meno di 500 persone, mentre ben 152.000 persone siano servite dalle 12 WSZ più grandi.

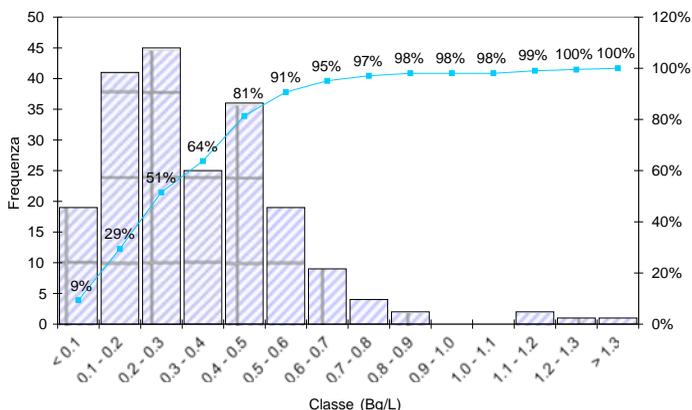


Fig. 2: Distribuzione delle concentrazioni di ²²⁶Ra nelle acque Cambriano-Vendiane (204 dati disponibili)

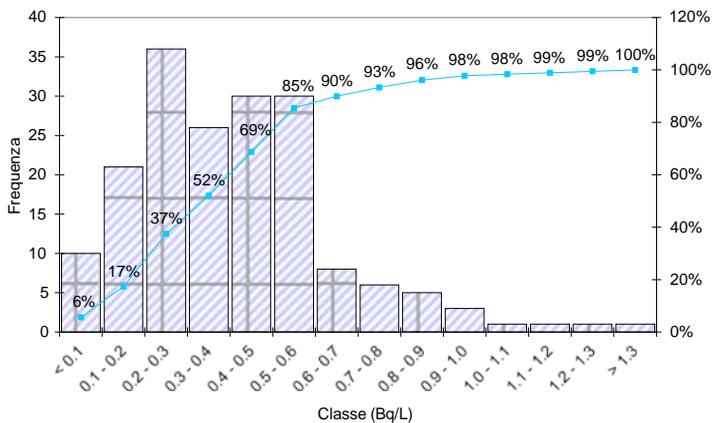


Fig. 3: Distribuzione delle concentrazioni di 228Ra nelle acque Cambriano-Vendiane (179 dati disponibili)

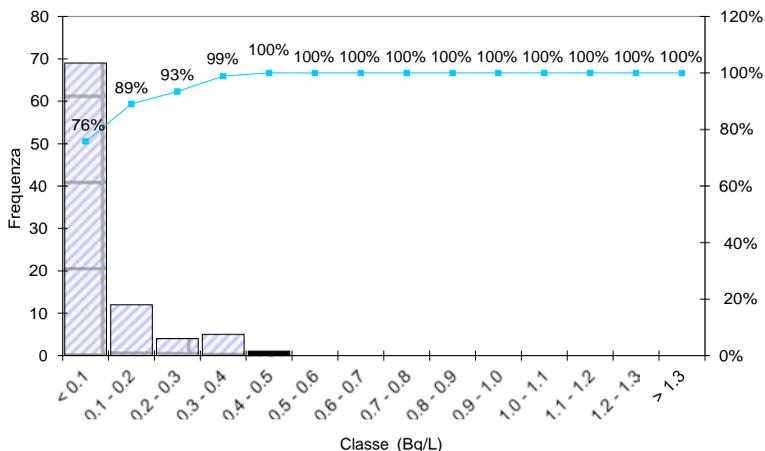


Fig. 4: Distribuzione delle concentrazioni di 226Ra nelle acque non Cambriano-Vendiane (91 dati disponibili)

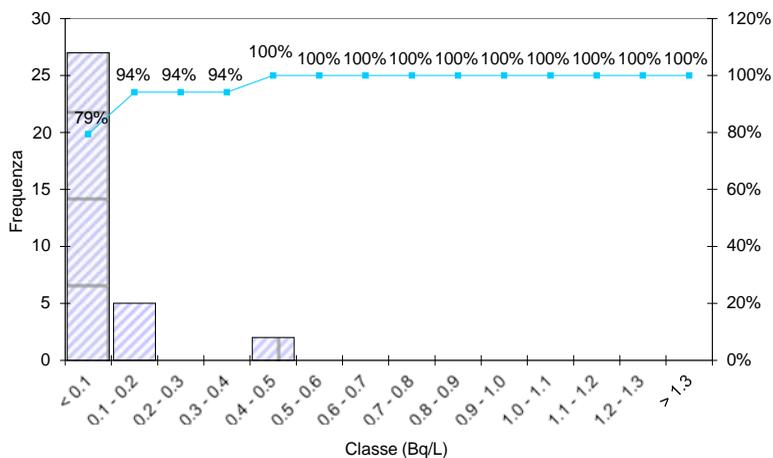


Fig. 5: Distribuzione delle concentrazioni di 228Ra nelle acque non Cambriano-Vendiane (34 dati disponibili)

