

ESTUDIO III

Análisis de radiactividad de las aguas

- M. Carmen Heras Íñiguez*, Ana M. Suárez Fidalgo, Catalina Gascó Leonarte; Beatriz Romero del Hombrebueno Pozuelo, J. A. Trinidad Ruiz y M. Antonia Simón Arauzo

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

RESUMEN

Se ha realizado el estudio radiológico del agua del manantial del Balneario de El Raposo en la provincia de Badajoz. 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. Además de las aguas muestreadas también se han recogido fangos que asimismo se han analizado. 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. El contenido radiactivo en los fangos que se usan sobre la piel, pueden contribuir asimismo a la dosis por irradiación.



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 cuatro puntos de toma de muestra (Manantial, Sondeo 1, Sondeo 2 y Galería) del Balneario de El Raposo, también se estudiado el contenido en radiactividad del fango usado en el Balneario con fines medicinales. 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.

2. ANÁLISIS DE RADIATIVIDAD

Los isótopos radiactivos que habitualmente se encuentran presentes en el agua, a excepción del K-40, tritio y Carbono-14, 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.

3. ÍNDICES DE ACTIVIDAD 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

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.

4. DETERMINACIÓN DE RADIONUCLEIDOS

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.

El envase utilizado para la toma de muestra, transporte y medida directa de la actividad ha sido tipo "Marinelli" de 0,5 Litros de capacidad, con el que se obtiene un máximo de sensibilidad analítica.

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 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 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 elevado.

Pb-210

El Pb-210 es un emisor beta con un periodo de semidesintegración $T_{1/2}= 22$ años. Su determinación con alta sensibilidad se realiza mediante un doble autodepósito de Po-210 en discos de plata. En el primero se determina el Po-210 guardándose la disolución sobrenadante del disco de plata durante al menos 3 meses.

El Po-210 que se deposita la segunda vez corresponde al crecimiento debido a la presencia de Pb-210 puro obtenido en el primer autodepósito. El recuento es mediante espectrometría alfa de alta sensibilidad con las correcciones correspondientes al estado de equilibrio radiactivo alcanzado en el tiempo transcurrido entre el 1^{er} y 2^o depósitos (7).

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 (8) mediante un autodepósito sobre disco de plata en medio reductor, citrato sódico y bismuto en baño de agua termostatzado (90° 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 $T_{1/2}=1,28 \times 10^9$ años. Su determinación se realiza por espectrometría gamma (3) a partir del fotopico de 1.460 keV.

H-3

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 bien por concentración electrolítica y medida igualmente por centelleo líquido (9,10). Por este último método se pueden detectar cantidades menores de actividad.

5. RESULTADOS

En la Tabla 1 se muestra la concentración obtenida para los diferentes radionucleidos, de los cuatro puntos de muestreo de agua, expresados como actividad en Bequerelios/Litro y su incertidumbre asociada para un factor de cobertura $k = 2$.



Tabla 1.- Actividad (Bq/L) de los isótopos analizados en las aguas.

ENSAYO	Manantial (Bq/L)	Sondeo 1 (Bq/L)	Sondeo 2 (Bq/L)	Galería (Bq/L)
Alfa total	0,116 ± 0,014	0,126 ± 0,015	0,0778 ± 0,011	0,116 ± 0,015
Beta total	ND	ND	0,038 ± 0,023	0,061 ± 0,023
Rn-222	15,48 ± 1,28	17,83 ± 0,78	2,84 ± 0,74	2,39 ± 0,45
Pb-210	0,0087 ± 0,0013	0,0092 ± 0,0018	0,0041 ± 0,0013	0,0036 ± 0,0012
Po-210	0,007 ± 0,0032	0,0021 ± 0,0008	0,0011 ± 0,00045	0,0017 ± 0,0011
Ra-226	0,0094 ± 0,0038	0,0156 ± 0,0047	0,0072 ± 0,0028	0,0052 ± 0,0030
Th-232	ND	0,0066 ± 0,0018	ND	0,0023 ± 0,0007
Th-230	0,010 ± 0,0026	0,020 ± 0,005	0,012 ± 0,003	0,012 ± 0,003
Th-228	0,0075 ± 0,002	0,0093 ± 0,0025	0,004 ± 0,001	0,0065 ± 0,0018
Tritio	0,00036 ± 0,00007	0,00044 ± 0,000084	0,00041 ± 0,00008	0,0004 ± 0,000077
U-238	0,0055 ± 0,001	0,01 ± 0,001	0,011 ± 0,0010	0,018 ± 0,0014
U-235	0,0004 ± 0,0003	0,0003 ± 0,00023	0,0059 ± 0,00022	0,0066 ± 0,00025
U-234	0,024 ± 0,0023	0,058 ± 0,0041	0,053 ± 0,003	0,061 ± 0,0033

ND: no detectable.

