

## ESTUDIO 3

---

### Análisis de la radiactividad en aguas del balneario

**Title in English:** *Radioactivity analysis of spa water*

M<sup>a</sup> del Carmen Heras Íñiguez\*, Ana M<sup>a</sup> Suárez Fidalgo, Catalina Gascó Leonarte, Beatriz Romero del Hombrebueno Pozuelo, José Antonio Trinidad Ruiz, M<sup>a</sup> Antonia Simón Arauzo.

Departamento de Medio Ambiente (CIEMAT). Avda. Complutense, 40, 28040 Madrid. \*mc.heras@ciemat.es

**An. Real. Acad. Farm. Vol 81, Special Issue (2015) pp. 45-53.**

#### RESUMEN

Se ha realizado el estudio radiológico del agua del manantial del Balneario de Olmedo en la provincia de Valladolid.

Este estudio ha consistido en la determinación cuantitativa de los radionucleidos naturales más importantes desde el punto de vista de la protección radiológica existentes en las aguas del balneario.

La medida del contenido radiactivo de las aguas constituye un tema cuyo estudio resulta de gran interés. Las aguas con elementos radiactivos disueltos pueden producir, como consecuencia directa de su consumo, dosis de irradiación interna tanto por ingestión como por inhalación de estos elementos. Debido a esto es necesario, en algunos casos, proceder al análisis y posterior evaluación de la dosis asociada a este consumo

**Palabras clave** Radiactividad; Radionucleido; Periodo de semidesintegración; Series radiactivas.

#### ABSTRACT

Radioactivity analysis of Olmedo Spa water was carried out by the CIEMAT Laboratory of Environmental Radioactivity. With this aim the most important natural radionuclides were determined in water from spring water.

The measurement and knowledge of radioactivity level in water is an interesting and convenient topic. The consumption of water which has dissolved some radionuclides could lead to internal irradiation both by ingestion and by inhalation. Therefore it is necessary, in some cases, to determine the water radioactivity level in order to assess the dose.

**Keywords:** Radioactivity; Radionuclides; Half live; Radioactive series.

## **1. INTRODUCCIÓN**

La Unidad de Radioactividad Ambiental y Vigilancia Radiológica del departamento de Medio Ambiente del CIEMAT ha realizado un estudio de la radiactividad en el manantial del Balneario de Olmedo. Este trabajo está englobado dentro de un estudio más amplio sobre las características generales de los balnearios españoles en el que se incluyen las características radiológicas de sus aguas mineromedicinales.

Las aguas subterráneas que circulan por la corteza terrestre constituyen agentes fundamentales en los procesos geológicos de formación. Siendo un solvente natural complejo y dinámico, el agua participa tanto en los procesos de disolución y transporte como en las reacciones químicas y en la transferencia de calor, gases y elementos químicos. Como consecuencia de ello es el principal medio de dispersión y transporte de los elementos radiactivos naturales a través de la biosfera y de los niveles tróficos hasta alcanzar al hombre.

Los isótopos radiactivos que habitualmente se encuentran presentes en el agua, a excepción del K-40, tritio y carbono-14 que son de origen cosmogénico, proceden de las series radiactivas naturales de los radionucleidos primarios U-238, U-235 y Th-232, que se encuentran distribuidos abundantemente, aunque de forma desigual, en la corteza terrestre.

Estos radionucleidos cabeza de las series radiactivas son denominados radionucleidos primigenios, ya que proceden de los primitivos materiales que se acumularon en la formación de la tierra, y por sus largos periodos de semidesintegración están aún presentes. La mayor parte de los otros radionucleidos miembros de las series son de periodos más cortos y se están produciendo continuamente por la desintegración de sus precursores, de periodos largos.

La mayor o menor concentración de estos radionucleidos en las aguas viene condicionada no sólo por la mayor abundancia en el terreno sino también por las características físico-químicas de cada uno de ellos individualmente (solubilidad, etc.). Ello hace que los equilibrios radiactivos seculares entre los radionucleidos existentes en los terrenos se alteren radicalmente en las aguas que los disuelven y acumulan. Un caso típico es el Rn-222, cuya actividad en agua suele ser mucho mayor que la de su progenitor el Ra-226, de características físico-químicas distintas, a pesar de su periodo de semidesintegración mucho más corto.