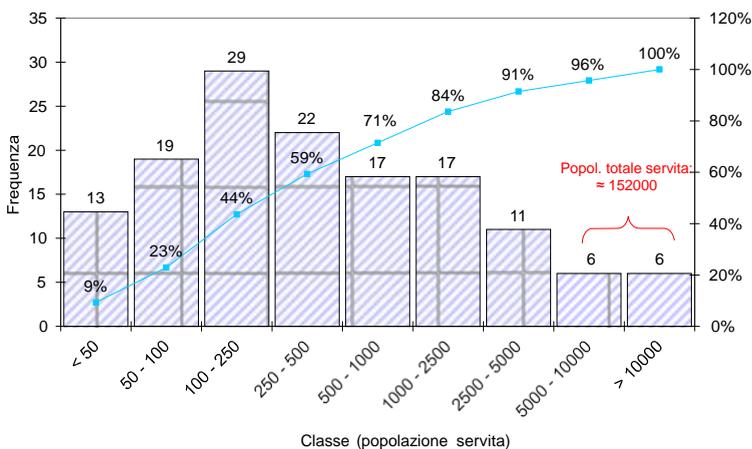


Fig. 6: Distribuzione delle dimensioni delle WSZ Cambriano-Vendiane

Aspetti dosimetrici e normativi

La Direttiva Europea 98/83/EC (EC 1998) sulla qualità dell'acqua destinata al consumo umano riporta nella parte C dell'Allegato 1, per quanto riguarda la radioattività, un valore di parametro per il trizio (100 Bq/L) ed un secondo valore per la *dose totale indicativa* o TID (0,1 mSv/anno), livello che, se superato, richiede una valutazione sui possibili rischi per la salute e sull'opportunità di azioni di rimedio. Tuttavia, nel recepimento in legge della Repubblica Estone, questo valore di parametro è stato fissato come vero e proprio limite.

Pur essendo la TID la somma dei contributi dovuti alla dose dei vari radionuclidi (con l'esclusione di trizio, ^{40}K , ^{222}Rn e suoi prodotti di decadimento), nel caso in esame può essere considerato in prima approssimazione il solo contributo degli isotopi del radio ^{226}Ra e ^{228}Ra , di gran lunga preponderante (Forte 2010).

La Direttiva Europea non entra nel dettaglio di come vada applicato il valore di parametro per la TID, ma le Linee guida dell'Organizzazione Mondiale della Sanità (OMS) in vigore durante le attività del progetto di collaborazione (WHO 2004) - largamente utilizzate come "norme di buona tecnica" per gli aspetti carenti della Direttiva - calcolavano dei livelli derivati (*guidance level*) in Bq/l

solo per gli adulti. Ciononostante per le acque estoni abbiamo esteso le valutazioni anche alle classi di età inferiori, in particolare i lattanti, allo scopo di fornire alle Autorità locali un ulteriore elemento per le decisioni future, a livello sia normativo che di gestione delle risorse idriche. Questa scelta è risultata in linea con quanto riportato nella nuova edizione delle Linee guida OMS (WHO 2011), che, anche se non modifica le scelte relative al calcolo dei *guidance level*, scrive esplicitamente "Although infants and children consume lower mean volume of drinking water, the age-dependent dose coefficients for children are higher than those for adults, accounting for higher uptake or metabolic rates. In the case of prolonged contamination of the water source, an assessment of doses to infants and children may be considered".

Nelle Figure 7 e 8 vengono riportate le classi di TID nel caso degli adulti per diversi tipi di acquifero. Per il calcolo sono stati utilizzati i coefficienti di dose in vigore nella legislazione comunitaria (Risica 2000). Si può osservare che ben il 92% delle acque dell'acquifero Cambriano-Vendiano eccedono il valore limite estone; va però messo in rilievo che anche una frazione non trascurabile (21%) delle acque provenienti dagli altri acquiferi superano questo valore.