En la Tabla 2 se muestra la concentración obtenida para los diferentes radionucleidos, tanto del sedimento seco (fango calcinado a 600°C) como del fango húmedo, en este último solo se han hecho medidas por espectrometría gamma expresados como actividad en Bequerelios/Kg húmedo y su incertidumbre asociada para un factor de cobertura $k = 2$.

Tabla 2.- Actividad (Bq/Kg) de los isótopos analizados en los sedimentos/fangos

ENSAYO	Sedimento (Bq/Kg)	Fango (Bq/Kg)
Alfa total	380 ± 80,6	-----
Beta total	970 ± 42	-----
Rn-222	22,42 ± 1,77	13,16 ± 1,4
Pb-210	48 ± 12	-----
Po-210	34,7 ± 6,2	-----
Ra-226	30,9 ± 7,1	-----
Th-232	45,9 ± 10,6	-----
Th-230	35,3 ± 8,27	-----
Th-228	64,1 ± 14,7	-----
Cs-137	2,08 ± 0,2	1,03 ± 0,1
U-238	11,56 ± 1,54	-----
U-235	0,42 ± 0,28	-----
U-234	20,40 ± 2,15	-----

Como se puede ver en los resultados de las muestras de agua, el índice de actividad alfa total está dentro del de actividad permitida para las aguas de consumo humano 0,1 Bq/L (R.D. 140/2003) aunque esta normativa no aplica a las aguas mineromedicinales. Los resultados individuales de los emisores alfa (Rn-222, Po-210, Ra-226, Th-228, Th-230, Th-232, U-234, U-235, U-238) muestran niveles muy por debajo de las concentraciones de referencia para la radiactividad en el agua potable publicadas por la Comisión Europea. Los resultados del índice de actividad beta fueron inferiores al límite de detección. Los análisis de los emisores beta Pb-210 y tritio corresponden a valores naturales muy bajos.

En cuanto a las muestras de sedimentos y fangos, los niveles de actividad detectados son similares a los medidos en muestras ambientales (200-600 Bq/Kg) para la actividad alfa total y (800-1200 Bq/Kg) para la actividad beta total. Al igual que ocurre con las muestras de agua, los resultados individuales de los emisores alfa y beta son muy bajos. Aunque hay

que resaltar que se ha detectado un isótopo de origen artificial que es el Cs-137, si bien la concentración detectada es irrelevante.

CONCLUSIONES

En las muestras de agua no se ha detectado ningún isótopo radiactivo de origen artificial en las aguas del Balneario de El Raposo. La actividad detectada es debida a la presencia de radionucleidos de origen natural pertenecientes a las series radiactivas del ^{238}U , ^{235}U y ^{232}Th . En la muestra de fangos tanto húmedo como seco se ha detectado Cs-137 que es un isótopo de origen artificial, que se encuentra en el medio ambiente como consecuencia del “fall out” y su nivel es comparable a las cantidades encontradas en la naturaleza tanto en suelos como en sedimentos de zonas que no están contaminadas por otro tipo de actividades.

La actividad total detectada es baja en comparación con otros balnearios estudiados.

La actividad debida a la presencia de ^{222}Rn 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 El Raposo tienen valores bajos de radiactividad de entre los estudiados hasta la fecha exceptuando los valores de Rn-222 que son comparables a los encontrados en el resto de los balnearios.

BIBLIOGRAFÍA

1. Trinidad, J.A., & Suárez A.M. (2009) Determinación de la actividad alfa total en aguas por centelleo sólido. (RA/PT-E 01, 2ª Ed). Dpto de Medio Ambiente. CIEMAT.
2. Determinación del índice de actividad beta total en aguas mediante contador proporcional. UNE 73311-4 (2002).
3. Pozuelo, M., (2002). Procedimiento de determinación de emisores gamma en muestras ambientales.(PE-IA-LRA-07). Dpto de Impacto Ambiental de la Energía CIEMAT.
4. Gómez, V., Heras, M.C., & García M,R, (1994) 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, 1ª Ed). Dpto de Impacto Ambiental de la Energía CIEMAT.
5. Heras, M.C., Gómez, V., García, M.R., Pozuelo, M. & Gracia, J.A. (1996) 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.
6. Pozuelo, M., (2002) Procedimiento para la determinación de Th-230 en aguas por espectrometría alfa. (PE-IA-LRA-09, 1ª Ed.) Dpto de Impacto Ambiental de la Energía CIEMAT.
7. Gascó, C., Sanz, Mª Belén, E. Fernández (2012). Determinación de Po-210/Pb-210 en muestras ambientales. (RA/PT-L4-04). Dpto de Medio Ambiente. CIEMAT.
8. Gascó, C. (2006). Determinación de Po-210 en agua potable. (PT-IA/RA-TU06). Dpto de Medio Ambiente. CIEMAT.
9. Simón, M.A., Romero del Hombrebueno, B., & Larena, P. (2004). Determinación de tritio en aguas por centelleo líquido con concentración electrolítica previa. (PT-IA/RA-CL01, 1ª Ed.). Dpto de Medio Ambiente. CIEMAT.
10. Criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano (2003). Real Decreto 140/.