

## ESTUDIO 3

---

### Análisis de la radiactividad en aguas del Balneario de Villavieja (Castellón)

**Title in English:** *Radioactivity analysis of Villavieja Spa water*

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

Departamento de Medioambiente (CIEMAT), Avda. Complutense 40, 28040 Madrid.  
\*simon.arauzo@ciemat.es

An. Real. Acad. Farm. Vol 82, Special Issue (2016) pp. 67-74.

RESUMEN	ABSTRACT
<p>Se ha realizado el estudio radiológico del agua del manantial del Balneario de Villavieja en la provincia de Castellón. 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.</p>	<p>Radioactivity analysis of Villavieja 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.</p>
<p><b>Palabras clave:</b> Radiactividad; Radionucleido; Periodo de semidesintegración; Series radiactivas.</p>	<p><b>Keywords:</b> Radioactivity; Radionuclides; Half live; Radioactive series.</p>

### 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 Villavieja. 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  $^{40}\text{K}$ , tritio y carbono-14 que son de origen cosmogénico, proceden de las series radiactivas naturales de los radionucleidos primarios  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  y  $^{232}\text{Th}$ , que se encuentran distribuidos abundantemente, aunque de forma desigual, en la corteza terrestre.

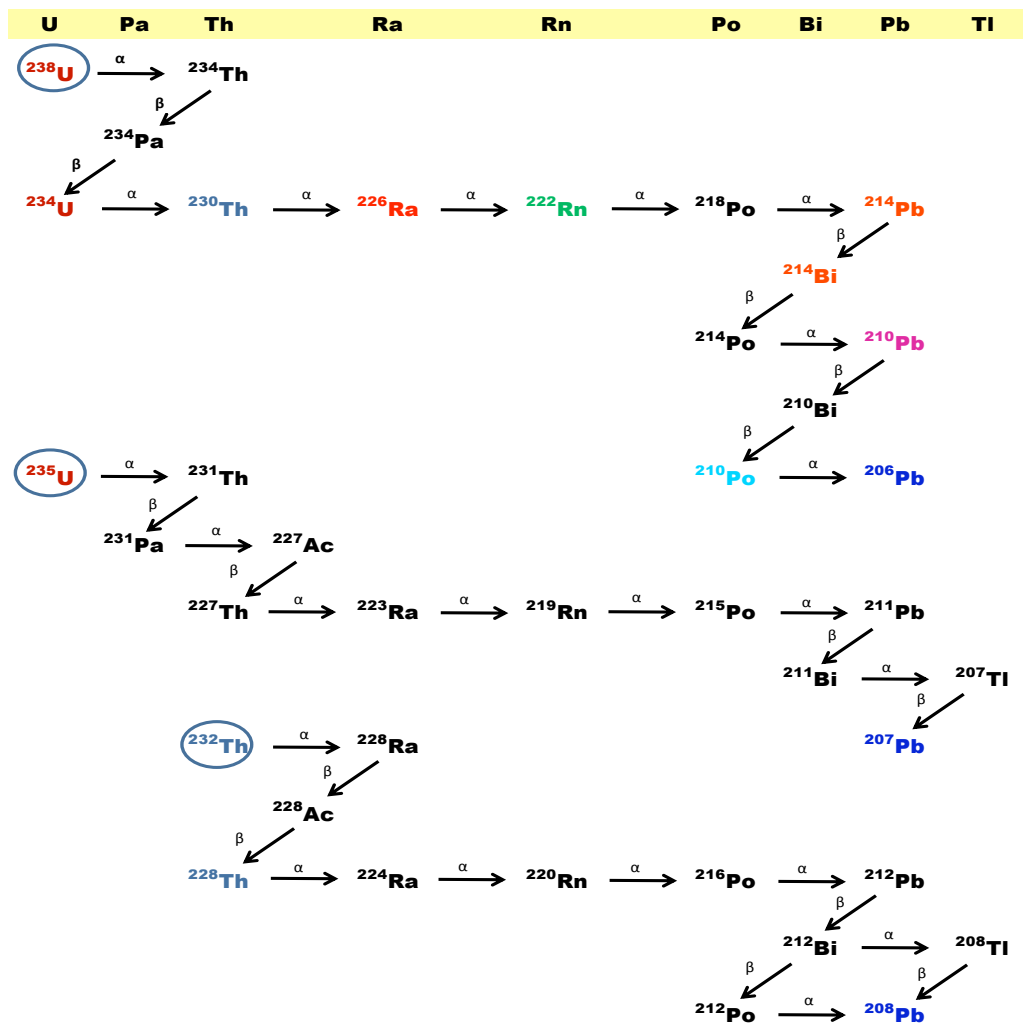


Figura 1. Series radiactivas naturales.

Los 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  $^{222}\text{Rn}$ , cuya actividad en agua suele ser mucho mayor que la de su progenitor el  $^{226}\text{Ra}$ , de características físico-químicas distintas, a pesar de su periodo de semidesintegración mucho más corto.

## **2. MATERIALES Y MÉTODOS**

### **2.1. Muestras**

Las muestras se tomaron en noviembre de 2014 en el punto de surgencia del manantial que está ubicado dentro del propio balneario. 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 y se acidularon con  $\text{HNO}_3$  hasta pH inferior a 2.

### **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  $^{241}\text{Am}$  y la actividad beta como  $^{90}\text{Sr}$  en equilibrio con el  $^{90}\text{Y}$ .

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), “Canberra 2007P”, para la medida de la actividad alfa, y un contador proporcional de flujo de gas, “Berthold LB-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  $^{222}\text{Rn}$  y su progenitor el  $^{226}\text{Ra}$ , que son los principales contribuyentes de la radiactividad de la serie del  $^{238}\text{U}$ , 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 estudiados han sido los siguientes:

#### $^{222}\text{Rn}$

En general, el mayor porcentaje de radiactividad de las aguas subterráneas se debe a la presencia de  $^{222}\text{Rn}$ . 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  $^{222}\text{Rn}$  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  $^{214}\text{Pb}$  ( $T_{1/2}= 26,8$  minutos) y  $^{214}\text{Bi}$  ( $T_{1/2}=19,8$  minutos), que contribuyen en gran medida a los valores de actividad encontrada en las aguas.

El  $^{222}\text{Rn}$  pertenece a la serie radiactiva del  $^{238}\text{U}$ , 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  $^{222}\text{Rn}$  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  $^{214}\text{Pb}$  y  $^{214}\text{Bi}$ , en equilibrio con el  $^{222}\text{Rn}$  (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.

#### **<sup>226</sup>Ra**

El <sup>226</sup>Ra es un radionucleido emisor alfa con un periodo de semidesintegración  $T_{1/2}=1600$  años y es el precursor del <sup>222</sup>Rn. 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 <sup>226</sup>Ra y <sup>224</sup>Ra.

#### **<sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U, <sup>234</sup>U**

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 <sup>232</sup>U (5).

#### **<sup>230</sup>Th, <sup>232</sup>Th, <sup>228</sup>Th**

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

El <sup>230</sup>Th pertenece a la serie radiactiva natural del <sup>238</sup>U 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.

#### **<sup>210</sup>Po**

El Po-210 es un radionucleido emisor alfa con un periodo de semidesintegración de  $T_{1/2}=138,4$  días. Es descendiente directo del <sup>210</sup>Pb y <sup>210</sup>Bi, que a su vez provienen de la cadena de desintegración del <sup>222</sup>Rn. 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° C). El rendimiento químico del procedimiento se determina por medio de un trazador de <sup>209</sup>Po. La medida se realiza mediante espectrometría alfa de alta sensibilidad y bajo fondo con detector de Si implantado.

#### **<sup>40</sup>K**

El <sup>40</sup>K 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.