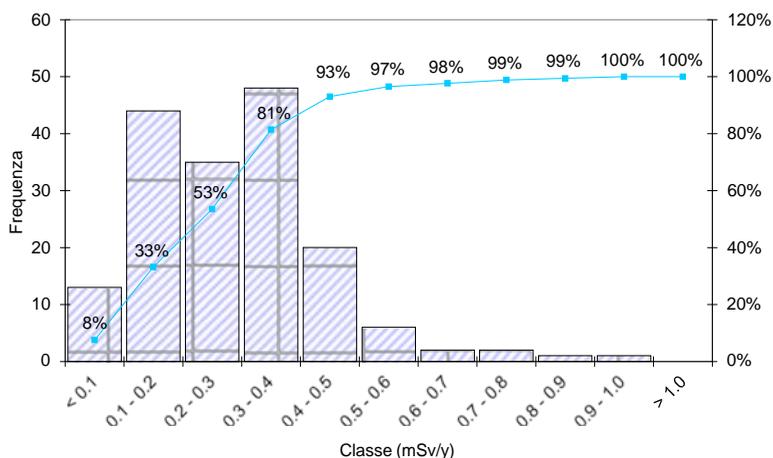


Fig. 7: Distribuzione della dose totale ind. (TID) per gli adulti - acque Cambriano-Vendiane (172 dati disponibili)

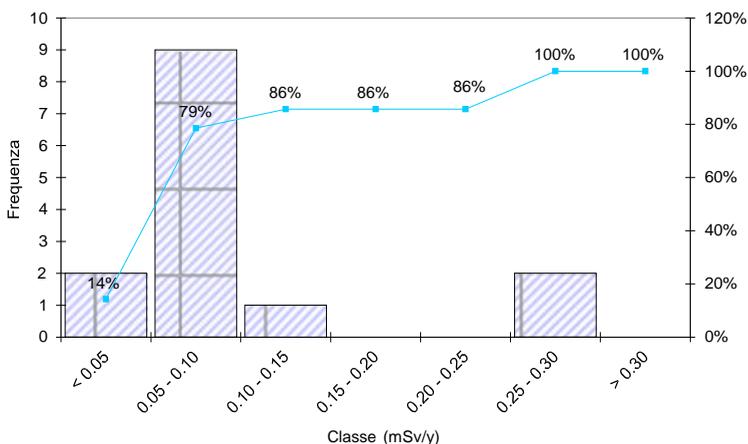


Fig. 8: Distribuzione della dose totale ind. (TID) per gli adulti - acque non Cambriano-Vendiane (14 dati disponibili)

Naturalmente la percentuale di acque con TID superiore a 0,1 mSv/anno è superiore se vengono considerate le altre classi di età, ed in particolare i lattanti (Fig. 9 e 10). Di particolare rilievo per questa classe di età sono i valori massimi della TID per le acque Cambriano-Vendiane che eccedono i 10 mSv/anno e il fatto che la TID per le acque sia Cambriano-Vendiane che non Cambriano-Vendiane eccede sempre il valore limite estone.

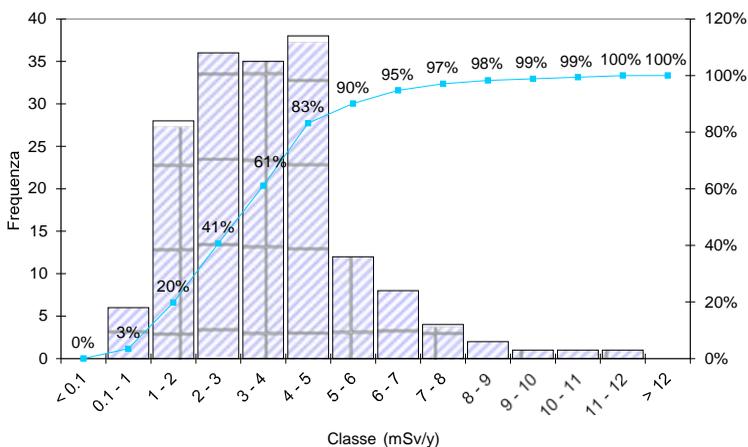


Fig. 9: Distribuzione della dose totale (TID) per i lattanti - acque Cambriano-Vendiane (172 dati disponibili)

