

# RESULTADOS DEL PROGRAMA DE VIGILANCIA RADIOLOGICA AMBIENTAL EN CANTABRIA, ESPAÑA

J. Soto, C. Ródenas, J. Gómez, L.S. Quindós, P.L. Fernández  
Cátedra de Física Médica, Facultad de Medicina, Universidad de Cantabria, Santander, España

## Resumen

La Cátedra de Física Médica de la Universidad de Cantabria, España, como miembro perteneciente al programa de la Red de Vigilancia Radiológica Ambiental, lleva realizando desde hace cuatro años una serie de mediciones de la concentración de elementos radiactivos en el aire, en el agua de lluvia y en el suelo. En este trabajo se exponen la metodología empleada y los resultados de la medición de las actividades alfa, beta,  $^{90}\text{Sr}$  y gamma de las partículas de polvo en aire; de la actividad de  $^{131}\text{I}$  en el aire; de las actividades beta, de  $^{90}\text{Sr}$  y gamma de agua de lluvia y de depósito seco; y de las actividades gamma y de  $^{90}\text{Sr}$  en suelos. Entre los resultados cabe destacar que los valores promedio de las actividades alfa y beta totales en el aire fueron  $4 \times 10^{-5}$  y  $32 \times 10^{-5}$  Bq/m<sup>3</sup>, respectivamente. Igualmente, la concentración de  $^{131}\text{I}$  fue inferior al límite de detección en la totalidad de las mediciones. Por fin, que se encuentran pequeñas concentraciones de  $^{90}\text{Sr}$  y de  $^{137}\text{Cs}$  en muestras de suelo.

## RESULTS OF THE RADIOLOGICAL ENVIRONMENTAL MONITORING NETWORK IN CANTABRIA, SPAIN

### Abstract

The Medical Physics Department in the University of Cantabria, Spain, as member belonging to the Radiological Environmental Monitoring Network has been carried out a series of measures about radioactive elements in air, rain water and soil. This report shows the methodology used and the results obtained in the measurement of the gross-alpha and gross-beta activities,  $^{90}\text{Sr}$  and gamma spectrometry in atmospheric aerosols; the activity of  $^{131}\text{I}$  in air; the gross- beta activity,  $^{90}\text{Sr}$  and gamma spectrometry in rain water and dry deposition; and the activity of  $^{90}\text{Sr}$  and gamma spectrometry in soils. The average values of the gross-alpha and gross-beta activities in air has been  $4 \times 10^{-5}$  and  $32 \times 10^{-5}$  Bq/m<sup>3</sup>, respectively. The concentration of  $^{131}\text{I}$  has been inferior to the limit of detection in the whole of the measurements. Finally, has been found small concentrations of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in soils samples.

*Key words: natural radioactivity; fallout; radioactive aerosols; radioecological concentration; alpha dosimetry; beta dosimetry; environment.*

## INTRODUCCION

Cuando se produce un accidente o una explosión nuclear, parte del material radiactivo liberado se introduce en la troposfera asociándose a aerosoles atmosféricos. Estos pueden ser transportados por el viento a grandes distancias depositándose gradualmente sobre la superficie de la Tierra, fundamentalmente por la acción de lavado que ejerce la lluvia, con un tiempo de residencia medio de unos 30 días. Cuando las explosiones son de gran potencia los productos radiactivos pueden llegar hasta la estratosfera donde el tiempo de residencia, que depende de la altitud a la que son introducidos, de la latitud y de la época del año, puede llegar a ser de más de 10 años. En este caso el material radiactivo se distribuye por toda la Tierra, pasa al suelo y puede, por distintas vías, afectar al hombre [1,2].

Desde 1957 con la firma del Tratado de EURATOM se produce en la Comunidad Europea un creciente interés por la contaminación radiactiva. Como consecuencia de ello, se aprobaron distintas directivas por las que cada Estado miembro debería disponer de las instalaciones necesarias que le permitan controlar de forma permanente los niveles de radiactividad tanto en la atmósfera como en las aguas y el suelo. En España, el Consejo de Seguridad Nuclear (CSN) puso en marcha el Programa REVIRA (Red de Vigilancia Radiológica Ambiental) con objeto de determinar los niveles de radiactividad en el territorio español y su evolución [3].

En el presente trabajo se recogen y discuten las mediciones realizadas durante más de tres años por la Cátedra de Física Médica de la Universidad de Cantabria, perteneciente a la red REVIRA. Las mediciones se realizaron en Santander, capital de

Cantabria, situada en el norte de España, a orillas del mar Cantábrico.

## MATERIAL Y METODOS

La recogida de muestras de aerosoles y gases atmosféricos se realizó usando una bomba de aspiración de 30 L/min de caudal, que dispone de un cabezal donde pueden acoplarse en serie filtros y cartuchos de carbón activado. La bomba está instalada en la terraza de la Facultad de Medicina, a unos 15 metros del suelo, en paraje semiurbano y a una distancia superior a 50 metros de los edificios más próximos.

Para captar los aerosoles atmosféricos se utilizaron filtros de fibra de vidrio de 47 mm de diámetro que poseen una eficiencia de retención próxima al 100% para aerosoles de tamaño superior a 0,8 micras. Para el muestreo de gases se utilizó carbón activado contenido en cartuchos de 45 mm de diámetro y 20 mm de espesor que poseen una eficiencia de retención en torno al 98% para el flujo de aire empleado y la humedad existente. El aire es aspirado de manera continua, con cambio de filtro y cartucho cada 7 días. El volumen muestreado durante este período varía entre 300 y 350 m<sup>3</sup>.

Las muestras de agua de lluvia se recogen con un pluviómetro de 1 m<sup>2</sup> de superficie, conectado a través de un tubo a un recipiente en el que se va acumulando el agua. Al igual que la bomba de aspiración el pluviómetro se encuentra instalado en la terraza de la Facultad de Medicina.

Las muestras de agua de lluvia se recogieron primero cada semana y después mensualmente. Cuando el volumen de agua recogido durante ese período es superior a 2 litros se considera como deposición húmeda y se recoge una alícuota de 1 litro para su análisis. Cuando el volumen es inferior a 2 litros se considera como deposición seca y se recoge una muestra de 1 litro del agua resultante de verter 10 litros de agua sobre la superficie del pluviómetro. Las muestras recogidas son aciduladas con NO<sub>3</sub>H para minimizar las pérdidas que pueden causarse por absorción en las paredes del recipiente y evitar la generación de materia orgánica.

Las muestras de suelo se recogen en un área despejada de unos 10 m<sup>2</sup> de superficie, próxima a la Facultad de Medicina. Se recogen varias muestras de suelo superficial, de 3 a 5 cm de profundidad, que son convenientemente mezcladas hasta obtener una muestra final homogénea que se seca en estufa [4].

La medición de las actividades alfa y beta de las muestras se hace mediante un contador proporcional de flujo de gas de bajo fondo. Este es un contador de ionización gaseosa que funciona en el

tramo proporcional, con contador de guarda y protección de plomo. El contador se ha calibrado con muestras de actividad conocida de <sup>241</sup>Am y de <sup>90</sup>Sr, preparadas con la misma geometría que las muestras a medir. Los límites inferiores de detección para un tiempo de contaje de 24 horas son de 5x10<sup>-6</sup> Bq/m<sup>3</sup> para la actividad alfa y de 2x10<sup>-5</sup> Bq/m<sup>3</sup> para la actividad beta.

La medición de la actividad gamma en las distintas muestras se realizó mediante una cadena de espectrometría gamma de bajo fondo que utiliza un detector de germanio de alta pureza, de configuración vertical, con criostato para nitrógeno líquido y con protección de hierro, conectado a un analizador multicanal. El sistema se ha calibrado en energía y en eficiencia para las distintas geometrías de las muestras medidas con soluciones patrón de <sup>137</sup>Cs y <sup>226</sup>Ra y de una muestra sólida de <sup>152</sup>Eu.

Los procedimientos de análisis y medición se someten con periodicidad anual a ejercicios de intercomparación de resultados, que coordina el CSN y en los que participa un número importante de laboratorios españoles.

Con este instrumental se realizan mediciones con diversa periodicidad. Semanalmente se procede a la determinación de las actividades alfa total y beta total mediante la medición directa de los filtros en el contador proporcional de flujo de gas. La medición se realiza durante 24 horas de 5 a 7 días después de retirado el filtro, de manera que se haya producido el decaimiento radiactivo de los descendientes de vida corta del radón. La medición de gases radiactivos, principalmente <sup>131</sup>I, se realiza igualmente con periodicidad semanal por espectrometría gamma, con contaje de 24 horas, colocando el cartucho de carbón activado directamente en el detector de germanio al concluir el período de muestreo.

Mensualmente se procede a la determinación de la actividad beta total en el agua de lluvia o el depósito seco recogido durante el mismo período. La medición de la actividad beta total se realiza con el contador proporcional de flujo gaseoso donde se coloca una plancheta en la que se recoge el residuo procedente de la evaporación de la muestra.

Trimestralmente se procede a la determinación de los radionucleidos emisores gamma, naturales y artificiales, presentes en los filtros de aerosoles acumulados durante el trimestre y colocados directamente en una caja Petri. Igualmente se procede a la determinación de los radionucleidos emisores gamma en una muestra compuesta del agua de dicho período, para lo cual se mezcla el agua recogida durante los tres meses, se evapora y se deposita sobre un soporte plástico que se introduce en una cápsula Petri de 9 cm para proceder a su medición durante 24 horas.

Con igual periodicidad se determina el  $^{90}\text{Sr}$  en aerosoles, agua de lluvia y depósito seco mediante separación radioquímica [5] de este elemento y posterior medición con el contador proporcional de flujo de gas. Para ello se preparan disoluciones acuosas con los diferentes tipos de muestras de las que se obtiene finalmente un precipitado de carbonato de estroncio que se somete a conteo beta durante 24 horas.

Anualmente se procede a la determinación de los elementos radiactivos naturales y artificiales presentes en las muestras de suelo. Para ello se determina, por una parte, el  $^{90}\text{Sr}$  mediante un proceso de separación radioquímica semejante al anterior y conteo beta y, por otra, se mide la muestra, introducida en un recipiente de geometría Marinelli de 0,8 litros de capacidad, por espectrometría gamma.

## RESULTADOS Y DISCUSION

La caracterización de la radiactividad existente en la atmósfera se realiza, en primera aproximación, por la medición de las actividades alfa y beta totales presentes en los aerosoles atmosféricos. Estos dos índices proporcionan información sobre la radiactividad en forma de partículas sólidas, que se vinculan

a los aerosoles y que puede deberse a elementos radiactivos artificiales o naturales. Los primeros serían productos provenientes de la fisión del uranio o isótopos generados por activación con neutrones mientras que los segundos serían descendientes del radón,  $^{222}\text{Rn}$  y  $^{220}\text{Rn}$ , producidos en el aire.

El conjunto de los valores obtenidos durante el período 1992-1995 en la medición de las actividades alfa y beta recogidas en filtros se han representado en forma de histograma en las Figs. 1 y 2, respectivamente. Como puede observarse en ellas, la distribución de las concentraciones alfa y beta medidas es marcadamente asimétrica y sesgada a la derecha, donde las actividades más pequeñas son las más probables. Los conjuntos de los datos presentan diferencias significativas con respecto a distribuciones normales ajustándose bien a distribuciones log-normal.

La actividad alfa medida presenta un intervalo de variación entre  $10^{-5}$  y  $4 \times 10^{-4} \text{ Bq/m}^3$ , un valor medio aritmético de  $6,2 \times 10^{-5} \text{ Bq/m}^3$  y un valor medio geométrico de  $4 \times 10^{-5} \text{ Bq/m}^3$ , con una desviación estándar de  $2,8 \times 10^{-5} \text{ Bq/m}^3$ . La actividad beta presenta un intervalo entre  $10^{-5}$  y  $10^{-3} \text{ Bq/m}^3$ , un valor

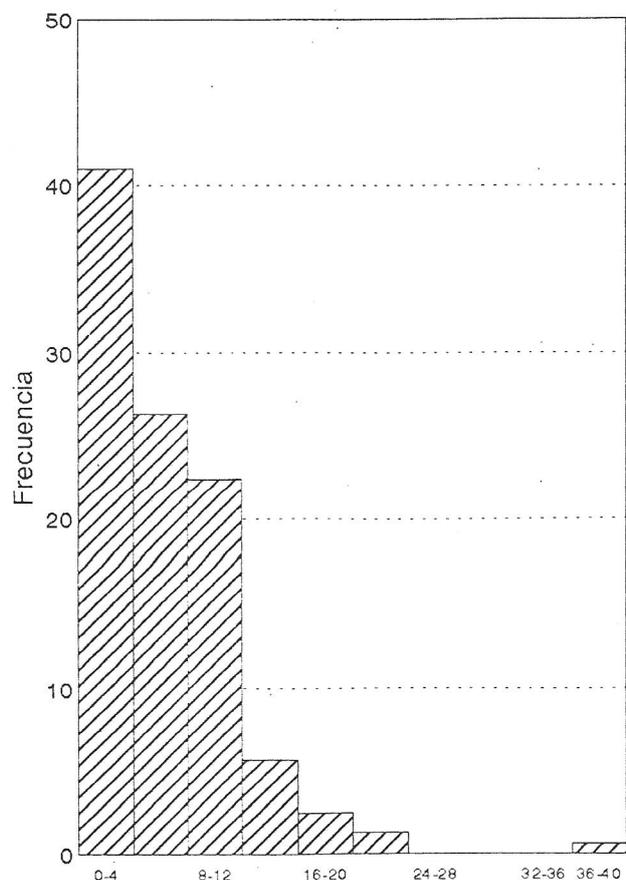


Figura 1

Histograma de frecuencias de la actividad alfa total.

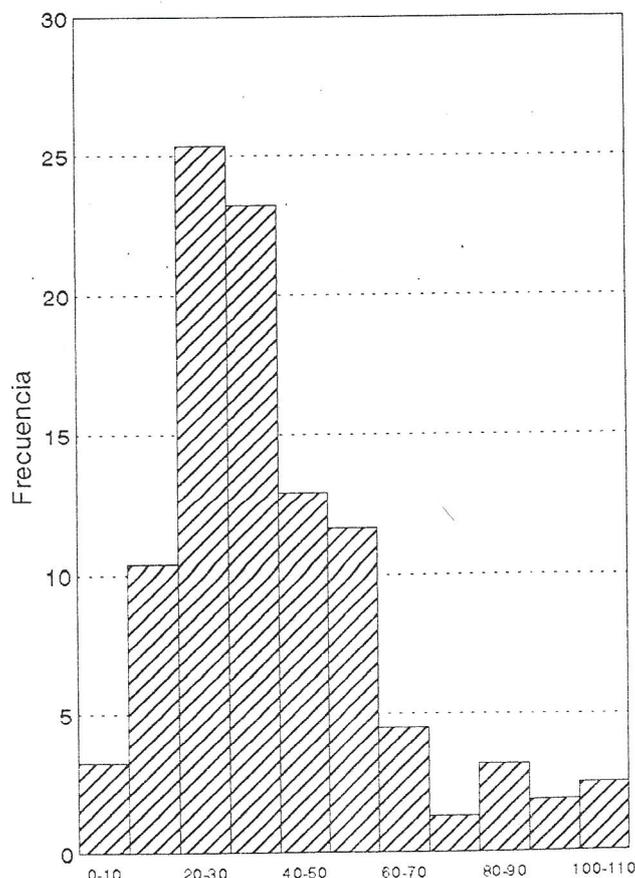


Figura 2

Histograma de frecuencias de la actividad beta total.

medio aritmético de  $3,9 \times 10^{-4}$  Bq/m<sup>3</sup>, un valor medio geométrico de  $3,2 \times 10^{-4}$  Bq/m<sup>3</sup> y una desviación estándar de  $2,0 \times 10^{-5}$  Bq/m<sup>3</sup>. Los índices alfa y beta se correlacionan moderadamente entre sí, índice de correlación 0,65.

No se han detectado variaciones significativas de las actividades alfa y beta de un año a otro ni tampoco una variación estacional. Se ha encontrado una relación significativa entre precipitación en forma de lluvia y disminución de las actividades alfa y beta medidas. Esta relación es, posiblemente, una consecuencia del efecto de lavado que ejerce la lluvia sobre la atmósfera.

La medición de la actividad beta total en agua de lluvia y depósito seco da resultados con valores entre el límite inferior de detección 0,2 y 6,3 Bq/m<sup>3</sup>. No se ha observado correlación entre la cantidad de lluvia recogida durante cada mes y la actividad beta correspondiente.

De acuerdo con los valores obtenidos para las actividades alfa y beta medidas en el aire y con su evolución temporal, pensamos que la mayor parte de aquellas, si no toda, pueden ser justificadas como procedentes de los isótopos radiactivos naturales. Estos serían el <sup>210</sup>Po emisor de radiación alfa y los <sup>210</sup>Pb, <sup>210</sup>Bi y <sup>208</sup>Tl emisores beta que se encuentran en el aire en concentraciones similares a las obtenidas [6].

La medición de gases radiactivos presentes en el aire tiene como principal objetivo determinar la con-

centración de <sup>131</sup>I. Este es un elemento resultante de la fisión del uranio que se liberó en grandes cantidades en algunos accidentes nucleares, como el de Chernobil, produciendo una contaminación importante en la leche y otros alimentos existentes en las regiones afectadas [7]. La medición semanal del <sup>131</sup>I retenido en cartuchos de carbón activado dio en todos los casos valores inferiores al límite de detección, de  $5 \times 10^{-4}$  Bq/m<sup>3</sup>.

La medición trimestral de la actividad gamma, tanto en muestras compuestas de filtros como en las de agua de lluvia, dio como resultado un único elemento radiactivo, el <sup>7</sup>Be, con actividad superior al límite de detección. El <sup>7</sup>Be es un isótopo radiactivo que se produce por interacción de los protones de la radiación cósmica con los átomos del aire en la alta atmósfera [8]. Debido a su origen, el <sup>7</sup>Be se ha usado como trazador en procesos de intercambio vertical en la atmósfera [9] y, por ello, hemos realizado su medición trimestralmente en los filtros de recogida de aerosoles para poder estudiar posibles variaciones estacionales y con el régimen de lluvias.

Los valores de la concentración de <sup>7</sup>Be encontrados trimestralmente han estado comprendidos entre  $2,2$  y  $4,5 \times 10^{-3}$  Bq/m<sup>3</sup>. Estos valores son semejantes a los obtenidos por otros autores en el hemisferio norte [10,11]. No se ha observado una variación estacional de la concentración de <sup>7</sup>Be recogido por filtros. En cambio, existe una relación inversa (Fig. 3)

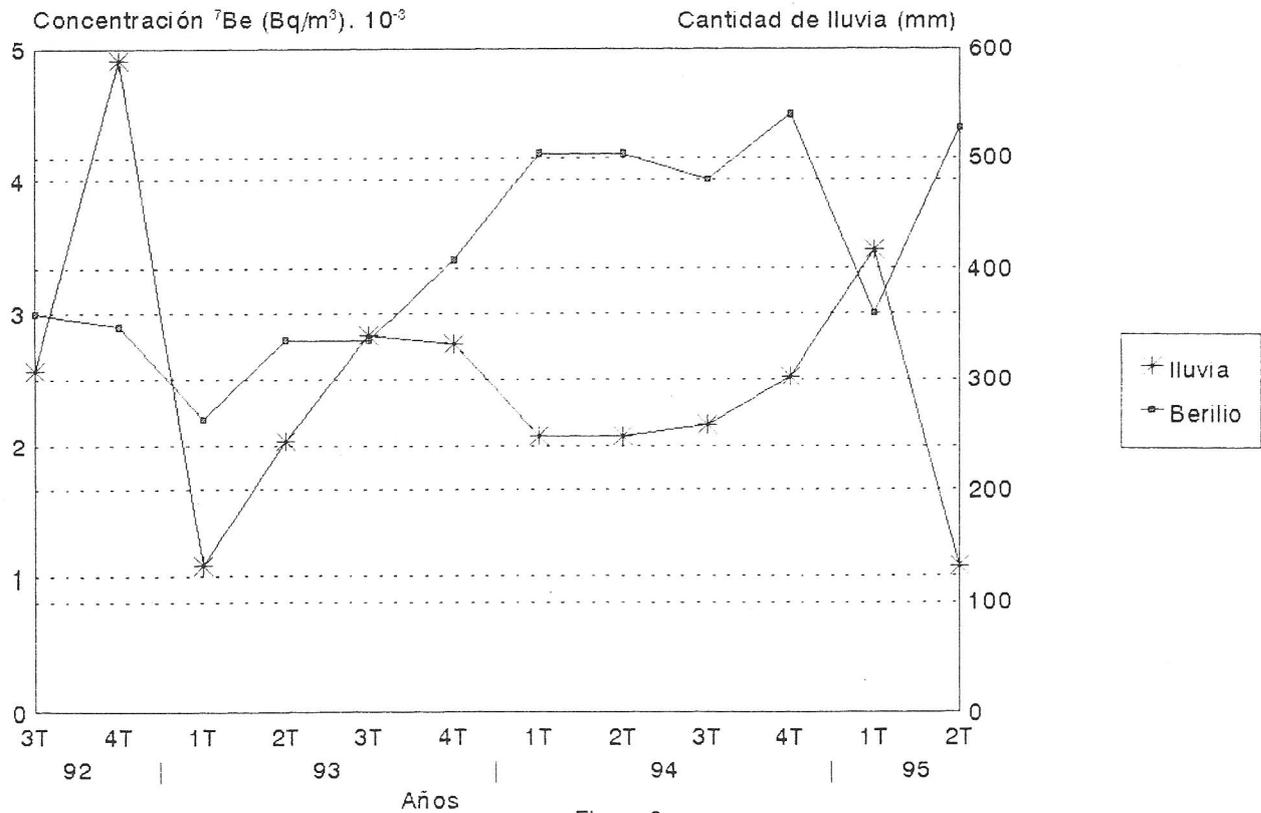


Figura 3 Variación trimestral de la concentración de <sup>7</sup>Be en los aerosoles atmosféricos y cantidad de lluvia recogida.

entre la concentración de  $^7\text{Be}$  y la lluvia caída en cada trimestre.

La concentración de  $^7\text{Be}$  en muestras de agua de lluvia posee un intervalo de variación entre el límite de detección 0,70 y 5,10 Bq/L. No se ha observado correlación entre la concentración del elemento y la cantidad de precipitación recogida en el mismo período. Esta falta de correlación se debe, probablemente, a la metodología empleada en la recogida de muestras de lluvia que no analiza las diferentes fracciones de ésta [12].

El  $^{90}\text{Sr}$  es un elemento radiactivo de 28 años de período que existe en la atmósfera como consecuencia de las pruebas nucleares realizadas durante los años 50 y 60, principalmente. En las explosiones nucleares de alta potencia los productos de fisión fueron inyectados en la estratosfera, distribuyéndose por toda la Tierra y produciendo una deposición sobre su superficie que aún continúa [13].

Las mediciones realizadas con periodicidad trimestral en los filtros de aerosoles han dado concentraciones de  $^{90}\text{Sr}$  inferiores al límite de detección en la gran mayoría de los casos. Únicamente se ha encontrado en ellos una actividad de  $8 \times 10^{-6}$  Bq/m<sup>3</sup> durante el primer trimestre de 1994. De la misma manera en las muestras de agua de lluvia, la actividad del  $^{90}\text{Sr}$  fue superior al límite de detección únicamente en el mismo período que antes con un valor de 33 Bq/m<sup>3</sup>. La concentración de  $^{90}\text{Sr}$  en muestras de suelo dio valores comprendidos entre el límite de detección 1 y 3,2 Bq/kg.

Al igual que el estroncio, el  $^{137}\text{Cs}$  es un elemento resultante de la fisión del uranio que permanece en suspensión en la atmósfera depositándose sobre la superficie del terreno. No se ha detectado  $^{137}\text{Cs}$  en concentraciones superiores al límite de detección en los filtros para aerosoles ni en el agua de lluvia.

