



Análisis de la radiactividad en aguas del Balneario de Archena (Murcia)

Radioactivity analysis of Archena Spa water

M.^a Antonia Simón Arauzo*, Beatriz Romero del Hombrebueno Pozuelo, José Antonio Suárez Navarro, Catalina Gascó Leonarte, Ana M.^a Suáñez Fidalgo, Ángela Caro Benito, Óscar González Martínez

Unidad de Radiactividad Ambiental y Vigilancia Radiológica. Departamento de Medioambiente (CIEMAT), Avda. Complutense 40, 28040 Madrid.

e-mail: *simon.arauzo@ciemat.es

PALABRAS CLAVE

Radiactividad
Radionucleido
Periodo de
semidesintegración
Series radiactivas

RESUMEN

Se ha realizado el estudio radiológico del agua del manantial del Balneario de Archena en la provincia de Murcia. 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, ya que los elementos radiactivos disueltos pueden producir, como consecuencia directa de su consumo, dosis de irradiación interna tanto por ingestión como por inhalación. Debido a lo cual es necesario, en algunos casos, proceder al análisis radiológico de las mismas y la posterior evaluación de la dosis asociada a este consumo.

KEYWORDS

Radioactivity
Radionuclides
Half life
Radioactive series

ABSTRACT

Radioactivity analysis of Archena Spa water was carried out by the CIEMAT Laboratory of Environmental Radioactivity. With this purpose 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.



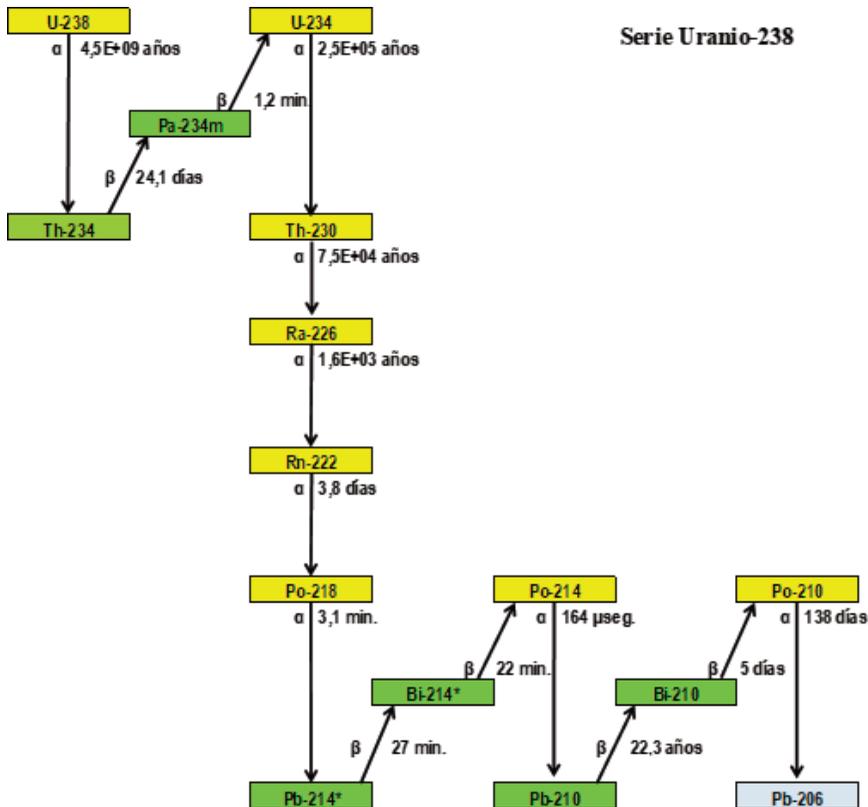
1. INTRODUCCIÓN

La Unidad de Radiactividad Ambiental y Vigilancia Radiológica del Departamento de Medio Ambiente del CIEMAT ha realizado el estudio de la radiactividad en las aguas del manantial de Archena. 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.