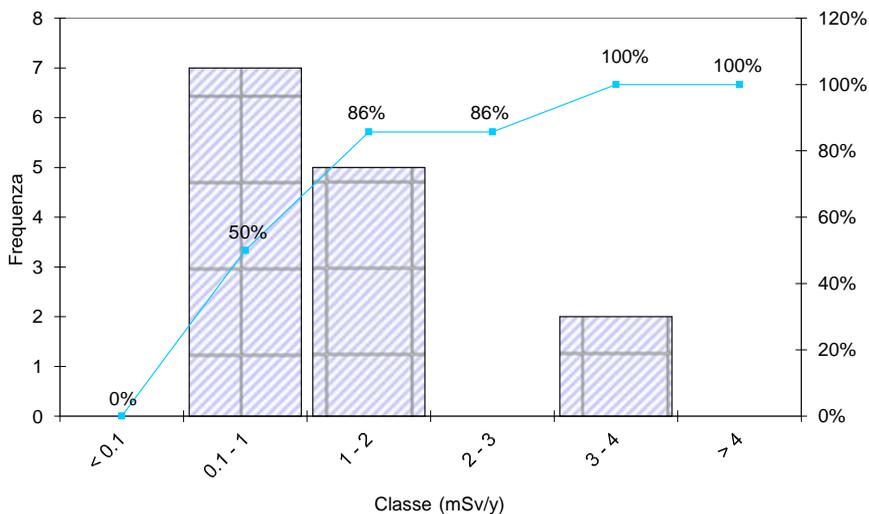


Fig. 10: Distribuzione della dose totale ind. (TID) per i lattanti - acque non Cambriano-Vendiane (14 dati disponibili)

Per le acque Cambriano-Vendiane vengono riassunti in Tab. 1 i risultati per tutte le classi di età.

	Dose totale indicativa (mSv/anno)						
	Classe d'età (anni)						
	≤ 1	1 - 2	2 - 7	7 - 10	10 - 12	12 - 17	> 17
Media	3,6	1,0	0,6	0,7	0,9	1,7	0,3
Deviazione standard	1,9	0,5	0,3	0,4	0,5	0,9	0,2
Mediana	3,5	0,9	0,6	0,7	0,8	1,6	0,3
95° percentile	7,0	1,9	1,1	1,3	1,7	3,3	0,6

Tab. 1: Dose totale indicativa per la popolazione estone delle diverse classi di età (acque Cambriano-Vendiane)

Parametri analitici rilevanti

Nel caso delle acque estoni i parametri radiologici più rilevanti sono le concentrazioni di ^{226}Ra e ^{228}Ra ed in particolare quest'ultima che è responsabile della frazione maggiore della TID (mediamente 74% nel caso degli adulti e 88% nel caso dei lattanti). Le analisi radiometriche implicano tempi e costi elevati e pertanto è stato effettuato un attento esame per 1) individuare i parametri più utili e semplici da misurare 2) evidenziare ove possibile correlazioni tra parametri chimico-fisici e radiometrici da utilizzare come criteri di *screening*. Per una descrizione dettagliata si rimanda ad altre pubblicazioni (EC 2010, Forte 2010), mentre di seguito vengono riassunti i risultati rilevanti:

- sembrano esistere relazioni tra le concentrazioni degli isotopi del radio e parametri chimico-fisici singoli (ad es. residuo fisso) o multipli, evidenziati con l'analisi multivariata (come: residuo + Fe^{2+} + Ba^{2+}) che però dovrebbero essere confermate su una più ampia base dati;
- all'interno del gruppo delle acque Cambriano-Vendiane esiste una relazione tra le concentrazioni di ^{226}Ra e ^{228}Ra .

Questa seconda relazione assume particolare importanza perché implica che utilizzando i coefficienti di correlazione trovati è possibile ottenere una prima stima approssimativa della dose totale indicativa con la sola misura del ^{228}Ra (Fig. 11), effettuabile mediante spettrometria gamma previa preconcentrazione del campione. Con una tecnica relativamente diffusa, veloce e relativamente poco costosa è quindi possibile effettuare un primo *screening* delle acque.

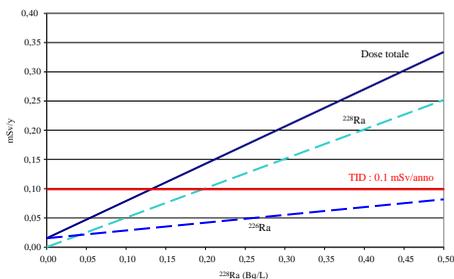


Fig. 11: Dipendenza della dose totale indicativa dalle concentrazioni di ^{228}Ra (le linee tratteggiate indicano il contributo dei due isotopi del radio)

Tenuto conto delle incertezze legate ai parametri statistici si può concludere che:

- acque con $^{228}\text{Ra} < 0,1 \text{ Bq/L}$ ragionevolmente presentano TID $< 0,1 \text{ mSv/anno}$
- acque con $^{228}\text{Ra} > 0,15 \text{ Bq/L}$ ragionevolmente presentano TID $> 0,1 \text{ mSv/anno}$

Si è inoltre concluso che, in questo caso, la misura dell'attività alfa/beta totale è di scarsa utilità. Non possono infatti essere applicati i parametri di *screening* proposti dall'OMS (0,5 mBq/L per l'attività alfa totale e 1 Bq/L per l'attività beta totale) (WHO 2004, WHO 2011) perché basati sull'assunto che i radionuclidi predominanti siano gli isotopi dell'uranio. Inoltre, dal momento che in questo caso la maggior parte della dose è ascrivibile all'emettitore beta ^{228}Ra , il fattore di confondimento rappresentato dal ^{40}K riduce ulteriormente l'utilità della determinazione.

PROPOSTE OPERATIVE E CONCLUSIONI

Monitoraggio delle acque

Un primo suggerimento alle Autorità estoni ha riguardato il miglioramento, sia in termini di qualità che in termini di rappresentatività del *database* radiometrico.

Pur essendo importante la conoscenza delle caratteristiche delle singole prese d'acqua, deve essere sicuramente valutata la radioattività dell'acqua al consumo, quindi dopo miscele e trattamenti. Il monitoraggio deve essere organizzato in modo tale da garantirne la rappresentatività e quindi permettere una stima affidabile della dose alla popolazione. Deve essere inoltre ampliato il monitoraggio delle acque dell'Estonia centrale e meridionale che contengono quantità inferiori ma non trascurabili di radionuclidi.

I parametri più importanti da misurare sono certamente le concentrazioni di ^{226}Ra e ^{228}Ra , che contribuiscono in maniera

preponderante alla dose totale indicativa; in particolare è prioritaria la determinazione di quest'ultimo radionuclide. Il ^{228}Ra può essere misurato mediante spettrometria gamma, previa preconcentrazione del campione. Siccome questa è una tecnica relativamente diffusa, rapida e relativamente poco costosa (diversi Istituti in Estonia sono sufficientemente attrezzati a questo proposito), una prima campagna di monitoraggio potrebbe basarsi sulla misura gamma delle acque. Sarebbe opportuno garantire preventivamente la qualità e la confrontabilità dei dati mediante opportuni interconfronti, anche interni, tra gli Enti che collaborano al monitoraggio. Gli altri radionuclidi potrebbero essere utilmente determinati in un numero minore ma rappresentativo di casi. Non appare comunque utile la misura delle attività alfa e beta totali.

L'analisi statistica dei dati ed in particolare la ricerca di correlazioni tra parametri chimici e radiometrici andrebbe approfondita. In caso di esito positivo, le analisi chimiche (che vengono solitamente effettuate sulla totalità delle acque) potrebbero divenire un'utile "spia" di casi di elevata radiocontaminazione.

Contromisure

L'adozione del valore di 0,1 mSv/anno per la dose totale indicativa (TID) relativa all'acqua come limite di legge appare un criterio troppo rigido in una prospettiva che miri a bilanciare costi e benefici, dal momento che l'acqua di rete è una risorsa primaria ed essenziale e anche tenuto conto dei principi ALARA. Ciò nondimeno sono state valutate varie possibilità di intervento.

La possibilità di migliorare la qualità radiometrica dell'acqua è stata esaminata ampiamente e discussa nel Rapporto Tecnico finale (EC 2010); la riduzione delle concentrazioni di radio è complessa e costosa e può portare ad un sostanziale peggioramento della qualità dell'acqua. Nel corso della progetto sono state anche effettuate misure in ingresso ed in uscita dagli impianti di trattamento esistenti, progettati per ridurre le concentrazioni di ferro e manganese, ma la loro capacità di ridurre le concentrazioni di radio appare molto

variabile e comunque insufficiente. È indubbio che per ridurre selettivamente la concentrazione di radio senza impoverire eccessivamente le acque debbano essere impiegati metodi appositamente studiati (una sperimentazione è stata già avviata presso il Politecnico di Tallinn), tuttavia la loro applicazione è ipotizzabile solo nelle stazioni di grandi dimensioni (vedi Fig. 6). Pertanto l'eccessiva frammentazione del sistema acquedottistico è un importante ostacolo all'adozione di sistemi avanzati di trattamento delle acque.