## **2. MATERIAL Y MÉTODOS**

### **2.1. Muestras**

Las muestras se tomaron en septiembre de 2012 en el punto de emergencia del manantial (Figura 1), en la figura 2 aparece el punto de surgencia que se usaba anteriorme. Para el análisis del radón se utilizaron envases de tipo Marinelli de 500 mL de capacidad que se llenaron hasta el borde, se cerraron herméticamente, se anotó la hora exacta de la toma de muestra y se midieron en el laboratorio antes de las 72 horas.

Para el resto de los análisis se tomaron 10 L de agua en dos garrafas de polipropileno nuevas y se acidularon con HNO<sub>3</sub> hasta pH inferior a 2.



**Figura 1.** Punto de emergencia del manantial



**Figura 2.** Punto de surgencia.

## **2.2. Índices de actividad alfa y beta total**

Una estimación del contenido de la radiactividad en el agua nos la proporcionan los llamados índices de radiactividad alfa total y beta total, cuya medida es simple y rápida y que nos permite decidir sobre la necesidad de realizar determinaciones cuantitativas e individualizadas de los posibles radionucleidos presentes.

Estas medidas son, como su nombre indica, unos índices y por tanto proporcionan unos valores orientativos, los cuales se expresan refiriendo toda la actividad alfa como si fuera Am-241 y la actividad beta como Sr-90 en equilibrio con el Y-90.

La determinación de los citados índices se ha realizado siguiendo los procedimientos normalizados en el laboratorio (1,2)

Los equipos utilizados han sido un contador de centelleo sólido de sulfuro de cinc (Ag), modelo 2007P de la firma "Canberra", para la medida de la actividad alfa, y un contador proporcional de flujo de gas, modelo Berthold 6B-770/2, para la medida de la actividad beta.

### 2.3. Determinación de radionucleidos específicos

La selección de los radionucleidos a determinar se ha basado fundamentalmente en criterios de peligrosidad radiológica, según su contribución a las dosis del hombre por ingestión o inhalación. Siguiendo este criterio se ha elegido en primer lugar el Rn-222 y su progenitor el Ra-226, que son los principales contribuyentes de la radiactividad de la serie del U-238, debido a sus descendientes de periodo de semidesintegración corto, con los cuales alcanza rápidamente el equilibrio. Los restantes radionucleidos seleccionados han sido fundamentalmente aquellos de periodo de semidesintegración largo, que son los únicos que se pueden determinar en la práctica aunque se haya roto el equilibrio radiactivo entre los diferentes radionucleidos de la serie.

Los radionucleidos seleccionados han sido los siguientes:

#### *Rn-222*

En general, el mayor porcentaje de radiactividad de las aguas subterráneas se debe a la presencia de Rn-222. Debido a sus propiedades físico-químicas se produce una acumulación de radón en el agua que da lugar a valores de actividad muy superior a la debida al simple equilibrio radiactivo con su progenitor. Por otra parte, la presencia de Rn-222 juega un papel primordial en la actividad total de las aguas, no sólo por su propia radiactividad sino porque es el precursor de una serie de radionucleidos de periodos de semidesintegración cortos, tales como el Pb-214 ( $T_{1/2}= 26,8$  minutos) y Bi-214 ( $T_{1/2}=19,8$  minutos), que contribuyen en gran medida a los valores de actividad encontrada en las aguas.

El Rn-222 pertenece a la serie radiactiva del U-238, forma parte de los gases nobles, grupo de elementos químicos de muy poca reactividad química, por lo que su disolución y arrastre por el agua se realiza mediante procesos físicos.

Los métodos de medida “in situ” en el propio manantial son menos sensibles y precisos que los métodos de determinación de radón en el laboratorio, que es como se han realizado. Para ello se requiere una toma de muestra de agua en el balneario sin pérdidas de radón, utilizando para la misma un recipiente herméticamente cerrado.