Los isótopos radiactivos que se encuentran en el medioambiente se pueden dividir en distintas categorías en función de su origen:

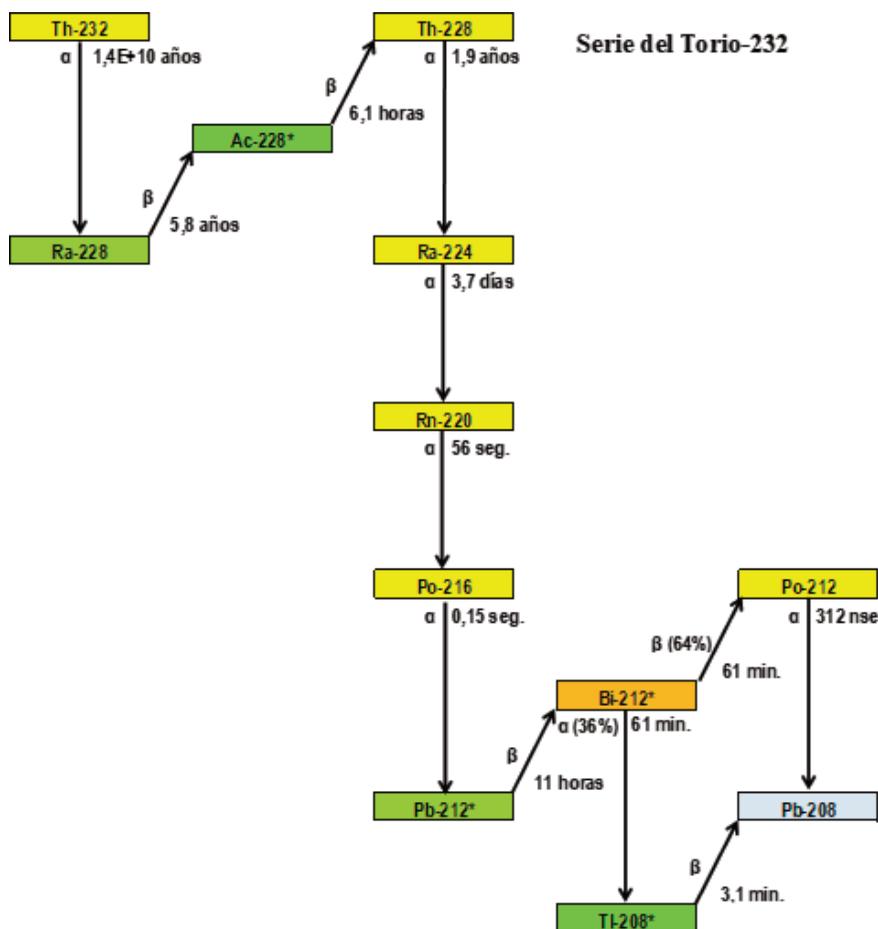
Primordiales: son aquellos que están presentes desde la formación de la tierra, entre estos están el ^{40}K y los pertenecientes a las series radiactivas del ^{238}U , ^{232}Th y ^{235}U . Los radionucleidos de estas series se muestran en las figuras 1, 2 y 3, junto con su modo principal de desintegración radiactiva y su vida media.

El ^{40}K representa un 18 % de la dosis anual efectiva recibida por la población, mientras que las series del ^{238}U , ^{232}Th y ^{235}U representa un 83 %. El decaimiento de estas series implica transformaciones nucleares con emisiones de partículas α , β y γ , terminando estas series con isótopos estables del Pb (^{206}Pb , ^{207}Pb y ^{208}Pb). La presencia de isótopos gaseosos del Rn y sus descendientes contribuyen aproximadamente en un 50 % de la dosis recibida debido a la radiación ionizante de origen natural.



Los elementos resaltados con asterisco (*) también son emisores gamma.

Figura 1. Series del Uranio 238.