Anche nel nord dell'Estonia vengono utilizzati in parte acquiferi più superficiali. Una miglior selezione delle fonti, previa valutazione radiometrica, ed una loro opportuna miscelazione possono in alcuni casi non rendere necessario il trattamento nelle acque. Anche in questo caso la razionalizzazione degli acquedotti unita all'impiego di un "criterio radiometrico" nella progettazione degli impianti può produrre significativi miglioramenti.

Nonostante le precedenti raccomandazioni dell'Organizzazione Mondiale della Sanità (WHO, 2004) invitassero a considerare unicamente le dosi alla popolazione adulta e la Direttiva Europea non desse indicazioni in merito, si è ritenuto importante valutare anche le dosi a lattanti, bambini ed adolescenti, che sono risultate per nulla trascurabili. Per questo motivo, una serie di contromisure sia a livello di informazione, come ad esempio scoraggiare l'uso delle acque più radiocontaminate per la preparazione degli alimenti nella prima infanzia, o regolamentari, come stabilire vincoli sul tipo di acque da utilizzarsi nella preparazione di "*soft drinks*", potrebbero essere utilmente considerate.

BIBLIOGRAFIA

- Cothorn C.R., Rebers P.A. (1990): “*Radon, radium and uranium in drinking water*” Lewis Publisher, Chelsea (U.S.A.).
- EC (1998): “*Direttiva 98/83/CE del Consiglio del 3 novembre 1998 concernente la qualità delle acque destinate al consumo umano*”. Gazzetta Ufficiale delle Comunità europee L330/32, 5.12.98.
- EC (2010): “*Estimation of concentrations of radionuclides in Estonian ground waters and related health risks*”. European Commission. Estonian Transition Facility 2006/18111.05.01.0005. Twinning Light Contract No. EE06-IB-TWP-ESC-03. Available at: http://ita.arpalombardia.it/ITA/area_download/index_download.asp
- Forte M., Bagnato L., Caldognetto E., Risica S., Trotti F. and Rusconi R. (2010): “*Radium isotopes in Estonian groundwater: measurement, analytical correlations, population dose and a proposal for a monitoring strategy*” J. Radiol. Prot. **30**, 761-780.
- IAEA (1990): “*The environmental behaviour of radium*”, Technical Report STI/DOC/10/310, Vienna.
- Karro E., Marandi A. (2004): “*The origin of increased salinity in the Cambrian-Vendian aquifer system on the Kopli peninsula, northern Estonia*” Hydrogeology J. **12**, 424-435.
- Marandi A. (2007): “*Natural chemical composition of groundwater as a basis for groundwater management in the Cambrian-Vendian aquifer*” Dissertation, Ph.D. Thesis, Tartu University.
- Mokrik R., Karro E., Savitskaja L., Drevaliene G. (2009): “*The origin of barium in the Cambrian-Vendian aquifer system, North Estonia*” Estonian J. Earth Sci. **58**, 193-208.
- Perens R., Vallner L. (1997): “*Water bearing formation*” in Geology and mineral resources in Estonia. Estonian Academy Publishers, Tallinn 137-145.
- Raidla V., Kirisimae K., Vaikmae R., Joeleht A., Karro E., Marandi A., Savitskaja L. (2009): “*Geochemical evolution of groundwater in the Cambrian-Vendian aquifer system of the Baltic basin*” Chem. Geology **258**, 219-231.
- Risica, S., Grande, S. (2000): “*Council Directive 98/83/EC on the quality of water intended for human consumption: calculation of derived activity concentrations*” Rapporti ISTISAN 00/16, p.47.

available at : www.iss.it/binary/publ/publi/0016.1109850012.pdf.

WHO (2004): World Health Organization. *Guidelines for Drinking-water Quality*. Third edition, Volume 1 Recommendations, World Health Organization Geneva, 2004.

WHO (2011): World Health Organization. *Guidelines for Drinking-water Quality*. Fourth edition, World Health Organization Geneva, 2011.