La determinación del Rn-222 se realiza por medida directa mediante la técnica de espectrometría gamma del envase que contiene la muestra. El cálculo de la actividad se realiza sobre los fotopicos del Pb-214 y Bi-214, en equilibrio con el Rn-222 (3). El equipo utilizado es un detector de germanio intrínseco “reverse” (Rege) con su correspondiente cadena electrónica asociada. El detector está rodeado con un blindaje de plomo de 10 cm. de espesor para reducir el fondo.

### *Ra-226*

El Ra-226 es un radionucleido emisor alfa con un periodo de semidesintegración  $T_{1/2}=1600$  años y es el precursor del Rn-222. Su determinación en agua se realiza según el procedimiento normalizado (4) mediante una separación radioquímica del radio utilizando portador de bario. Las medidas se realizan con un detector de centelleo sólido de sulfuro de cinc a distintos intervalos de tiempo a partir del momento de separación y mediante el planteamiento y resolución de un sistema de ecuaciones simultáneas se obtienen las actividades de Ra-226 y Ra-224.

### *U-238, U-235, U-234*

Los isótopos de uranio se han determinado utilizando la técnica de espectrometría alfa, previa separación radioquímica y deposición electrolítica sobre un disco de acero inoxidable, utilizando como patrón interno el U-232 (5).

### *Th-230, Th-232, Th-228*

Los isótopos de torio se han determinado por la espectrometría alfa (6) previa separación radioquímica y utilizando como patrón interno el Th-229.

El Th-230 pertenece a la serie radiactiva natural del U-238 y tiene un periodo de semidesintegración  $T_{1/2}=80.000$  años. Su determinación es muy importante por tratarse de un radionucleido muy restrictivo desde el punto de vista de protección radiológica, dado que es un emisor alfa con un periodo de semidesintegración muy largo.

### *Po-210*

El Po-210 es un radionucleido emisor alfa con un periodo de semidesintegración de  $T_{1/2}=138,4$  días. Es descendiente directo del Pb-210 y Bi-210, que a su vez provienen de la cadena de desintegración del Rn-222. Su determinación en agua se realiza según el procedimiento normalizado (7) mediante un autodepósito sobre disco de plata en medio reductor, citrato sódico y bismuto en baño de agua termostatizado ( $90^{\circ}$  C). El rendimiento químico del procedimiento se determina por medio de un trazador de Po-209. La medida se realiza mediante espectrometría alfa de alta sensibilidad y bajo fondo con detector de Si implantado.

### *K-40*

El K-40 es un emisor beta-gamma con un periodo de semidesintegración  $T_{1/2}=1.28E+09$  años. Su determinación se realiza por espectrometría gamma (3) a partir del fotopico de 1460 keV.

El tritio es un emisor beta con un periodo de semidesintegración  $T_{1/2}=12,33$  años. Su determinación se puede llevar a cabo mediante destilación y medida directa por centelleo líquido, o por concentración electrolítica y medida por centelleo líquido (8). Mediante concentración electrolítica los límites de detección son veinte veces menor que los de medida directa.

### 3. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

En la Tabla 1 se muestra la actividad obtenida para los diferentes radionucleidos, expresada Bequerelios/Litro y su incertidumbre asociada para un factor de  $k = 2$ .

**Tabla 1.** Resultados del estudio radiológico del agua del Balneario de Olmedo.

Análisis	Actividad Bq/L
Alfa total	6,9E-01±6,5E-02
Beta total	1,9E+00±3,8E-01
Rn-222	3,1E+00±2,4E-01
Ra-226	1,9E-02±4,0E-03
U-238	2,7E-01±2,2E-02
U-235	1,1E-02±3,1E-03
U-234	5,2E-01±3,8E-02
Th-232	ND
Th-230	9,0E-04±2,0E-04
Th-228	6,1E-04±2,0E-04
Po-210	2,0E-03±7,0E-04
Tritio	ND
K-40	ND

ND: no detectable

Según el Vademécum de aguas mineromedicinales españolas (9) se clasifican como aguas radiactivas las que tienen más de 67,3 Bq/L por lo que esta agua no podrían clasificarse como tales ya que su actividad es inferior (3,1 Bq/L).