Los elementos resaltados con asterisco () también son emisores gamma*

Figura 2. Serie del Torio 232

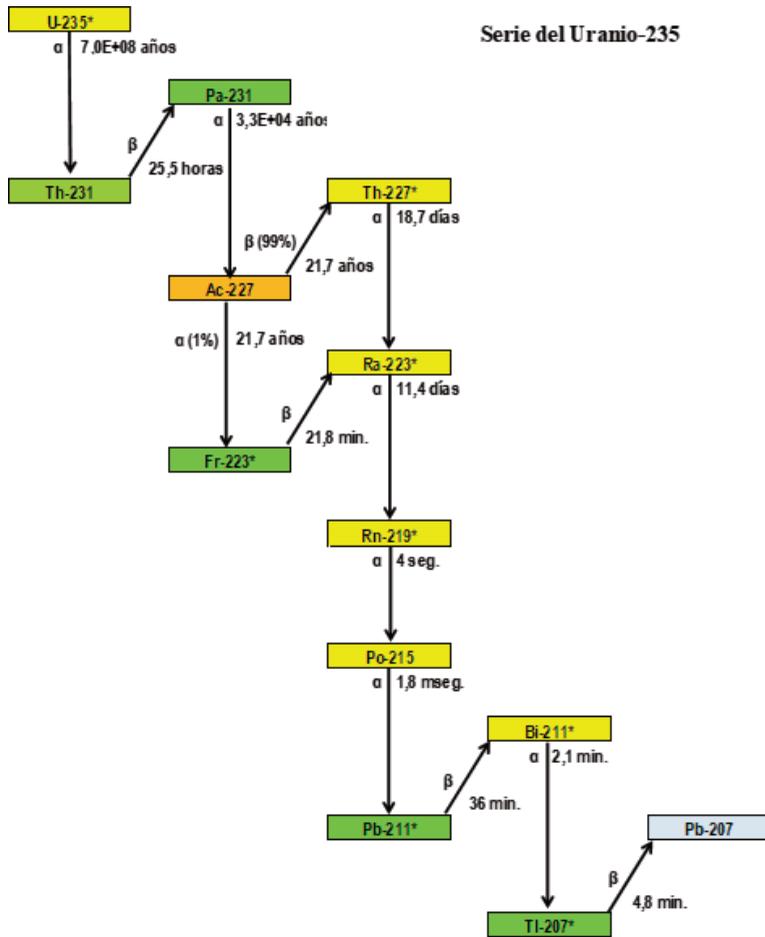
Cosmogénicos: son lo que se forman por interacción de la radiación cósmica en las capas altas de la atmósfera, entre los más significativos cabe destacar el tritio y el carbono-14.

Antropogénicos: estos han aparecido debido a la acción del hombre y representan una proporción pequeña en comparación con los naturales, entre ellos están ^{134}Cs y ^{137}Cs .

La radiactividad natural se encuentra ampliamente distribuida por el aire, agua, suelo y biota.

Los principales procesos que suministran isótopos radiactivos al agua subterránea son la disolución y el lixiviado de la estructura cristalina de un mineral. Además del decaimiento radiactivo, estos radionucleidos pueden ser eliminados del agua subterránea a través de una variedad de procesos físicos o químicos (intercambio iónico, coprecipitación y sorción).

La mayor o menor concentración de éstos en las aguas viene condicionada no sólo por las propiedades del terreno, sino también por las características fisicoquímicas de cada uno de ellos individualmente (solubilidad, etc.). Ello hace



Los elementos resaltados con asterisco (*) también son emisores gamma

Figura 3: Serie del Uranio 235

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}Rn , que a pesar de tener un periodo de semidesintegración mucho más corto que el de su progenitor el ^{226}Ra , su actividad en el agua es mayor debido a sus diferentes características fisicoquímicas.

Para el estudio de los elementos radiactivos del agua del Balneario se ha tenido en cuenta las propiedades radiactivas de sus elementos considerando:

La vida media radiactiva: Tiempo que tarda un elemento radiactivo en disminuir su actividad inicial a la mitad. Las vidas medias son constantes para cada radionucleido y varían desde segundos hasta billones de años. Se consideran de vida media larga si es mayor de 30 años.

Actividad específica: Es la actividad por unidad de masa.

Modo de decaimiento: Son los modos de desintegración radiactiva, los más importantes son emisión de partículas alfa, partículas beta y radiación gamma.

Energía de decaimiento: Es la energía que se libera con la emisión de las partículas y/o de la radiación gamma.



En función de estos parámetros, son de interés desde el punto de vista de la protección radiológica los de vida media larga debido a su larga permanencia, los que tienen una actividad específica elevada por su alta radiación, el tipo de decaimiento por su poder de penetración ($\gamma > \beta > \alpha$) e ionización ($\alpha > \beta > \gamma$) y su energía, ya que a mayor energía liberada, el elemento resulta más nocivo.

En la tabla 1 se muestran las propiedades radiactivas del tritio, carbono-14 y potasio-40.

