

## NIVELES DE RADIOACTIVIDAD EN AGUAS DE CANTABRIA

J. Soto\*; B. Díaz-Caneja\*; P. Fernández\*\*; I. Gutiérrez\*, L. Quindós\*.

\* Cátedra de Física Médica

\* Departamento de Cirugía, Patología y Radiología.

\*\* Departamento de Física Aplicada.

Universidad de Cantabria.

### RESUMEN

Se ha llevado a cabo un estudio de los niveles de Ra-226 y Rn-222 existentes en aguas de Cantabria. Las muestras de agua han sido recogidas incluyendo aguas de consumo doméstico, aguas minero-medicinales y aguas fluviales superficiales y subterráneas. La concentración de Ra-226 ha sido medida por centelleo en fase líquida y la de Rn-222 por espectrometría gamma. Los resultados obtenidos indican niveles bajos o moderados de estos dos elementos en las aguas medidas.

### INTRODUCCION

El presente trabajo se enmarca dentro del estudio que llevamos a cabo para caracterizar los niveles de radiactividad existentes en la región de Cantabria. En este caso hemos intentado determinar el nivel de radiactividad de las aguas naturales de Cantabria para examinar sus condiciones de potabilidad de acuerdo con las normas generalmente aceptadas referidas a contenido radiactivo de las aguas.

Las condiciones de potabilidad de las aguas están determinadas por un valor máximo admisible en cuanto a radiactividad que da lugar a una irradiación interna que es despreciable respecto a la producida por otras causas naturales. Por encima de este valor cabe estudiar la posible correlación entre nivel de irradiación y distintas afecciones tumorales que se producen en el sistema gastrointestinal.

Para llevar a cabo el presente estudio hemos realizado un muestreo de toda la región que incluye aguas de consumo doméstico, aguas mineromedicinales y aguas fluviales superficiales y subterráneas.

## ELEMENTOS RADIATIVOS EN AGUAS NATURALES

Los factores que determinan la concentración de elementos radiactivos en el agua son numerosos. El valor de la concentración de isótopos radiactivos es el resultado de la interacción entre el agua y las rocas que la rodean teniendo lugar procesos tales como lixiviación, emanación, solución, oxidación, precipitación... La intensidad de estos procesos depende del flujo de agua y de la temperatura por lo que cabe esperarse variaciones dependientes de la época del año y de las condiciones meteorológicas.

Las familias radiactivas del uranio y del torio poseen un comportamiento geoquímico que está dominado por la existencia del radio que posee carácter de elemento alcalinotérreo. El radio da lugar a depósitos radiactivos, no necesariamente uraníferos, al precipitar incluso cuando se encuentra en concentraciones bajas. Esta precipitación es particularmente importante cuando se originan sulfatos por oxidación del sulfuro incluido en los sedimentos que retuvieron el uranio. Por esta razón el radio es el responsable de la radiactividad de los depósitos formados en los manantiales de agua. (1), (2).

La presencia de un gas noble, radón-222, en las familias radiactivas del uranio y del torio da lugar a una mayor diversificación en cuanto a la localización de la radiactividad en aguas naturales. El radón-222 se genera del radio-226 y, por ser difícil su retención, percola por los intersticios cristalinos, se difunde por los estratos permeables y por las fracturas del terreno hasta llegar a la superficie pasando a la atmósfera.

La mayor parte de las aguas subterráneas contienen cantidades de radio inferiores al contenido en radón que les correspondería, lo que debe justificarse por procesos de enriquecimiento en los acuíferos. Así, el granito posee un contenido promedio en radio-226 de  $10^{-12}$  g.  $\text{Ra}^{226}$ /g, y en aguas subterráneas en contacto con él no podrían encontrarse valores superiores a 22 Bq/l para radón. Sin embargo, se encuentran valores del orden de 4000 Bq/l de la concentración de radón en algunas aguas en contacto con granito. Debido a la baja tasa de difusión del radón a través de las rocas, el enriquecimiento debe tener lugar por disolución del gas en el agua en contacto con la superficie de la roca que contiene minerales de radio.

Puesto que el radón es un gas químicamente inerte, el contenido en radón del agua después del enriquecimiento dependerá del decaimiento radiactivo, de la emanación que tenga lugar y de la mezcla con agua de distinto contenido en radón. En cambio, el radio y los descendientes sólidos del radón pueden verse afectados por procesos de precipitación y adsorción por coloides durante el paso del agua a través de la roca dependiendo del valor del pH. (3), (4), (5).

## EFFECTOS SOBRE LA SALUD DEL RADIO Y RADON

Los radionúclidos presentes en el agua entran en el cuerpo humano por ingestión y por inhalación, en el caso de los gases. Una vez que han penetrado en éste su comportamiento queda fijado por las reacciones meta-

bólicas que tienen lugar en el cuerpo. Recibe el nombre de órgano crítico aquel en el que se fija preferentemente un determinado radionucleido. El hueso es el órgano crítico para el radio, debido a su comportamiento químico similar al del calcio, mientras que el pulmón es el órgano más afectado por la irradiación proveniente del radón inhalado y, sobre todo, por la de los descendientes radiactivos del gas. Tanto el radio como el radón pueden dar lugar a una irradiación en el sistema gastrointestinal.

Se han desarrollado varios modelos dosimétricos que permiten calcular la dosis liberada en cada parte del cuerpo humano debido a la ingestión o inhalación de radionúclidos. Los dos modelos más importantes para el caso de aguas de bebida son el modelo gastrointestinal, para la ingestión, y el modelo de pulmón, para la inhalación. Haciendo uso del modelo gastrointestinal puede calcularse la dosis debida a la ingestión de agua con un determinado contenido en radio. Un valor representativo de los diferentes modelos utilizados puede venir expresado por la relación de que, consumiendo agua, 2 l/día, con una concentración de  $2 \cdot 10^{-2}$  Bq/l, la dosis equivalente recibida en hueso resulta ser de  $1'5$  m Sv/año. Igualmente se calcula que la inhalación continua de aire con un contenido en radón de  $3'7 \cdot 10^{-2}$  Bq/l causa, en promedio, una tasa de dosis absorbida de  $4'5 \cdot 10^{-7}$  Gy/h al epitelio bronquial, con una dosis anual de  $2 \cdot 10^{-4}$  Gy. En caso de ingestión se calcula una dosis al estómago de  $4'2 \cdot 10^{-5}$  Gy/año cuando se consume agua con un contenido en radón de 37 Bq/l.

Los resultados de estos modelos dosimétricos junto con consideraciones generales sobre los efectos de las radiaciones sobre el hombre, permiten fijar unas normas que estipulan las características que debe reunir el agua para poder ser considerada no peligrosa desde el punto de vista de su contenido en radiactividad. Estas normas no tienen en cuenta el radón por estimar que su contribución a la irradiación interna, por ingestión, es pequeña comparada con la de otros radionúclidos. El nivel de contaminación máximo que se considera es de  $0'5$  Bq/l para el contaje alfa total de las muestras en el caso de que se trate de aguas de origen no próximo a plantas radiactivas. (6), (7), (8), (9).

#### DISPOSITIVO EXPERIMENTAL DE MEDIDA DE RADON Y RADIO EN AGUAS

La medida de la radiactividad en aguas presenta una serie de requisitos necesarios para asegurar la bondad de los resultados. Estos requisitos afectan al proceso de toma de muestras y a las condiciones del laboratorio de contaje.

El muestreo de aguas debe reunir unas condiciones tales que no modifiquen el equilibrio natural existente. Para la medida de radón debe cuidarse evitar la aireación de las muestras que produciría pérdida de radón en ellas. Para la medida de radio debe prevenirse la absorción en las paredes de los contenedores de agua, la precipitación o coprecipitación y la contaminación por el material de vidrio del laboratorio y por los reactivos químicos. Estos efectos pueden ser minimizados si se acidifican las muestras, una vez recogidas, con ácido clorhídrico o nítrico (10), (11).

El contaje de las muestras necesita sistemas de detección que presenten un ruido de fondo bajo y una eficiencia de recuento elevada.

En este trabajo hemos usado la espectrometría gamma para la medida de radón en las muestras de agua y, eventualmente, para investigar la posible presencia de otros elementos emisores gamma en las muestras. Para ello hemos dispuesto de un detector de 3" X 3" de INa (TI), protegido de la radiación ambiente por una castillete de plomo, cadmio y zinc, que está acoplado a un fotomultiplicador, alimentado por una fuente de alta tensión y que envía impulsos eléctricos que, una vez amplificados, se almacenan en un analizador multicanal. La medida del radón-222 en las muestras de agua se ha realizado a partir de la intensidad del fotopico de 0'61 MeV emitido por su descendiente el bismuto-214. Teniendo en cuenta los períodos de semidesintegración de ambos elementos puede calcularse que el equilibrio radiactivo se establece al cabo de unas tres horas. Para la medida de muestras de agua hemos diseñado y construido un portamuestras de metacrilato de geometría Marinelli de 3 litros de capacidad que proporcionan una óptima eficiencia de recuento. Las muestras de agua se toman directamente con el portamuestras que es sellado a continuación para evitar el paso del radón al aire. Trasladadas al laboratorio se cuentan durante un período de 6 horas, teniendo en cuenta la hora de la toma de la muestra para aplicar un factor de corrección por decaimiento radiactivo. El sistema ha sido calibrado usando muestras de la misma geometría y actividad conocida preparadas por el CIEMAT (JEN). Con las condiciones utilizadas de eficiencia de detección y tiempo de contaje el límite de detección es de 1 Bq/l para el radón (12), (13).

Para la medida de la concentración de radio-226 en muestras de agua hemos utilizado la técnica de centelleo en fase líquida. Para ello hemos dispuesto de un contador de centelleo que utiliza dos fotomultiplicadores en coincidencia, para reducir el ruido de fondo, que envía impulsos eléctricos a una analizador de dos canales. La técnica utilizada se basa en la alta sensibilidad del radón-222, descendiente del radio-226, en disolventes orgánicos no polares tales como el tolueno o el xileno. Para la medida de radio-226 las muestras de agua se recogen en frascos de polietileno y se acidifican con HNO<sub>3</sub>, IN, en el momento de su recogida. La preparación de las muestras para el contaje se realiza evaporando aquellas hasta un volumen de 10 cm<sup>3</sup>, aproximadamente, y acidificando con HCl para evitar la precipitación de sales que podrían arrastrar el radio presente en el agua. Seguidamente se neutraliza la muestra hasta obtener un pH de 2'0. Una vez realizado este proceso se transfiere la muestra a un vial de vidrio para centelleo líquido y se añaden 5 cm<sup>3</sup> de líquido de centelleo que utiliza como disolvente el tolueno. Las medidas se realizan al cabo de 3 semanas, para que el radio-226 alcance el equilibrio con el radón-222, y se mide éste último a partir de la radiación beta emitida por sus descendientes de vida corta. El tiempo de contaje ha sido de 6 horas. El calibrado del método se ha realizado preparando, mediante el mismo proceso, varias muestras de actividad conocida. (14), (15).

#### PUNTOS DE MUESTREO DE AGUAS

Para el presente trabajo se ha realizado un muestreo de aguas de toda la región de Cantabria que incluye aguas de consumo doméstico, aguas de ríos y embalses, aguas subterráneas y aguas embotelladas comercialmente.

En la ciudad de Santander se han realizado dos campañas de recogida de muestras de agua de consumo doméstico en 14 puntos repartidos por toda la ciudad, durante el otoño de 1986 y la primavera de 1987.

Igualmente se han recogido aguas en 35 ciudades y pueblos repartidos por toda la región en fuentes públicas o casas particulares durante la primavera de 1987.

Se han recogido muestras de agua, también durante la primavera de 1987, en 4 o 5 puntos de cada una de las cuencas de los ríos principales de la región, Agüera, Asón, Miera, Pas-Pisueña, Besaya, Ebro, Saja, Nansa y Deva.

Se han recogido muestras de agua subterránea de pozos, cuevas y manantiales de 14 puntos de la región. Finalmente, se han tomado y medido varias muestras de las dos aguas embotelladas comercialmente en Cantabria, Solares y Corconte.

### RESULTADOS OBTENIDOS Y DISCUSION DE LOS MISMOS

Desde el punto de vista geológico, Cantabria está situada en el borde de la cuencia sedimentaria astur-leonesa formada en la era primaria. De esta etapa son los materiales más antiguos de la región, fundamentalmente, calizas de montaña y pizarras y areniscas, que se localizan en su parte suroccidental. En el resto de la región los materiales paleozoicos han sido cubiertos por sedimentos más modernos. Así, se encuentran areniscas, limolitas, arcillas y calizas en toda la región costera aunque existen zonas en las que las masas calizas forman relieves abruptos.

Esta estructura geológica se corresponde con unos valores de radiactividad en suelos que determinarán el contenido de materiales radiactivos que existan en el agua. Las rocas sedimentarias calizas y areniscas poseen concentraciones de elementos radiactivos que son bajos, mientras que las pizarras poseen valores más elevados. Las rocas metamórficas graníticas, existentes en algunos puntos de la región, poseen también valores elevados de radiactividad.

Los valores de radio-226 encontrados en el conjunto de las aguas superficiales de Cantabria, tanto en ríos como en embalses, reflejan este hecho de que exista un gran predominio de suelos con contenidos radiactivos bajos, presentando en la gran mayoría de los casos valores inferiores a los límites de detección del método. Las escasas excepciones a esta regla pueden ser debidas a problemas asociados a impurezas en las aguas, que dan lugar a errores en la medida.

Los valores de radio-226 hallados en las aguas de consumo doméstico tanto en Santander como en otras ciudades y pueblos de Cantabria son también inferiores al límite de detección, 20 m Bq/l, en la mayoría de los puntos muestreados. Sin embargo, en este caso, se encuentran concentraciones mayores en el 40% de los puntos y superiores a 100 m Bq/l en el 10%, que deben corresponderse con acuíferos o pozos, en el caso de algunas fuentes públicas, o con depósitos, en el caso de abastecimiento municipal, que poseen tiempos de permanencia de las aguas más largos o que están formados por materiales de construcción de mayor radiactividad.

Las aguas subterráneas y embotelladas comercialmente presentan también niveles de radio-226 moderados o bajos, aunque no ya por debajo del límite de detección, poseyendo un 35% de las muestras medidas valores superiores a los 100 m Bq/l. Estas concentraciones deben corresponderse

con los niveles de radiactividad de los terrenos por los que pasan y con el tiempo de permanencia en acuíferos. Su contenido en radón-222 es también moderado o bajo, con un valor medio de 23 Bq/l. En las aguas medidas los niveles de radio-226 y radón-222 no están correlacionados entre sí, siendo siempre notablemente mayores los de radón-222, como consecuencia de las causas que determinan la concentración en aguas de ambos elementos.

Como resultado global de las medidas realizadas podemos afirmar que las aguas naturales existentes en la región de Cantabria poseen niveles de radiactividad bajos, menores en todos los casos que los límites recomendados por los organismos internacionales, correspondiéndose con una estructura geológica de materiales sedimentarios con bajo contenido radiactivo.

#### BIBLIOGRAFIA

- (1) SCOTT, R.C. and BARKER, F.B.: "Data on Uranium and Radium in Ground Water in the United States 1954-1957". U.S. Department of the Interior, U.S. Geological Survey, Reston, VA 22092, U.S. Geological Survey. Paper 426 (1962).
- (2) KHADEMIC, B. and MEGSHALI, S.: "Investigation and Measurement of Radium in Ramsar Mineral Water". Health Physics, 21, 464-466. (1971).
- (3) JAN OLOF SNIHS: "The content of some natural radioactive elements, especially Rn<sup>222</sup>, in some potable waters in Sweden". SSI: 1970-029. (1970).
- (4) KIKKAWA, K.: "Study on Radioactive Springs". Jap. J. of Geophysics; Vol. I, Nº 1, (1954).
- (5) HESS, C.T.; MICHEL, J.; HORTON, T.R.; PRICHARD, H.M. and CONIGLIO, W.A.: "The occurrence of radioactivity in public water supplies in the United States". Health Physics, Vol.48, Nº 5, pp.553-586.(1985).
- (6) DOLPHIN, G.W. and I.S. EVE: "Dosimetry of the Gastrointestinal Tract". Health Physics, 12: 163-172. (1966).
- (7) TASK GROUP OF LUNG DYNAMICS: "Deposition and Retention Models for Internal Dosimetry of the Human Respiratory Tract". Health Physics. 12: 137-207. (1966).
- (8) DRINKING WATER and HEALTH, Safe Drinking Water Committee. National Academy of Sciences, Washington, D.C. 20006. (1977).
- (9) F.T. CROSS; H.H. HARLEY and W. HOFMANN: "Health effects and risks from Rn<sup>222</sup> in drinking water". Health Physics. Vol. 48, Nº 5, pp. 649-670. (1985).
- (10) Los Alamos Scientific Laboratory, Radiochemistry Group J-11. Collected Radiochemical Procedures, 3rd ed., Rep. Nº LA-1721, U.S. Atomic Energy Comm., Washington, D.C. (1967).

- (11) POHL, E. and POHL-RULING, J.: "Determination of Environmental or Occupational Rn<sup>222</sup> in Air and Water and Ra<sup>226</sup> in Water". Health Physics. 31 pp. 343-348. (1976).
- (12) MARTIN, P.H.: "On the Natural Radioactivity of Potable Waters in Saudi Arabia". Health Physics, Vol. 46 № 4, pp. 947-949. (1984).
- (13) CROUTHAMEL, C.E.: "Applied Gamma-ray Spectrometry". Pergamon Press, New York, N.Y. Vol. II. (1960).
- (14) PRICHARD, H.M. and GESELL, T.F.: "Rapid measurements of Rn<sup>222</sup> concentrations in water with a commercial liquid scintillation counter" Health Physics, Vol. 33, pp. 577-581. (1977).
- (15) PRICHARD, H.M.; GESELL, T.F. and MEYER, C.R.: "Liquid Scintillation Counting, Recent Applications and Development". Academic Press, New York, Vol. 1. (1980).