### <sup>3</sup>H

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 Villavieja.**

<i>Análisis</i>	<i>Actividad Bq/L</i>
Alfa total	9,9E-01 ± 9,3E-02
Beta total	5,9E-01 ± 1,3E-01
<sup>222</sup> Rn	1,6E+02 ± 2,3E+00
<sup>226</sup> Ra	4,0E-01 ± 6,2E-02
<sup>238</sup> U	5,7E-02 ± 9,0E-03
<sup>235</sup> U	2,0E-03 ± 6,0E-04
<sup>234</sup> U	7,6E-02 ± 1,0E-03
<sup>232</sup> Th	ND
<sup>230</sup> Th	ND
<sup>228</sup> Th	ND
<sup>210</sup> Po	2,0E-02 ± 3,0E-03
<sup>210</sup> Pb	8,8E-02 ± 1,4E-02
Tritio	ND
<sup>40</sup> K	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 de <sup>222</sup>Rn, por lo que estas aguas pueden considerarse como tales ya que su actividad es superior (162 Bq/L).

El valor del índice de actividad alfa total (0,99 Bq/L), supera el valor de la actividad permitida para las aguas de consumo humano 0,1 Bq/L (10), por lo que

serían aguas no potables, aunque esta normativa no aplica a las aguas mineromedicinales.

En cuanto a la actividad del resto de isótopos analizados pueden considerarse normales dentro de los valores encontrados en las aguas subterráneas y no hay variaciones notables con los encontrados en otros balnearios estudiados (Tabla 2).

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

BALNEARIO	Alfa total	Beta total	<sup>238</sup> U	<sup>234</sup> U	<sup>230</sup> Th	<sup>226</sup> Ra	<sup>222</sup> Rn	<sup>210</sup> Pb	<sup>210</sup> Po	<sup>235</sup> U	<sup>232</sup> Th	<sup>228</sup> Th	<sup>3</sup> H	<sup>40</sup> K
<b>Alange</b>														
Badajoz	8,1E-02	2,5E-01				3,0E-02							7,0E-02	
<b>Fitero</b>														
Navarra	2,3E+00	2,4E+00				2,4E+00		ND	3,3E-03					
<b>La Toja</b>														
Pontevedra	4,8E+01	9,5E+01			3,1E+00	1,1E+01	2,7E+02	ND	7,5E+00					
<b>Lugo</b>														
Lugo	2,8E+01	8,3E+01				3,0E-01		1,6E-01	1,0E-01					
<b>Blancafort</b>														
Barcelona	ND	1,0E-01			2,2E-01	ND	1,4E+01	4,0E-03			ND			
<b>Cofrentes</b>														
Valencia	1,5E-01	1,0E+00			ND	1,0E-01	2,0E+00	ND					ND	
<b>Carratraca</b>														
Málaga	1,7E+00	1,5E+00	5,8E-02	6,4E-02	1,3E-02	5,0E-01	4,5E+01	ND		2,7E-03	6,5E-03			
<b>El Paraiso</b>														
Teruel	1,7E+00	2,8E+00	2,9E-02	4,2E-02	3,2E-03	1,6E+00	4,3E+01	7,0E-02	2,8E-02	1,4E-03				
<b>Alhama</b>														
Granada	4,8E-01	4,4E-01	7,3E-03	8,4E-03	1,1E-03	1,8E-01	8,7E+00	2,0E-02	2,0E-03	4,0E-03			ND	
<b>Jaraba</b>														
Zaragoza	1,1E-01	1,1E-01	2,4E-02	4,7E-02	1,1E-03	1,7E-02	ND	ND	2,8E-03	3,4E-03	4,3E-03		ND	
<b>Cervantes</b>														
C. Real	8,3E-02	5,6E-01	2,1E-03	3,5E-03	3,7E-03	1,3E-02	7,0E+00	ND	2,0E-03	9,0E-04	1,3E-03	2,3E-03	ND	
<b>P. Viesgo</b>														
Santander	1,5E+00	2,5E-01	1,5E-01	2,8E-01	3,3E-02	8,3E-01	1,7E+01	ND		5,6E-04	9,3E-03	9,4E-03		
<b>Valdelateja</b>														
Burgos	1,9E-01	2,1E-01	1,0E-03	3,6E-03	3,1E-02	6,2E-02	7,3E+00	ND	1,8E-03	nd	1,8E-02	2,1E-02	ND	ND
<b>Alicún de las Torres</b>														
Granada	5,9E-01	1,1E+00	2,3E-02	3,7E-02	2,9E-02	1,8E-01	1,4E+01	3,0E-02	1,1E-02	8,9E-04	ND	7,2E-03	ND	
<b>Baños de la Concepción</b>														
Albacete	2,5E-01	1,8E-01	1,8E-02	4,5E-02	1,0E-02	8,0E-02	3,0E-02	7,0E-03	4,0E-03	7,0E-04	ND	1,2E-02	ND	
<b>El Raposo</b>														
Badajoz	1,1E-01	5,0E-02	1,1E-02	5,0E-02	1,0E-02	1,0E-02	9,6E+00	6,0E-03	3,0E-03	3,0E-03	ND	6,8E-04	4,0E-04	
<b>Villa de Olmedo</b>														
Valladolid	6,9E-01	1,9E+00	2,7E-01	5,2E-01	9,0E-04	1,9E-01	3,1E+00	ND	2,0E-02	1,1E-02	ND	6,1E-04	ND	ND
<b>Villavieja</b>														
Castellón	9,9E-01	5,9E-01	5,7E-02	7,6E-02	ND	4,0E-01	1,6E+02	8,8E-02	2,0E-02	2,0E-03	ND	ND	ND	ND