Tabla 1. Propiedades radiactivas del ^3H , ^{14}C y ^{40}K

Isotopo	Vida media	Abundancia Natural (%)	Actividad Específica (Bq/g)	Modo de decay	Energía Radiactiva (MeV)
H3	1,2E+01 años	<< 1	3,63E+14	β	0,0057
C-14	5,7E+03 años	<< 1	1,67E+10	β	0,049
K-40	1,3E+09 años	0,012	2,67E+03	β / ϵ	0,52 / 1,46

Desde el punto de vista de la protección radiológica son poco importantes debido a que las partículas beta emitidas son de baja energía radiactiva. Sin embargo es interesante su estudio, ya que el tritio y el carbono-14 pueden aportar información sobre el grado de confinamiento del acuífero. El potasio 40 es un radionúclido importante en términos de la dosis asociada con los radionúclidos naturales. Representa un peligro para la salud, tanto por su radiación externa (γ), como interna (β y γ), es el séptimo elemento más abundante en la corteza terrestre, el sexto en solución en los océanos y está presente en las aguas minerales.

Las propiedades radiactivas de los elementos más significativos de la serie del ^{238}U se muestran en la tabla 2.

Tabla 2. Propiedades radiactivas de elementos de la serie del ^{238}U

Isotopo	Vida media	Abundancia Natural (%)	Actividad Específica (Bq/g)	Modo de decay	Energía Radiactiva (MeV)
U-238	4,5E+09 años	> 99	1,26E+04	α	4,2
U-234	2,5E+05 años	0,0055	2,33E+08	α	4,8
Th-230	7,5E+04 años	<< 1	7,40E+08	α	4,7
Ra-226	1,6E+03 años	> 99	3,70E+10	α	4,8
Rn-222	3,8 días	trazas	5,72E+15	α	5,5
Pb-210	22 años	trazas	2,86E+12	β	0,063
Po-210	138 días	trazas	1,67E+14	α	5,3

Entre los más característicos están el ^{238}U , ^{234}U y ^{230}Th por su vida media larga y por su emisión de partículas alfa altamente energéticas, aunque son partículas muy pesadas que agotan su energía en distancias cortas, estas pueden ser muy peligrosas por inhalación o ingestión ya que pueden liberar su energía en las células próximas y producir un grave daño. Sin embargo su baja actividad específica indica que no son muy radiactivos.



Por otro lado tenemos el ^{226}Ra y sus descendientes entre los que cabe destacar el ^{222}Rn , el ^{210}Pb y el ^{210}Po todos ellos con una actividad específica alta. El radón-222 y sus descendientes son los responsables del 50 % de las dosis de radiación natural que recibe el ser humano. El carácter de gas noble del radón unido a su corta vida media (alta si se compara con el tiempo de residencia del aire en los pulmones) le hace no ser una fuente significativa de exposición, pero en su decaimiento produce elementos como el ^{210}Po que pasa a formar parte de las partículas del aire y que por inhalación son las causantes de una elevada dosis de radiación del tracto respiratorio con la gravedad que esto conlleva al ser una partícula alfa altamente energética.

En la tabla 3 se muestran los isótopos más característicos de la serie del torio-232.

Tabla 3. Propiedades radiactivas de elementos de la serie del ^{232}Th

Isotopo	Vida media	Abundancia Natural (%)	Actividad Específica (Bq/g)	Modo de decay	Energía Radiactiva (MeV)
Th-232	1,4E+10 años	100	4,07E+03	α	4
Ra-228	5,8E+00 años	<< 1	1,04E+13	β	0,017

El ^{232}Th tiene una vida media muy larga, pero su actividad específica es baja por lo que es un isótopo poco radiactivo. El ^{228}Ra tiene una vida media corta con una alta actividad específica y una emisión de partículas beta de baja energía. Representa un peligro para la salud a largo plazo solo si su progenitor (^{232}Th) está presente.

En la tabla 4 se muestran el isótopo más característico de la serie del Uranio-235.

Tabla 4. Propiedades radiactivas de elementos de la serie del ^{235}U

Isotopo	Vida media	Abundancia Natural (%)	Actividad Específica (Bq/g)	Modo de decay	Energía Radiactiva (MeV)
U-235	7,0 E+08 años	0,72	8,14E+04	α	4,5

El ^{235}U es el padre y el más significativo de su serie tiene una vida media muy larga, pero su actividad específica es baja por lo que es un isótopo poco radiactivo.

2. MATERIALES Y MÉTODOS

2.1. Muestreo

Las muestras de agua se tomaron en los puntos de surgencia denominados Madrid y Monolito.

Para la medida del ^{222}Rn se tomaron *in situ* muestras de 10 mL que se introdujeron en viales previamente preparados en el laboratorio con 10 mL de un centelleador mineral inmiscible con el agua.



Para el resto de los análisis se tomaron 10 L de agua en garrafas de polipropileno y se acidularon con HNO_3 hasta pH inferior a 2, para todos los análisis a excepción del tritio.

2.2. Análisis

En la tabla 5 se muestran las analíticas realizadas para la determinación de la actividad de los diferentes isótopos.

Tabla 5. Métodos analíticos

ANALITICAS		
Isótopos	Método	Detector
Índice de actividad alfa total	Coprecipitación	Centelleo sólido
Índice de actividad beta total	Evaporación	Contador proporcional
Th-234, Ra-226, Pb-214, Bi-214, Pb-210, Bi-210, Ac-228, Ra-224, Tl-208, K-40 Am-241, Co-58, Co-60, Cs-134, Cs-137, I-131	Espectrometría gamma	Detectores de Germanio
Uranio Isotópico (U-238, U-234 y U235) Torio isotópico (Th-232, Th-230 y Th-228) Po-210 y Pb-210	Espectrometría alfa	Detectores de semiconductor de Si
Tritio	Concentración electrolítica	Centelleo líquido
C-14	Oxidación	Centelleo líquido
Rn-222	Centelleadores minerales	Centelleo líquido

Determinación de los índices de actividad alfa total y beta total

Para el estudio de la actividad radiactiva, inicialmente se han realizados estudios de los índices de actividad alfa total, beta total, estos proporcionan una estimación orientativa del contenido de la radiactividad en el agua, su medida es sencilla y permite decidir sobre la necesidad de realizar determinaciones específicas de los posibles radionucleidos presentes.

Estas medidas proporcionan valores referidos al contenido global de emisores alfa referidos al ^{241}Am y de emisores beta referidos al ^{90}Sr en equilibrio con el ^{90}Y .

La determinación del índice de actividad alfa se ha realizado mediante la técnica de coprecipitación y medida por centelleo sólido de sulfuro de cinc (Ag), y los de actividad beta total mediante evaporación y medida por contador proporcional de flujo de gas (4, 5).

Determinación de emisores gamma

Mediante espectrometría gamma con detectores de semiconductor de Germanio de alta pureza (HPGe), se han analizado elementos naturales de las tres series además del potasio-40 y de algunos de los elementos artificiales más comunes del



entorno de influencia de las actividades médicas, nucleares y procesado de combustibles (^{241}Am , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{131}I) (6).

Determinación de emisores alfa

Los isótopos del uranio, del torio, el ^{210}Po y su progenitor el ^{210}Pb que se determina tras el equilibrio secular con su hijo, se han analizado por espectrometría alfa con detectores de semiconductor de Si, tras su separación radioquímica y deposición electrolítica sobre un disco de acero inoxidable (7, 8, 9).

El ^{222}Rn , también emisor alfa, se determina por centelleo líquido utilizando un centelleador mineral y después de alcanzar el equilibrio con sus hijos (^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi y ^{214}Po) (11).

Determinación de emisores beta

El tritio, se mide por centelleo líquido, después de hacer un enriquecimiento electrolítico de la muestra de agua, esto permite obtener un límite de detección veinte veces menor que cuando se realiza la medida directa (10).

El carbono-14 se determina por centelleo líquido tras oxidar los carbonatos del agua a CO_2 .

3. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

En la tabla 6 se muestran la concentración de las sustancias radiactivas que se consideran para la protección de la salud humana desde el punto de vista de la protección radiológica en las aguas de consumo.

Tabla 6. Cribado de las concentraciones de actividad alfa y beta

Análisis	MADRID	MONOLITO	RD 314/2016
	Actividad Bq/L \pm 2S	Actividad Bq/L \pm 2S	Valores Paramétricos (Bq/L)
Rn-222	11,86 \pm 1,44	13,54 \pm 1,65	< 500
Tritio	0,34 \pm 0,07	0,31 \pm 0,06	< 100
Alfa total	1,17 \pm 0,11	1,52 \pm 0,14	< 0,1
Beta total	2,53 \pm 0,15	2,38 \pm 0,15	
K-40	1,32 \pm 0,07	1,31 \pm 0,07	
Beta resto	0,91 \pm 0,15	0,77 \pm 0,15	< 1

El agua del balneario cumpliría con los valores paramétricos establecidos en el RD 314/2016 para el radón, el tritio y la actividad beta resto, que es la actividad beta total a la que se le resta la aportada por el K-40, sin embargo, supera el establecido para los emisores alfa (12).

Los resultados obtenidos son concordantes a nivel de 3S con los descritos en las dos ediciones del Vademécum de aguas mineromedicinales para el Balneario de Archena que se muestran en la tabla 7 (13, 14).



Tabla 7. Resultados del CIEMAT vs Vademécum Aguas Mineromedicinales Españolas

Laboratorio	ACTIVIDAD (Bq/L \pm 2S)		
	Alfa Total	Beta total	Rn-222
Ciemat	1,35 \pm 0,13	2,46 \pm 0,15	12,7 \pm 1,5
Vademécum I de aguas mineromedicinales Españolas	1,16 \pm 0,32	2,38 \pm 0,34	20 \pm 4
Vademécum II de aguas mineromedicinales Españolas	1,01 \pm 0,38	1,8 \pm 0,34	14 \pm 1

En la tabla 8 se muestran los resultados correspondientes a los emisores alfa analizados, en la primera columna aparece la actividad alfa total y a continuación se muestran los elementos que pueden contribuir a esta actividad, los seis primeros pertenecen a la serie del ^{238}U , los tres siguientes son de la serie del ^{232}Th y el último de la serie del ^{235}U .

Tabla 8. Contribución de los emisores alfa

Análisis	MADRID	MONOLITO
	Actividad Bq/L \pm 2S	Actividad Bq/L \pm 2S
Alfa total	1,17 \pm 0,11	1,52 \pm 0,14
U-238	0,0020 \pm 0,0007	0,0023 \pm 0,0007
U-2	0,0015 \pm 0,0006	0,0023 \pm 0,0007
Th-230	0,0002 \pm 0,0001	<0,0003
Ra-226	0,41 \pm 0,15	0,54 \pm 0,15
Rn-222	11,86 \pm 1,44	13,54 \pm 1,65
Po-210	0,005 \pm 0,001	0,004 \pm 0,001
Th-232	<0,0001	<0,0003
Th-228	0,0013 \pm 0,0002	0,026 \pm 0,002
Ra-224	0,0015 \pm 0,0006	0,0024 \pm 0,0012 <
U-235	< 0,0002	0,0002

De todos los emisores alfa de la tabla anterior, la actividad mayor es la del ^{222}Rn , que no contribuye al índice de actividad alfa total, ya que durante el proceso de análisis del índice de actividad alfa total se produce la evaporación del mismo

Como puede observarse la concentración del ^{222}Rn , es mayor que la de su progenitor el ^{226}Ra , esto es debido a que el ^{222}Rn detectado proviene de la exhalación del entorno rocoso que rodea el acuífero y que se disuelve en éste, y no del ^{226}Ra disuelto en el agua.



El ^{226}Ra y los hijos de vida corta del radón (^{218}Po y ^{214}Po) podrían ser los que contribuyen a la actividad del índice alfa total.

En la tabla 9 están los resultados correspondientes a los emisores beta que contribuye a la actividad beta total, los primeros pertenecen a la isótopos cosmogénicos, tritio y carbono-14 y al K-40, los isótopos del plomo son de la serie del ^{238}U .

Tabla 9. Contribución de los emisores Beta

<i>Análisis</i>	MADRID	MONOLITO
	<i>Actividad Bq/L ± 2S</i>	<i>Actividad Bq/L ± 2S</i>
Beta total	2,53 ± 0,15	2,38 ± 0,15
<i>Tritio</i>	<i>0,34 ± 0,07</i>	<i>0,31 ± 0,06 < 16,9</i>
C-14	< 16,9	1,31 ± 0,07
K-40	1,32 ± 0,07	0,009 ± 0,002
Pb-210	0,007 ± 0,001	0,54 ± 0,05
Pb-214	0,37 ± 0,04	

De todos ellos el tritio no contribuye al índice de actividad beta total, ya que el método de análisis del índice de actividad beta total se produce la evaporación de la muestra de agua, con lo que se va el hidrogeno. Los niveles de tritio encontrados se corresponden con los detectados en algunas aguas de abastecimiento, lo que indicaría que hay un componente de recarga del acuífero con aguas superficiales

Como puede verse hay una gran contribución del ^{40}K , seguido del ^{214}Pb .

4. CONCLUSIONES

No se han detectado isótopos de origen artificial. La ubicación del Balneario de Archena no se encuentra próxima a ninguna instalación nuclear ni del ciclo de combustible, por lo que era improbable encontrar isótopos de origen artificial en sus aguas.

Según el Vademécum de aguas mineromedicinales españolas, se clasifican como aguas radiactivas las que tienen más de 67,3 Bq/L de ^{222}Rn , por lo que estas aguas no deben considerarse como tales.

La actividad alfa y beta detectada es debida principalmente a la contribución de radionucleidos de origen natural pertenecientes fundamentalmente a la serie radiactiva del ^{238}U y al ^{40}K .

5. REFERENCIAS

1. Shahbazi-Gahrouei D, Gholami M, Setayandeh S. A review on natural background radiation. Adv Biomed Res. 2013; 2: 65-75.



2. Dinh Chau N, Dulinski M, Jodlowski P, Nowak K, Rozanski K, Sleziak M, wachniew P. Natural radioactivity in groundwater-a review. *Isotopes in Environmental and Health Studies*. 2011; 47: 415-437.
3. Peterson J, MacDonell M, Haroun L, Monette F. Radiological and Chemical Fact Sheets to Support Health Risk Analyses for Contaminated Areas. Argonne National Laboratory Environmental Science Division. 2007. http://www.evs.anl.gov/pub/doc/ANL_ContaminatFactSheets_All_070418.pdf
4. Suárez JA. Determinación de la actividad alfa total en aguas por centelleo sólido (RA/PT-L501). Madrid: CIEMAT, Unidad de Radiactividad Ambiental y Vigilancia Radiológica, Dpto. de Medio Ambiente, 2018.
5. Simón MA, Determinación del índice de actividad alfa total, beta total y beta resto en aguas mediante contador proporcional. (RA/PT-L204) Madrid: CIEMAT, Unidad de Radiactividad Ambiental y Vigilancia Radiológica, Dpto. de Medio Ambiente, 2019.
6. Suárez JA. Determinación de emisores gamma en muestras ambientales. (RA/PT-L301) Madrid: CIEMAT, Unidad de Radiactividad Ambiental y Vigilancia Radiológica, Dpto. de Medio Ambiente, 2018.
7. Suárez JA. Determinación de a concentración de actividad de U-234, U-235 y U-234 mediante espectrometría alfa con detector de silicio implantado en muestras ambientales. (RA/PT-L303) Madrid: CIEMAT, Unidad de Radiactividad Ambiental y Vigilancia Radiológica, Dpto. de Medio Ambiente, 2018.
8. Gascó C. Determinación de torio-232, torio-230 y torio 228 en muestras ambientales por espectrometría alfa. (RA/PT-L405). Madrid: CIEMAT, Unidad de Radiactividad Ambiental y Vigilancia Radiológica, Dpto. de Medio Ambiente, 2019.
9. Gascó C. Determinación de Po-210 y Pb-210 en muestras ambientales por espectrometría alfa. (RA/PT-L404). Madrid: CIEMAT, Unidad de Radiactividad Ambiental y Vigilancia Radiológica, Dpto. de Medio Ambiente, 2019.
10. Romero del Hombrebueno B, Trinidad JA. Determinación de la actividad de tritio en aguas por centelleo líquido. (RA/PT-L502). CIEMAT, Unidad de Radiactividad Ambiental y Vigilancia Radiológica, Dpto. de Medio Ambiente, 2015.
11. Simón MA, Determinación de Rn-222 en aguas por centelleo líquido. (RA/PT-L206) Madrid: CIEMAT, Unidad de Radiactividad Ambiental y Vigilancia Radiológica, Dpto. de Medio Ambiente, 2019.
12. Real Decreto 314/2016 por el que se establecen los criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano. BOE nº 183, 30-07-2016.
13. Vademécum de aguas mineromedicinales españolas. Instituto de Salud Carlos III.
14. Maraver F, Armijo F. Vademécum II de aguas mineromedicinales españolas. Editorial Complutense 2010.