Sin embargo tanto el valor de la actividad alfa total como el de la actividad beta superan los valores de actividad permitida para las aguas de consumo humano 0,1

Bq/L para alfa y 1 Bq/L para beta (10) aunque esta normativa no aplica a las aguas mineromedicinales

Se han comparado los valores encontrados de la actividad alfa total, beta total y Rn-222 con los valores máximos y mínimos encontrados en estudios anteriores de otros balnearios, como se puede ver, son algo superiores a los mínimos están lejos de acercarse a los valores máximos.

**Tabla 2.** Comparación de los resultados de actividad del balneario de Olmedo con otros balnearios

<i>Análisis</i>	<i>Olmedo Bq/L</i>	<i>Máximo Bq/L</i>	<i>Mínimo Bq/L</i>
Alfa total	0,69 ± 0,07	48	0,08
Beta total	1,85 ± 0,38	95	0,05
Rn-222	3,07 ± 0,24	270	0,03

#### **4. CONCLUSIONES**

En las aguas del Balneario de Olmedo, no se ha detectado isótopos radiactivos de origen artificial. La actividad detectada es debida a la presencia de radionucleidos de origen natural pertenecientes a las series radiactivas del 238U, 235U y 232Th.

La actividad debida a la presencia de 222Rn en las aguas de este balneario es similar a los valores habituales encontrados en aguas subterráneas, tanto en España como en otros países, y a los encontrados en los otros balnearios estudiados anteriormente.

A la vista de los resultados obtenidos, se puede concluir que las aguas del Balneario de Olmedo tienen niveles bajos de radiactividad.

#### **5. REFERENCIAS**

1. Trinidad JA, Romero del Hombrebueno B. Determinación de la actividad alfa total en aguas por centelleo sólido. (RA/PT-L501). Dpto. de Medio Ambiente. CIEMAT 2013.
2. Simón MA, Heras MC. Determinación del índice de actividad beta total y beta resto en aguas mediante contador proporcional. (RA/PT-L204). Dpto. de Medio Ambiente. CIEMAT. 2013.
3. Suárez JA. Determinación de emisores gamma en muestras ambientales. (RA/PT-L301). Dpto. de Medio Ambiente. CIEMAT 2013.
4. Gómez V, Heras MC, García MR. Procedimiento para la determinación de Ra-226 y Ra-224 en aguas y en suelos, mediante separación radioquímica y posterior medida alfa con contador

proporcional reflujo continuo de gas o contador de centelleo. (PR-X2-04). Dpto. de Impacto Ambiental de la Energía CIEMAT 1994.

5. Heras MC, Gómez V, García MR, Pozuelo M, Gracia JA. Procedimiento para la separación radioquímica y determinación mediante espectrometría alfa de uranio en aguas, suelos, sedimentos y muestras biológicas. (PR-X2-09). Dpto. de Impacto Ambiental de la Energía CIEMAT. 1996.
6. Pozuelo M, Procedimiento para la determinación de Th-230 en aguas por espectrometría alfa. (PE-IA-LRA-09) Dpto. de Impacto Ambiental de la Energía CIEMAT 2002.
7. Gascó C. Determinación de Po-210 y Pb-210 en muestras ambientales por espectrometría alfa. (RA/PT-L404). Dpto. de Medio Ambiente. CIEMAT 2013.
8. Romero del Hombrebueno B, Trinidad JA. Determinación de la actividad de tritio en aguas por centelleo líquido. (RA/PT-I502). Dpto. de Medio Ambiente. CIEMAT 2013.
9. Vademecum de Aguas Mineromedicinales Españolas Ed. Instituto de Salud Carlos III. Madrid, 2003.
10. Real Decreto 140/2003, , por el que se establecen los criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano BOE nº 45, 21-02-2003.