En el análisis por espectrometría gamma de las muestras de suelos se han detectado tanto elementos radiactivos naturales como el  $^{137}\text{Cs}$ . Los primeros son los isótopos pertenecientes a las series radiactivas del  $^{238}\text{U}$  y del  $^{232}\text{Th}$  además del  $^{40}\text{K}$  y del  $^7\text{Be}$ . Los valores obtenidos para ellos son los correspondientes a suelos sedimentarios de naturaleza calcárea, 35 Bq/kg para el  $^{226}\text{Ra}$ , 21 Bq/kg para el  $^{232}\text{Th}$  y 324 Bq/kg para el  $^{40}\text{K}$  [14]. El  $^7\text{Be}$  posee una concentración en la capa superficial del terreno, consecuencia del balance entre deposición, tanto por lluvia como por depósito seco y desintegración radiactiva que ha sido, en promedio, de 7 Bq/kg.

La concentración de  $^{137}\text{Cs}$  en las muestras de suelo ha dado un valor medio de 6 Bq/kg. La concentración de  $^{137}\text{Cs}$  en el terreno está determinada por la tasa de deposición sobre la superficie, el arrastre hacia capas más profundas y la desintegración radiactiva. A la vez, los movimientos de suelo debidos a procesos de erosión o sedimentación pueden modificar esa concentración en determinados puntos, por lo que el conocimiento de la concentración de  $^{137}\text{Cs}$  da lugar a un método para la cuantificación de esos procesos [15,16].

## BIBLIOGRAFIA

- [1] EISENBUD, M., Environmental radioactivity from natural, industrial and military sources, Ed. Academic Press, Inc. (1987).
- [2] KATHREN, R.L., Radioactivity in the environment: sources, distribution and surveillance, Harwood Academic Publishers (1984).
- [3] CSN. Memoria anual 1995. Consejo de Seguridad Nuclear (1996).
- [4] IAEA, Measurement of radionuclides in food and the environment. A Guidebook, IAEA Technical Reports Series, No. 295, Vienna (1989).
- [5] SUAREZ, J.A., DE PABLO, M.A., Separación y purificación radioquímica de estroncio radiactivo, Centro de Investigaciones Energéticas y Medioambientales (1988).
- [6] JACOBI, W., ANDRE, R., The vertical distribution of radon-222, radon-220, and their decay products in the atmosphere, J. Geophys. Res., 68 (1963)37-39.
- [7] CORVISIERO, P., SALVO, C. y otros, Radioactivity measurements in northwest Italy after fallout from the reactor accident at Chernobyl, Health Physics, 53, No. 1 (1987)83-87.
- [8] ARNOLD, J.R., AL-SALIH, A.H., Berillium-7 produced by cosmic rays, Sciencie, 121 (1955)451-453.
- [9] YOUNG, J.A. y otros, Short lived cosmic ray-produced radionuclides as tracers of atmospheric processes, Radionuclides in the Environment, American Chemical Society Publications (1970).
- [10] PEIRSON, D.H.,  $^7\text{Be}$  in air and rain, J. Geophys. Res. 68 (13) (1963)3831-3832.
- [11] KUO, Y.C., The precipitation of  $^7\text{Be}$  of Koohsiung, Taiwan, Nucl. Sci. J. (Taiwan), 29, 6 (1992)433-436.
- [12] WALLBRINK, P.J., MURRAY, A.S., Fallout of  $^7\text{Be}$  in South Eastern Australia, J. Environ. Radioact., 25, 3 (1994)213-218.
- [13] PETERSON, K.R., An empirical model for estimating world-wide deposition from atmospheric nuclear detonations, Health Phys., 18 (1970)357-378.
- [14] QUINDOS, L.S., FERNANDEZ, P. y otros, Natural radioactivity in spanish soils, Health Physics, 66, 2 (1994)194-200.
- [15] NAVAS, A., MACHIN, J., A preliminary research on the use of cesium-137 to investigate soil erosion in the semiarid landscape of the central ebro river valley, Soil erosion Studies in Spain, Geofoma Ediciones, Logroño (1991).
- [16] RITCHIE, J.C., MCHENRY, J.R., Application of radioactive fallout cesium-137 for measuring soil erosion and sediment accumulation rates and patterns: A Review, J Environ. Qual, 19 (1990)215-233.