ND: No detectable

## 4. CONCLUSIONES

No se han detectado isótopos radiactivos de origen artificial en las aguas del Balneario de Villavieja. La actividad detectada es debida a la presencia de radionucleidos de origen natural pertenecientes a las series radiactivas del <sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U y <sup>232</sup>Th.

Las aguas del Balneario de Villavieja son radiactivas debido a la contribución del <sup>222</sup>Rn. El radón es un gas noble y como tal desaparece en ambientes ventilados por lo que no representaría ningún problema en la utilización del agua por vía tópica o por vía oral, pero su utilización por vía inhalatoria debería hacerse de forma prudente procurando eliminar el radón previamente.

## **5. REFERENCIAS**

1. Trinidad JA, Romero del Hombrebueno B. Determinación de la actividad alfa total en aguas por centelleo sólido. (RA/PT-L501). Madrid: CIEMAT, Dpto. de Medio Ambiente, 2013.
2. Simón MA, Heras MC, Morillas A. Determinación del índice de actividad beta total y beta resto en aguas mediante contador proporcional. (RA/PT-L204). Madrid: CIEMAT, Dpto. de Medio Ambiente, 2015.
3. Suárez JA. Determinación de emisores gamma en muestras ambientales. (RA/PT-L301). Madrid: CIEMAT, Dpto. de Medio Ambiente, 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 de flujo continuo de gas o contador de centelleo. (PR-X2-04). Madrid: CIEMAT, Dpto. de Impacto Ambiental de la Energía, 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). Madrid: CIEMAT, Dpto. de Impacto Ambiental de la Energía, 1996.
6. Pozuelo M. Procedimiento para la determinación de Th-230 en aguas por espectrometría alfa. (PE-IA-LRA-09). Madrid: CIEMAT, Dpto. de Impacto Ambiental de la Energía, 2002.
7. Gascó C. Determinación de Po-210 y Pb-210 en muestras ambientales por espectrometría alfa. (RA/PT-L404). Madrid: CIEMAT, Dpto. de Medio Ambiente, 2013.
8. Romero del Hombrebueno B, Trinidad JA. Determinación de la actividad de tritio en aguas por centelleo líquido. (RA/PT-l502). Madrid: CIEMAT, Dpto. de Medio Ambiente, 2013.
9. Vademécum de aguas mineromedicinales españolas. Madrid: Instituto de Salud Carlos III, 2003.
10. Real Decreto 140/2003, BOE nº 45, de 21 de febrero de 2003, por el que se establecen los criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano.