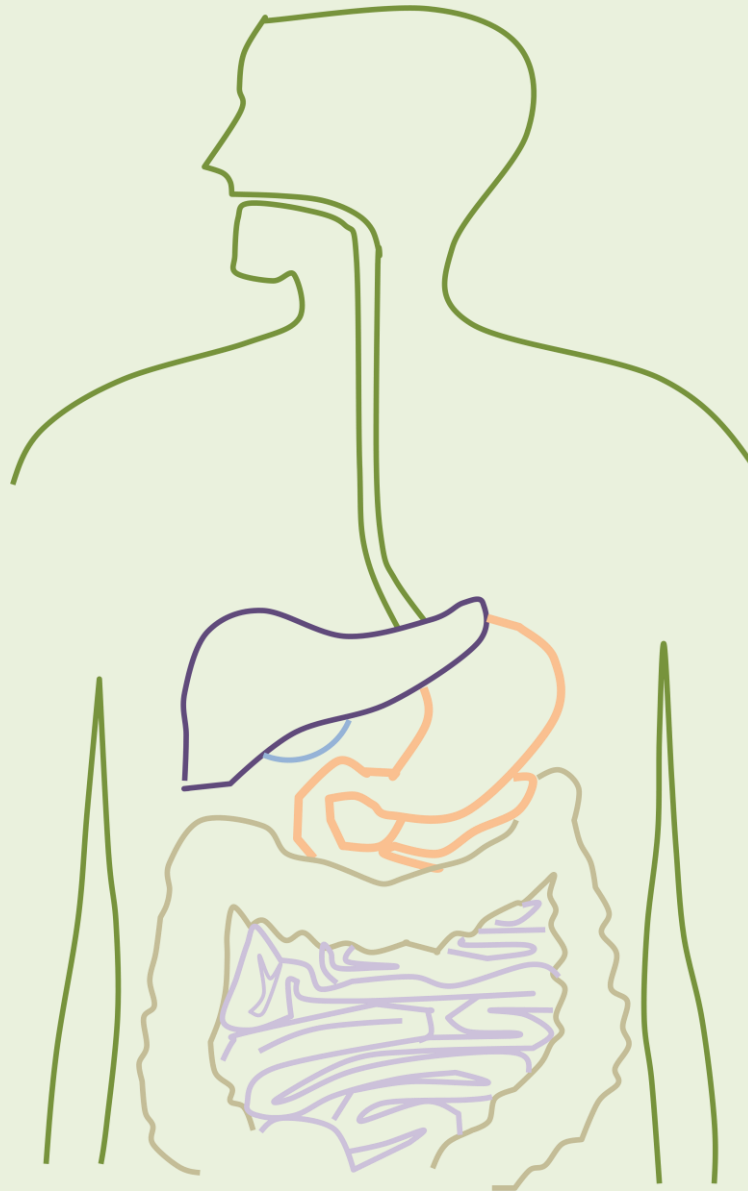


# El $^{210}\text{Po}$ en la cadena alimenticia: implicaciones dosimétricas



Inmaculada Díaz Francés

Tesis Doctoral

FACULTAD DE FÍSICA

DEPARTAMENTO DE FÍSICA ATÓMICA, MOLECULAR Y NUCLEAR



## Índice

<b>1. INTRODUCCIÓN</b> .....	<b>1</b>
1.1 Importancia y fundamentos de los contenidos de esta memoria.....	1
1.2 Características y propiedades del <sup>210</sup> Po .....	2
1.2.1 Objetivos y descripción de la memoria .....	4
<b>2. TÉCNICAS DE MEDIDA DE RADIATIVIDAD</b> .....	<b>7</b>
2.1 Interacción de la partícula alfa con la materia .....	7
2.2 Interacción de la partícula gamma con la materia .....	8
2.3 Detectores de semiconductor para espectrometría alfa .....	10
2.4 Sistema de espectrometría alfa con detectores PIPS .....	11
2.5 Calibración de los detectores y cálculo de la actividad alfa .....	16
2.5.1 Calibración en energía .....	16
2.5.2 Calibración en eficiencia.....	18
2.5.3 Rendimiento químico .....	20
2.5.4 Determinación de la actividad por dilución isotópica .....	21
2.6 Límites de detección en espectrometría alfa .....	22
2.6.1 Límite Crítico y Límite de Detección .....	22
2.6.2 Actividad Mínima Detectable.....	24
2.7 Necesidad de la medida del <sup>210</sup> Pb .....	25
2.7.1 Cálculo de la actividad del <sup>210</sup> Pb a partir de <sup>210</sup> Po .....	26
2.8 Medida de <sup>210</sup> Pb por espectrometría gamma: detector ReGe .....	30
<b>3. METODOLOGÍA</b> .....	<b>31</b>
3.1 Recogida de muestras .....	32
3.1.1 Muestras de agua mineral .....	32
3.1.2 Muestras de dieta tipo .....	32
3.1.3 Muestras de alimentos .....	33
3.1.4 Muestras de tabaco .....	34
3.1.5 Muestras de orina .....	34
3.1.6 Muestras de pelo .....	35

3.2 Pretatamiento de muestras .....	35
3.2.1 <i>Pretratamiento de las muestras para espectrometría gamma</i> .....	36
3.2.2 <i>Pretratamiento de las muestras para espectrometría alfa</i> .....	36
3.2.2.1 Muestras líquidas .....	36
3.2.2.2 Muestras sólidas .....	37
3.2.2.2.1 Digestión ácida en abierto .....	37
3.2.2.2.2 Digestión con horno microondas .....	38
3.3 Tratamiento radioquímico .....	41
3.3.1 <i>Separación de actínidos</i> .....	41
3.3.1.1 Muestras líquidas .....	41
3.3.1.2 Muestras sólidas .....	43
3.3.2 <i>Separación secuencial U/Po</i> .....	43
3.3.3 <i>Muestras de orina</i> .....	46
3.4 Preparación de fuentes de medida de Po y U para espectrometría alfa .....	47
3.4.1 <i>Preparación de fuentes de medida para U</i> .....	48
3.4.2 <i>Preparación de fuentes de medida de Po</i> .....	49
3.4.3 <i>Optimización del procedimiento de autodeposición de polonio</i> .....	50
3.5 Validación del método .....	54
3.6 Cálculo de la dosis .....	56
<b>4. <sup>210</sup>Po E ISÓTOPOS DE URANIO EN AGUAS MINERALES</b> .....	<b>61</b>
4.1 Origen de las aguas minerales y control para su consumo .....	62
4.2 Consumo de aguas minerales .....	63
4.2.1 <i>Evolución en el uso y consumo de las aguas minerales</i> .....	64
4.3 Muestras analizadas .....	66
4.4 Resultados de actividades de <sup>210</sup> Po .....	68
4.5 Resultados de actividades de isótopos de uranio .....	71
4.6 Razones de actividades <sup>234</sup> U/ <sup>238</sup> U y <sup>210</sup> Po/ <sup>238</sup> U en las aguas minerales analizadas .....	74
4.7 Resultados de actividades de <sup>210</sup> Po en un estudio temporal de dos marcas comerciales distintas .....	76

4.8 Resultados de dosis efectivas de $^{210}\text{Po}$ e isótopos de uranio en aguas minerales .....	78
<b>5. <math>^{210}\text{Po}</math> EN LA DIETA .....</b>	<b>91</b>
5.1 Hábitos de consumo alimenticio en España .....	94
5.2 Muestras analizadas .....	98
5.2 Muestras analizadas .....	98
5.3 Concentración de actividades de $^{210}\text{Po}$ en muestras de alimentos .....	98
5.3.1 Resultados .....	98
5.3.2 Dosis .....	100
5.3.3 Productos cárnicos .....	103
5.3.4 Productos marinos .....	105
5.3.5 Lácteos .....	105
5.3.6 Cereales y legumbres .....	106
5.3.7 Verduras y frutas .....	107
5.4 Resultados de concentración de actividades de $^{210}\text{Po}$ en muestras de dieta tipo .....	109
5.5 Resultados de concentración de actividades de isótopos de uranio en muestras de dieta tipo .....	114
5.6 Resultados de dosis efectivas de $^{210}\text{Po}$ en muestras de dieta tipo .....	118
5.7 Resultados de dosis efectivas de $^{234}\text{U}$ y $^{238}\text{U}$ en muestras de dieta tipo .....	123
<b>6. <math>^{210}\text{Po}</math> EN ALIMENTOS DE ORIGEN MARINO .....</b>	<b>127</b>
6.1 Productos marinos en la dieta mediterránea .....	127
6.2 Tipos de productos marinos .....	128
6.3 Consumo de productos marinos en España .....	129
6.4 Muestras analizadas .....	131
6.5 Resultados de concentraciones de actividad de $^{210}\text{Po}$ en organismos marinos habituales en la dieta .....	133
6.5.1 Resultados de concentración de actividades de isótopos de uranio en organismos marinos habituales en la dieta .....	138

6.5.2 Evaluación regional de $^{210}\text{Po}$ en organismos marinos habituales en la dieta .....	143
6.5.3 Resultados de concentración de actividades de $^{210}\text{Po}$ en organismos marinos habituales en la dieta, cocinados y sin cocinar .....	144
6.5.4 Resultados de dosis efectivas de $^{210}\text{Po}$ en organismos marinos habituales en la dieta .....	145
6.5.5 Resultados de dosis efectivas de isótopos de uranio en organismos marinos habituales en la dieta .....	149
<b>7. <math>^{210}\text{Po}</math> EN EL CUERPO HUMANO .....</b>	<b>155</b>
7.1 Transporte de elementos radiactivos en el cuerpo humano .....	156
7.2 Modelo metabólico del polonio .....	159
7.3 $^{210}\text{Po}$ por vía respiratoria .....	161
7.4 $^{210}\text{Po}$ en la orina .....	164
7.4.1 Control de $^{210}\text{Po}$ en orina en individuos que siguen su dieta habitual .....	165
7.4.2 Control de $^{210}\text{Po}$ en orina en individuos que siguen una dieta programada .....	169
7.5 Resultados de concentraciones de actividad de $^{210}\text{Po}$ en el pelo .....	179
<b>8. RESUMEN Y CONCLUSIONES .....</b>	<b>185</b>
<b>BIBLIOGRAFÍA .....</b>	<b>193</b>

## 1. INTRODUCCIÓN

El ser humano está expuesto tanto a radiaciones ionizantes naturales como artificiales y, según la Organización Mundial de la Salud (OMS), un 8% de las fuentes de radiación que afecta al público se corresponde a alimentos y aguas de consumo [WHO, 2004].

Por ese motivo, la regulación de la exposición a las radiaciones ionizantes a través del agua de bebida, es uno de los objetivos que deben plantearse los organismos de protección de la salud pública. De forma periódica la OMS realiza en sus publicaciones recomendaciones referentes a los niveles de radiación y establece los niveles de exposición a partir del consumo de agua. Suponiendo un consumo diario de 2 litros de agua, se estima una dosis efectiva menor de 0,1 mSv/año y en particular se da para la actividad en agua potable un nivel de referencia de 0,1 Bq/l para el  $^{210}\text{Po}$ , con el fin de que la dosis efectiva en el ser humano sea menor que 0,1 mSv/año [WHO, 2004].

Adicionalmente, y con el fin de buscar la seguridad alimentaria y garantizar la calidad de los alimentos nació el Reglamento 178/2002 emitido por la Autoridad Europea de Seguridad Alimentaria, donde se establecen una serie de requisitos básicos a cubrir. En esta reglamentación se controlan también los riesgos de contaminación por organismos modificados genéticamente, y se adoptan medidas para limitar la contaminación a causa de la polución del aire y agua o por exposición radiactiva.

El Consejo de Seguridad Nuclear (CSN), como único organismo competente en materia de seguridad nuclear y protección radiológica en nuestro país, se encarga por otra parte de hacer controles y vigilancia radiológica en el medio ambiente del territorio nacional, incluyendo entre los distintos análisis que realiza muestras de productos básicos para la alimentación humana y de una dieta completa.

En la naturaleza siempre han estado presentes las radiaciones ionizantes, por lo que el hombre siempre ha convivido con ellas, si bien es cierto que éstas también pueden tener un origen artificial. Se estima que la dosis que recibe el hombre debido a fuentes de radiación naturales es de 2,4 mSv/año, donde un 5% de dicha dosis es debida a la ingesta de distintos radionucleidos entre los que encontramos el  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{210}\text{Po}$  y  $^{210}\text{Pb}$ . Entre todos los radionucleidos ingeridos se estima que uno de los mayores contribuyentes a la dosis recibida se debe al  $^{210}\text{Po}$  [Hunt et al. 2004].

El polonio es un elemento descubierto en 1898 por Maria Sklodowska-Curie y su marido Pierre Curie, mientras estudiaban las causas de la radiactividad en la pechblenda. Primeramente se nombró como Radio F y posteriormente se bautizó con el nombre que hoy día conocemos haciendo referencia al país natal de su descubridora. En la naturaleza está presente en cantidades traza en los distintos

compartimentos ambientales, generalmente asociado a minerales de uranio, encontrándose en una proporción del orden de 1 ppb en este mineral.

Son conocidos 43 isótopos de este elemento, siendo todos radiactivos, de los cuales sólo tres tienen un periodo de semidesintegración superior a 1 día:  $^{208}\text{Po}$ ,  $^{209}\text{Po}$  y  $^{210}\text{Po}$ . De estos tres isótopos el  $^{210}\text{Po}$  es el único natural, siendo el radionucleido en el que nos centramos en este trabajo.

La actividad específica del  $^{210}\text{Po}$  es 166 TBq/g y el coeficiente de dosis por ingestión es  $1,2 \times 10^{-6}$  Sv/Bq. Ambos factores hacen que el  $^{210}\text{Po}$  sea, relativamente, el radioisótopo natural con mayor radiotoxicidad por unidad de masa.

La ingesta de una cantidad de 0,02  $\mu\text{g}$  de este isótopo por un adulto daría lugar a una dosis letal de 4 Sv. La manipulación de este radionucleido por parte de organizaciones terroristas puede considerarse de máxima gravedad, puesto que sólo un gramo de este elemento bastaría para matar a millones de personas.

¿Cuáles son las razones o motivos que expliquen el interés particular por el  $^{210}\text{Po}$  en la actualidad? Una razón importante que explica parcialmente el creciente interés en la realización de estudios medioambientales y radiológicos centrados en los radioisótopos  $^{210}\text{Pb}$  y  $^{210}\text{Po}$  se deriva del gran impacto causado por el asesinato hace unos años del espía ruso Sr. Litvinenko a través de la ingestión de una masa mínima pero letal de  $^{210}\text{Po}$ . Este evento, puso de manifiesto el hecho en ese momento conocido, pero no totalmente valorado, de que dentro de los radionucleidos naturales, el  $^{210}\text{Po}$  es de los isótopos que contribuyen con una mayor dosis por ingestión por unidad de actividad incorporada. Recientemente expertos suizos han investigado la muerte del Sr. Yasir Arafat a la cual también asocian como causa de un eventual envenenamiento con  $^{210}\text{Po}$ . Sin embargo, es bastante menos conocido que la primera muerte atribuible a este radioelemento se debió a una intoxicación por exposición al mismo, al producirse la explosión accidental de una cápsula sellada que lo contenía. La víctima fue Irene Joliot-Curie quien murió años después a causa de una leucemia.

En los últimos años, han comenzado a aparecer estudios dedicados a evaluar las dosis susceptibles de ser recibidas por la población debido a la ingestión del  $^{210}\text{Po}$  contenido por los alimentos que consume. El estudio recogido en esta memoria se centrará en evaluar esas dosis para la población del sur de España.

Ahora bien, antes de entrar en el desarrollo de esos estudios, daremos una breve pincelada sobre el elemento involucrado.

### 1.1 Características y propiedades del $^{210}\text{Po}$

El  $^{210}\text{Po}$  es un isótopo natural, perteneciente a la serie del  $^{238}\text{U}$ , descendiente del  $^{210}\text{Pb}$  vía  $^{210}\text{Bi}$  ( $T_{1/2} = 5$  días), que a su vez decae en  $^{206}\text{Pb}$  emitiendo partículas alfa de 5,297 MeV, con un periodo de semidesintegración de 138 días. Su presencia en la atmósfera

es claramente inferior a la de su precursor,  $^{210}\text{Pb}$ , debido a la facilidad de este último a asociarse, tras su generación, a aerosoles, que tienen un corto tiempo de residencia en la atmósfera. De hecho la determinación del cociente  $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$ , en los aerosoles colectados en superficie, constituyen un procedimiento utilizado para determinar su tiempo medio de residencia en la atmósfera. Además, si estos aerosoles se depositan en el medio marino, el seguimiento del mencionado cociente en la columna de agua da una información muy relevante sobre el comportamiento del material particulado en este medio, pudiendo incluso evaluarse, con la información obtenida, los flujos de carbono orgánico en el medio marino hacia las zonas más profundas (es conocida la actuación de los océanos como sumideros de  $\text{CO}_2$ ). Por otra parte, la distribución y el comportamiento del  $^{210}\text{Po}$  en el medio marino, y particularmente en la cadena trófica que alberga, está adquiriendo también una gran atención durante los últimos años, debido a su comportamiento bioacumulativo, y a su tendencia a fijarse en ciertos tejidos y órganos de la biota marina, con todo lo que ello implica desde el punto de vista dosimétrico bien, en la propia biota que acumula este isótopo, bien en la población que puede ingerir estos productos marinos.

El polonio en forma aislada es un metal de color gris que interacciona con el oxígeno en función de la temperatura, pudiendo mantenerse inerte a temperatura ambiente, siendo además un elemento muy volátil. A  $55\text{ }^\circ\text{C}$  un 50% de él se vaporiza en 45 horas, a pesar de que su punto de fusión es de  $254\text{ }^\circ\text{C}$  [Roessler, 2007].

Su configuración electrónica se parece a la del selenio y el telurio, y su química se parece a la de éstos (a este grupo de elementos junto a otros de la familia del oxígeno se les denomina anfígenos o calcógenos).

Podemos encontrar al polonio en estados de oxidación estables de +2, -2, +4 y +6, siendo el estado tetravalente el más estable en una disolución. Este elemento se asocia con cloruros, bromuros, acetatos, nitratos y otros aniones inorgánicos para formar sales solubles. Tiene tendencia a hidrolizarse y formar coloides en soluciones neutras o débilmente alcalinas o ácidas, así como a depositarse de forma espontánea sobre metales como la plata, el cobre y el níquel.

Como se comentó al principio, el polonio es muy raro en la naturaleza debido al corto periodo de semidesintegración de sus isótopos. Se puede encontrar de forma natural en bajas concentraciones, del orden de ppb, en minerales de uranio. Debido a la escasez de este elemento, su aislamiento a partir de fuentes naturales es un proceso complicado. Durante la primera mitad del siglo XX se obtenía del procesamiento de residuos de la producción de radio. Actualmente, el polonio se produce a través de la irradiación neutrónica o protónica de alta energía del bismuto. El  $^{209}\text{Bi}$  bombardeado con neutrones de alta energía da lugar a  $^{210}\text{Bi}$ , que decae a  $^{210}\text{Po}$  por emisión  $\beta^-$ . De esta manera se pueden producir anualmente unos pocos gramos del mismo.



Una de las primeras aplicaciones del  $^{210}\text{Po}$  de las que se tiene constancia fue su uso como elemento componente de un detonador de un arma nuclear producida en Estados Unidos durante la Segunda Guerra Mundial. Aunque no es hasta años posteriores a éstos cuando se empieza a caracterizar bien la física de este elemento.

Actualmente se emplea como fuente de calor en sondas espaciales, como fuente de neutrones, o como dispositivo eliminador de cargas estáticas. La compra para su uso está regulada por la Comisión de Regulación Nuclear, la cual registra las compras de más de 16 curios (592 GBq).

## 1.2 Objetivos y descripción de la memoria

Hace ya varias décadas, que el grupo de Física Nuclear Aplicada II de la Universidad de Sevilla, viene desarrollando técnicas radiométricas para la medida de concentración de actividades de radionucleidos naturales o artificiales, en muestras ambientales o antropogénicas. Esto conlleva a que muchos procesos para la determinación de algunos isótopos radiactivos ya hayan sido desarrollados y puestos en práctica. La realización de mejoras y revisión de las distintas etapas que nos llevan a la medida de un radionucleido es uno de los objetivos que debe plantearse todo laboratorio. El análisis de nuevas matrices, hace que dicho objetivo cobre más importancia. Bajo este precepto, en esta memoria expondremos el desarrollo de los procedimientos radioquímicos llevados a cabo para su aplicación a las distintas muestras estudiadas.

Así, en la primera parte de esta tesis, en el capítulo 2, se van a describir los fundamentos teóricos y prácticos de la espectrometría alfa, técnica empleada para la medida de la actividad del isótopo radiactivo en el que nos centramos, el  $^{210}\text{Po}$ , y a continuación, en el tercer capítulo, se describirán al detalle los distintos procedimientos radioquímicos desarrollados y posteriormente aplicados. El hecho de trabajar con distintos tipos de matrices orgánicas, va a hacer que cada protocolo de actuación para la preparación de la fuente de medida tenga distintas adaptaciones, quedando éstas expuestas en su correspondiente apartado.

La necesidad de la determinación de concentraciones de actividad en las distintas muestras analizadas, que en su gran mayoría se corresponden con alimentos, surge con la idea de estimar la dosis efectiva recibida por la población debida a la ingesta de  $^{210}\text{Po}$  presente en los distintos grupos alimenticios, dada la importancia radiológica de este elemento. El modo en el que se ha llevado a cabo el cálculo de dicha dosis se describe al final del capítulo que venimos mencionando, cerrando así la parte de la memoria dedicada a la metodología.

Atendiendo a la importancia dada por organismos de control, comenzamos presentando en el capítulo 4 los resultados obtenidos en un estudio sobre las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en distintas aguas de bebidas, así como las dosis asociadas por su ingestión para los distintos grupos de edades establecidos en las

normativas vigentes. Adicionalmente, y para describir su importancia relativa desde el punto de vista dosimétrico se comparan estos resultados con los correspondientes a otros radionucleidos presentes en la misma serie radiactiva del polonio, como son el  $^{238}\text{U}$  y el  $^{234}\text{U}$ .

En el capítulo 5 nos centramos en el análisis de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en muestras de distintos grupos alimenticios, haciendo estimaciones de las dosis recibidas debido a la ingesta de los distintos productos con base en estadísticas de consumo de los mismos. A partir de los resultados observados en el capítulo anterior, se deduce que, entre los productos alimenticios, los de origen marino presentan una relativa alta concentración de polonio. Ésto, sumado a que el consumo de pescado juega un papel importante en la dieta mediterránea, nos ha llevado a realizar un estudio en distintas especies marinas ingeridas con asiduidad por la población española en base a su dieta. En el capítulo 6 se muestran los resultados obtenidos tanto de concentraciones de actividad como de dosis efectivas calculadas por la ingestión de una gran variedad de productos marinos a partir de datos de consumo proporcionados por el Ministerio de Agricultura, Alimentación y Medio Ambiente (MAGRAMA).

Se conoce que el polonio es bioacumulativo, aunque se desconoce la causa de ello. Sin embargo, existe una limitación a la hora de realizar los modelos biocinéticos de este elemento, dado los escasos estudios realizados en humanos. Ello es relevante porque por ejemplo, la eliminación del polonio a través de la orina, nos puede llevar a dar una idea del polonio ingerido. Por ese motivo, en el capítulo 7 nos centraremos en mostrar resultados de este radionucleido en muestras de orina, con el fin de que los resultados y conclusiones obtenidos puedan emplearse en un futuro como base para un estudio más amplio que persiga el análisis de estas muestras como test de posibles contaminaciones. Adicionalmente, y a través de un control de la ingesta realizada por un voluntario durante un periodo de más de un mes, veremos como de sensitiva es la orina para marcar variaciones apreciables in la ingestión de polonio, e incluso ahondando un poco más en el tema, se presentan resultados de  $^{210}\text{Po}$  en el pelo, con el fin de buscar una posible matriz alternativa que nos dé información sobre el paso de este elemento por el cuerpo humano.

Para finalizar la memoria y enlazar los distintos capítulos que en ella se presentan, el capítulo 8 muestra las conclusiones obtenidas en el desarrollo de esta memoria así como un resumen de los principales resultados obtenidos.



## 2. TÉCNICAS DE MEDIDA DE RADIATIVIDAD

En este capítulo vamos a proceder a presentar las técnicas de medida utilizadas en este trabajo para la determinación de las concentraciones de  $^{210}\text{Po}$  e isótopos de uranio (espectrometría alfa) y  $^{210}\text{Pb}$  (espectrometría gamma) en diversas matrices naturales. El sistema de espectrometría alfa utilizado se denomina Alpha-Analyst y está equipado con detectores de Si de implantación iónica (PIPS). En cuanto al sistema de espectrometría gamma, está conformado por un detector coaxial de Germanio hiperpuro (HPGe) tipo REGe (Reverse Electrode Germanium). En este capítulo se destaca un apartado dedicado a los límites de detección, dado que nos moveremos en un área como es la de las Técnicas de Recuento de Bajo Nivel (Low Level Counting).

A continuación, a manera de introducción, vamos a describir los procesos físicos que concurren en los procesos de detección, tanto en el equipo de espectrometría alfa como en el equipo de espectrometría gamma.

### 2.1 Interacción de la partícula alfa con la materia

La partícula alfa es un núcleo de He, es decir un átomo de He doblemente ionizado. Se caracteriza, por tanto, por su alta carga eléctrica, lo que va a ser fundamental para entender su interacción con la materia. Atendiendo a los mecanismos de interacción entre las partículas cargadas y la materia (en concreto para partículas cargadas pesadas como: partículas alfa, protones, muones o piones entre otros), podemos considerar para su detección dos tipos de interacciones principalmente según se muestra en la Figura 2.1.

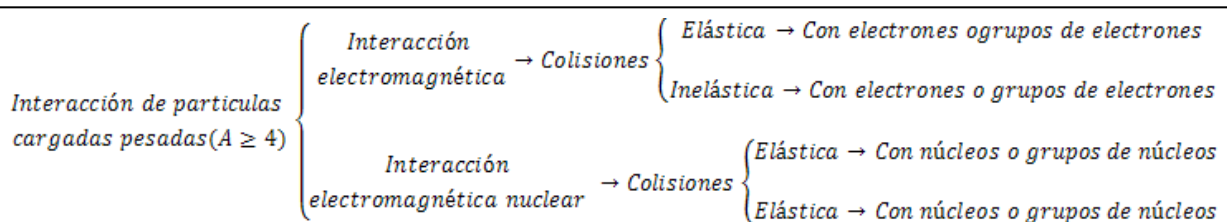


Figura 2.1: Mecanismos de interacción útiles para la detección de partículas cargadas pesadas

Desde el punto de vista de la detección, los mecanismos relevantes son aquellos en que la partícula transfiere toda su energía cinética a las partículas del medio por donde viaja. Por ese motivo, pese a su pequeña sección eficaz, la colisión inelástica con los electrones atómicos es el tipo de interacción más importante desde el punto de vista de la detección[Leo. 1987]. Mediante este proceso, la partícula cede energía al medio

provocando la excitación o ionización en él. En cada colisión, la cantidad de energía cinética transferida es muy pequeña, pero en un medio material, el número de colisiones por unidad de camino recorrido es tal que la partícula pierde una cantidad importante de su energía o su totalidad en una distancia muy pequeña. De hecho, la distancia característica que puede atravesar una partícula alfa en un medio material es del orden de  $10^{-5}$  m mientras que para la radiación gamma es del orden de  $10^{-1}$  m [Knoll, 1987].

Otro fenómeno que suele ocurrir con cierta probabilidad es la dispersión elástica con núcleos, aunque en general se transfiere muy poca energía en estas colisiones ya que la diferencia en masa entre los núcleos de la mayoría de los materiales y la partícula incidente es grande (por supuesto siempre habrá excepciones como por ejemplo un haz de partículas alfa sobre un blanco de H donde este efecto es algo más relevante, pero no será nuestro caso).

A principios de los años 50, la técnica para la medida de partículas alfa se basaba en detectores de centelleo sólido, cuyas tasas de recuento eran muy bajas, siendo lo único importante su capacidad para detectar. Posteriormente aparecieron los detectores Geiger de ventana delgada y después los de flujo de gas, que permitieron diferenciar partículas alfa de diferente energía, aunque aún estaban muy limitados en este sentido. La detección de las partículas alfa mejoró con la aparición de las cámaras de ionización, aunque la resolución energética obtenida con estos detectores seguía no siendo muy buena. Otra técnica bastante extendida, a partir de los años 70, dada su sencillez en la preparación de las muestras y su alta eficiencia de detección, fue la técnica de centelleo líquido, que además permitía medir simultáneamente tanto emisores alfa como beta en una misma muestra, aunque también presenta una baja resolución en energía.

La técnica de medida de la espectrometría alfa con semiconductores abrió paso a la medida espectrométrica de niveles muy bajos de emisores alfa. Esta técnica, si bien empezó a emplearse en los años 60, fue cobrando cada vez más importancia a partir de los 70, cuando empezaron a producirse mejoras tanto en los propios detectores como en los analizadores multicanales.

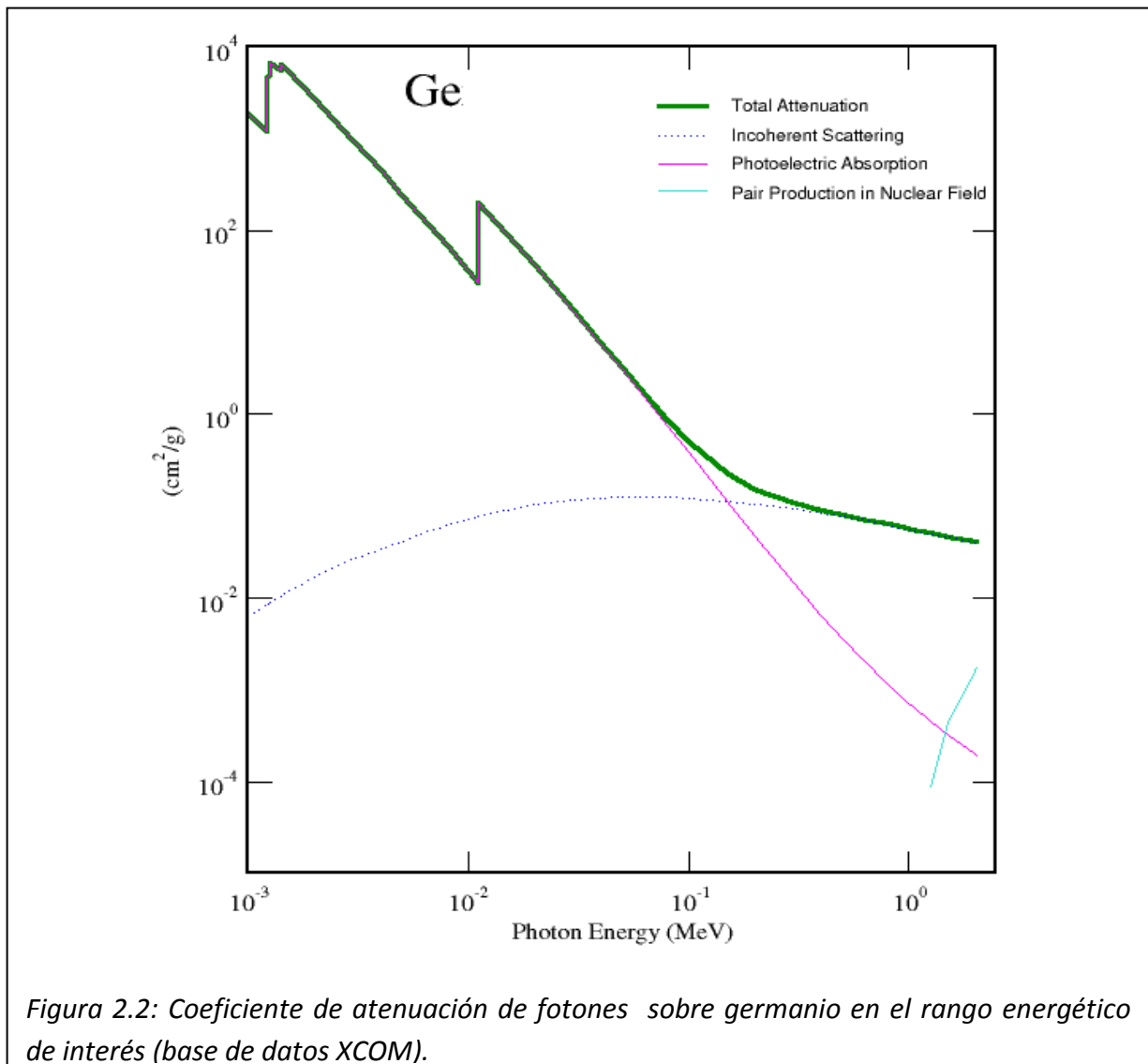
Nos centraremos en esta memoria en la espectrometría alfa con detectores de semiconductor, ya que además de ser la técnica más extendida hoy día, es la empleada en este trabajo.

## **2.2 Interacción de la radiación gamma con la materia**

La radiación gamma es de naturaleza electromagnética y es emitida en la desexcitación de núcleos inestables originados en el proceso de desintegración de su progenitor. De las distintas vías de interacción entre un fotón gamma y la materia: absorción o

dispersión, y dentro de esta última, elástica o inelástica, los verdaderamente relevantes en la detección son aquellos en los que el fotón ve alterada notablemente su energía en la interacción con el material que compone el detector. Si además tenemos en cuenta que nosotros trabajaremos por debajo de los 2000 KeV, podemos concluir que los procesos o efectos relevantes que tendremos que considerar en la detección de emisores gamma emitidos por las muestras analizadas son: el efecto Compton, el efecto fotoeléctrico y la producción de pares[Leo. 1987].

En la Figura 2.2 se aprecian los rangos energéticos en los que domina un efecto u otro teniendo como material sobre el que interacciona la emisión gamma al Ge, al ser éste el elemento constituyente esencial de nuestros sistemas de detección. Dado el rango energético de trabajo, tendremos una contribución absoluta de efecto Compton similar en todas las energías, aunque será relativamente mayoritaria por encima de 100 keV. El efecto fotoeléctrico disminuye con la energía y la creación de pares también estará presente en tanto se superen los 1022 keV.



Los primeros detectores de rayos gamma realmente útiles en medidas de bajo fondo se desarrollaron a partir de los años cincuenta basándose en cristales de NaI activados con Tl. Estos detectores poseían una alta eficiencia de recuento y una resolución energética aceptable para la época. Desde entonces, los detectores se extendieron a otros materiales tanto inorgánicos (BGO, CsI(Tl), ...) como orgánicos (plástico, centelleo líquido), culminando en los años sesenta con un salto cualitativo importante en cuanto a la mejora de resolución se refiere. Los cristales de semiconductor Ge(Li), Si(Li) y posteriormente los HPGe mejoraron en un orden de magnitud la resolución de los detectores de NaI (Tl). En nuestro caso, los detectores que hemos utilizado para la detección de emisiones gamma son de tipo germanio hiperpuro (HPGe).

### **2.3 Detectores de semiconductor para espectrometría alfa**

Los detectores semiconductores empleados en espectrometría alfa, se basan en la existencia de un cristal semiconductor constituido por una unión p-n. La región tipo p tiene mayoría de huecos libres como portadores de carga, y la región tipo n tiene una mayoría de electrones libres como portadores de carga.

En el entorno de dicha unión, se forma una zona llamada de depleción o reducida, que estará exenta de portadores libres de carga, donde habrá una alta resistencia eléctrica y presentará las condiciones adecuadas para la detección de las partículas alfa que la atraviesen. Cuando una partícula alfa penetra en dicha zona, deposita totalmente su energía creando pares electrón-hueco que son recolectados por los electrodos asociados al cristal, si previamente se ha establecido un campo eléctrico en el mismo mediante la aplicación de una diferencia de potencial entre los electrodos.

Dado el corto recorrido que pueden llevar a cabo las partículas alfa en medios materiales, éstas ceden totalmente su energía en la zona de depleción o reducida, por lo que si se realiza una colección completa de los portadores generados por cada partícula, el pulso de carga generado tendrá un tamaño directamente proporcional a la energía de la partícula alfa incidente.

Los detectores de semiconductor para espectrometría alfa han ido evolucionando desde su aparición. Dicha evolución ha ido encaminada a la mejora en la forma de lograr la unión p-n en los cristales semiconductores.

Los primeros detectores semiconductores empleados eran los llamados de unión difusa. En éstos, el cristal tipo p quedaba expuesto al vapor de una impureza donadora (normalmente fósforo), convirtiendo la región próxima a esta superficie de tipo p en tipo n, formándose de esta manera una unión p-n a una distancia de la superficie. Esto a su vez provocaba que la resolución del sistema de detección no fuese la óptima, ya

que la capa formada entre la superficie y zona de deplexión debe ser atravesada por la radiación incidente antes de llegar a la zona sensible del detector y ser detectada. La mejora en la resolución del sistema se puede lograr haciendo más fina dicha capa, también conocida como ventana del detector.

Los detectores de unión difusa fueron mejorados y sustituidos posteriormente por los detectores de barrera. En éstos, encontramos un disco de Si de tipo n, y se consigue una alta densidad de trampas de electrones que hacen de tipo p, mediante la acción de un medio ácido sobre la superficie tipo n. Sobre la superficie se evapora una finísima capa de oro para que se pueda realizar el contacto eléctrico. Respecto a los anteriores detectores descritos, presentan la ventaja de tener una mejor resolución pero por el contrario introducen más ruido.

Los detectores de barrera, finalmente, han ido siendo sustituidos por los detectores de implantación iónica. En este tipo de detectores el bombardeo de material con iones (de fósforo o boro) consigue que se formen las capas tipo p y tipo n. Conseguimos con esto ventanas muy delgadas en comparación a las que obteníamos con los detectores de barrera de superficie. Dentro de los detectores de implantación iónica, encontramos los detectores PIPS, caracterizados por su particular forma de proceder para realizar dicha implantación. Hoy día este tipo de detectores son los más usados para espectrometría de partículas alfa, y en concreto, son los que empleamos para las medidas de este trabajo. Frente a los detectores de barrera de superficie o de unión difusa, presenta una serie de ventajas entre las que destacan: el menor espesor de la ventana, y por ello una mejor resolución en energía; la mayor robustez de éstos, lo que permite la limpieza y descontaminación de su superficie; y una corriente de polarización inversa menor a la de los otros detectores, consiguiendo un menor nivel de ruido.

Debido a que las partículas alfa son muy pesadas, el aire o cualquier materia que se interponga entre la fuente de medida y el detector puede absorber parte de la energía de la partícula. Dado que estas pérdidas no son uniformes para todas las partículas alfa emitidas, se produce una peor resolución en los espectros adquiridos, pudiéndose también verse afectada la eficiencia de recuento. Esto hace necesario trabajar con un cierto grado de vacío, tratando de reducir lo máximo posible la pérdida de energía en el aire.

#### **2.4 Sistema de espectrometría alfa con detectores PIPS**

El detector PIPS se sitúa en una cámara donde se colocará la fuente de medida y se realizará un determinado grado de vacío. Para la polarización del detector, la colección de carga eléctrica y la formación y tratamiento de la señal eléctrica correspondiente a cada detección de partícula alfa se requiere de una cadena electrónica asociada al



detector. Los elementos que típicamente componen la cadena electrónica del sistema de espectrometría alfa se muestran en la Figura 2.3 y son:

- Fuente de tensión, que nos va a permitir polarizar el detector a través de una diferencia de potencial.
- Preamplificador, que forma un pulso de voltaje a partir de la carga eléctrica generada en la interacción de la partícula alfa con el detector.
- Amplificador, que amplifica la señal procedente del preamplificador y le va a dar una forma gaussiana.
- Convertidor Analógico Digital (ADC), que transforma la señal analógica proveniente del amplificador, en una señal digital en función de su amplitud, la cual posteriormente podrá ser tratada por el analizador multicanal (MCA).
- MCA, tiene como función asociar a cada señal digital un canal según la altura de ésta, de tal forma que a cada canal le corresponde un rango de energía concreto. La distribución del número de impulsos acumulados en los diferentes canales, es lo que se conoce como espectro.

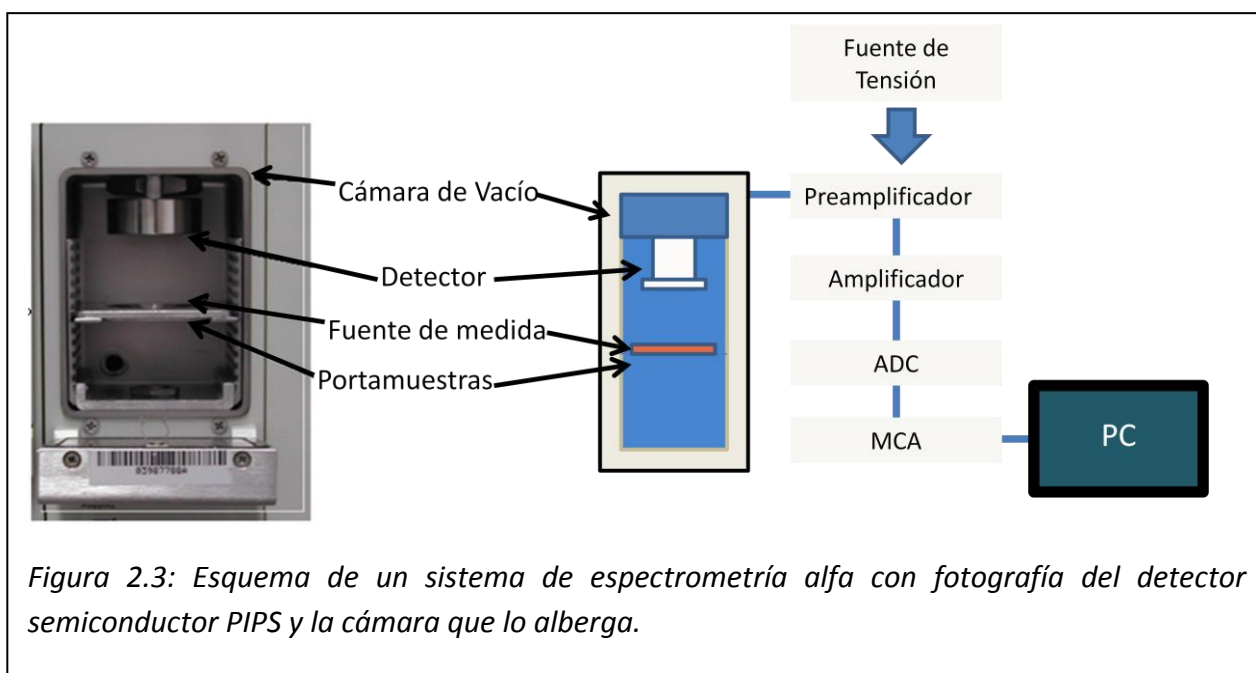


Figura 2.3: Esquema de un sistema de espectrometría alfa con fotografía del detector semiconductor PIPS y la cámara que lo alberga.

El tipo de detector que hemos empleado en nuestro laboratorio para la medida de isótopos de U y  $^{210}\text{Po}$  es un detector de silicio de implantación iónica de la marca Canberra, Modelo A450-18AM, con una superficie activa de  $450\text{ mm}^2$  y una resolución certificada de 18 KeV para la emisión alfa de 5,4856 MeV del  $^{241}\text{Am}$ . Dicha resolución del detector se calcula a una distancia entre la muestra y el detector de 15 mm, aunque este valor se obtiene en fábrica no mediante una fuente del citado radionucleido, sino usando un generador de impulsos asociado a la electrónica, evitando así la posible contaminación del detector.

El rango energético de trabajo comprende desde los 3 MeV hasta los 8 MeV. El espesor de la zona de depleción en las condiciones de trabajo (de al menos 140  $\mu\text{m}$  según el fabricante) es suficiente para la absorción total de partículas alfa de hasta 15 MeV.

La tensión de polarización aplicada al detector es de 40 V, valor recomendado por el fabricante. Un valor inferior en dicha polarización conlleva la disminución de la zona de depleción. Otra característica del detector es que presenta un fondo extremadamente bajo, evaluado en unas 6 cuentas/día según su fabricante en la región energética de interés.

El detector se encuentra situado en una cámara de detección opaca a la luz para evitar el fenómeno de fotoluminiscencia. Por otra parte, es necesario alcanzar cierto grado de vacío en el interior de la cámara que permita que lleguen las partículas alfa al detector sin que pierdan energía en el camino. Ahora bien, este vacío no debe ser un vacío excesivo ya que cada partícula alfa va acompañada del movimiento de un núcleo de retroceso, pudiendo introducirse este último en el detector y seguir emitiendo partículas si es radiactivo, dejando contaminado el detector. Un pequeño grado de vacío no afectará de forma sustancial a la pérdida de energía de las partículas alfa emitidas y minimizará la llegada de núcleos de retroceso al detector [García-Tenorio et al. 1986]. Con ambas premisas, la presión de trabajo en las cámaras suele oscilar entre 0,5 Torr y 0,05 Torr.

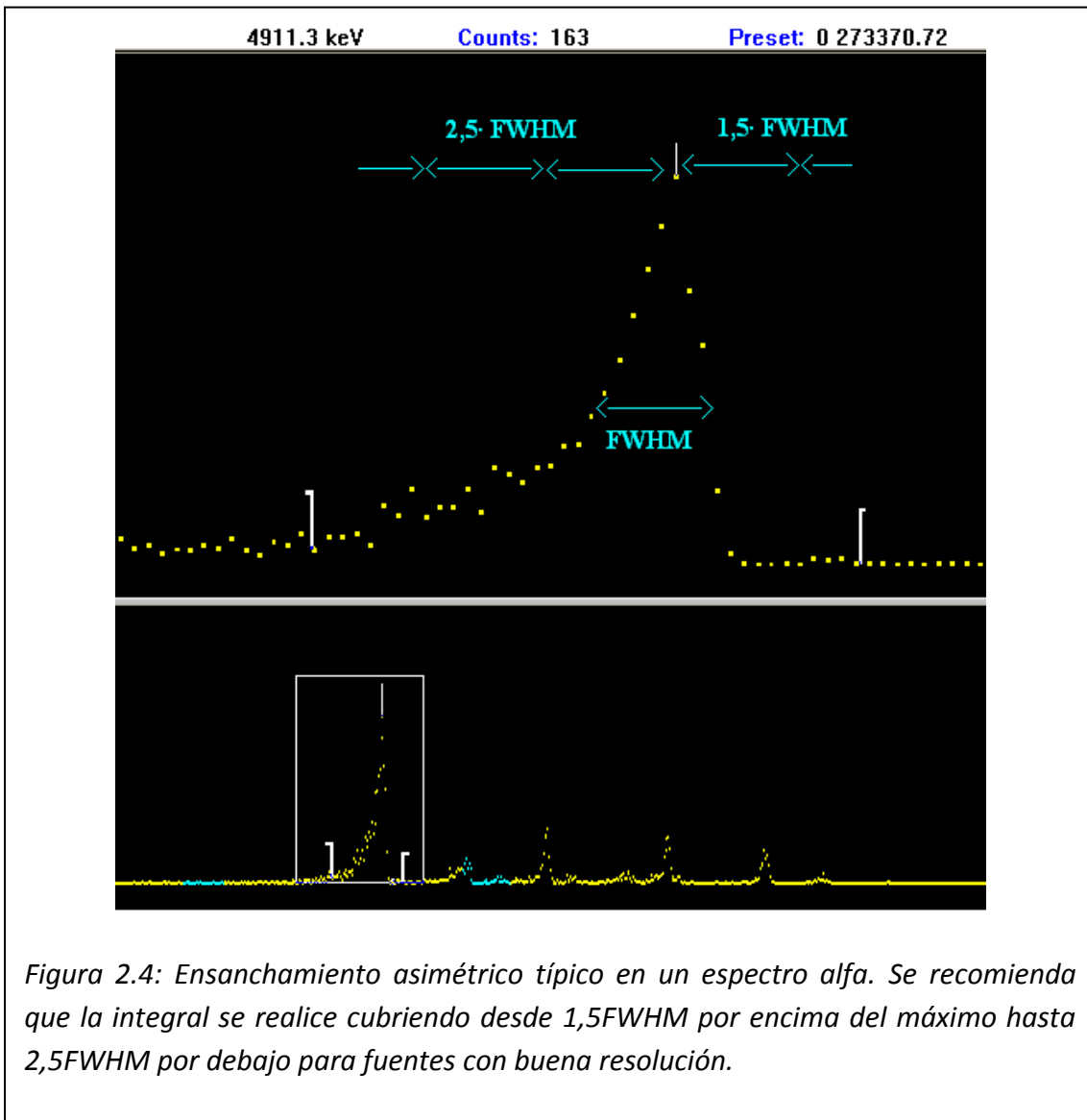
Teóricamente, si atendemos a la física elemental que se ha descrito para la emisión y la detección de las partículas alfas de una determinada energía, deberíamos encontrar idealmente un espectro discreto en un único canal que recogiese la única energía con la que se emiten dichas partículas alfa. Si embargo, distintos fenómenos contribuyen a que el espectro no sea discreto sino que se para cada emisión se obtenga una figura en forma de montaña asimétrica (ver figura 2.4) que ocupa varios canales, que constituyen una región de interés o ROI.

Estos fenómenos son:

- 1) Efecto de la dispersión nuclear debido a la colisión de las partículas alfa en el propio detector.
- 2) Efecto de las fluctuaciones asociadas al número de electrones-hueco que originan las partículas alfa en el volumen activo del detector.
- 3) Efecto producido por el ruido electrónico en el detector y por las fluctuaciones en el número de cargas que se generan en el paso de una partícula por el detector, en el que interviene el resto de la cadena electrónica asociada al sistema de detección.
- 4) Efecto de atenuación de la energía de las partículas alfa al atravesar la zona muerta y la ventana del detector.

- 5) Efecto de autoabsorción de las partículas alfa en el espesor de la propia muestra y en el camino existente entre la fuente y el detector.

Con todos estos efectos, un espectro alfa típico se muestra en la Figura 2.4. El ensanchamiento de las líneas alfa es simétrico debido a los tres primeros efectos nombrados, mientras que la asimetría (que genera una cola a bajas energías y hace que se pueda desplazar incluso el máximo a energía inferiores), se asocia a los efectos de absorción y autoabsorción. Algunos autores [Steinbauer et al. 1994], [Martín Sánchez et al. 1994] muestran que la asimetría proviene esencialmente de la autoabsorción más que del efecto en la zona muerta del detector, que podría considerarse prácticamente como un efecto simétrico.



Lo ideal sería disminuir cada uno de estos efectos al mínimo, de forma que nos quede una resolución en energías lo más pequeña posible en los picos de cada espectro. No

obstante, en el caso de los dos primeros efectos, nada podemos hacer pues son efectos intrínsecos de la interacción de las partículas alfa con el material del detector. En cuanto al ruido electrónico, optimizando la cadena electrónica sí que podemos atenuar su contribución. La cuarta contribución dependerá del tipo de detector utilizado, pudiéndose disminuir su efecto al colocar las muestras de tal forma que las partículas alfa recorran el menor trayecto posible en la zona muerta del detector. Por último, la autoabsorción se puede optimizar disminuyendo el espesor de la muestra, para ello se introduce en el procedimiento radioquímico un paso final de deposición en finas láminas(método que se comentará posteriormente). Un control adecuado en el grado de vacío de la cámara ayudará también en este sentido.

Desde un punto de vista geométrico, la distancia fuente-detector (en inglés Source to Detector Distance, SDD) tiene una importancia notable ya que conforme esta distancia aumenta, las partículas que son realmente detectadas, atraviesan menores longitudes en la fuente y en la ventana del detector, sufriendo por lo tanto menos atenuación en la energía que poseen. Esto repercutirá en una mejora de la resolución del espectro, aunque al alejarla, también estaremos disminuyendo la eficiencia de detección. Por ello la distancia óptima a la que situar la fuente se debe fijar tras tener en cuenta ambas situaciones. En la medida de muestras ambientales por ejemplo, donde normalmente hay un bajo contenido radiactivo, debe tenderse a trabajar con altos valores en la eficiencia, para no tener que estar midiendo las muestras durante un tiempo excesivamente largo, aunque ello provoque un ligero aumento en la resolución de los picos.

Nuestro detector, convenientemente instalado en su cámara, se integra en un sistema de espectrometría alfa modelo *Alpha Analyst* fabricado por Canberra y compuesto por 4 módulos, cada uno de los cuales consta de dos cámaras de vacío con un detector en cada una. Forma parte de este sistema una bomba que proporcionará el vacío necesario en cada módulo lo que permitirá crear vacíos independientes y así un mayor margen de maniobrabilidad con las muestras al no tener que hacer el vacío o dejar de hacerlo en todos los módulos a la vez.

Estos dispositivos se controlan mediante dos aplicaciones de software, ambas suministradas por el fabricante del sistema de detección: Alpha-analyst® (para un correcto manejo tanto de los parámetros en el sistema de detección como el grado de vacío o voltaje de polarización entre otros) y el Genie 2000® versión 3.0 donde se recogerán y analizarán los espectros generados.

## 2.5 Calibración de los detectores y cálculo de la actividad alfa

En espectrometría alfa, hay diversos fenómenos que hacen que el número de cuentas por unidad de tiempo medido en el espectro alfa sea mucho menor que la actividad de un determinado radionucleido en la muestra analizada. Así, en primer lugar tenemos una disminución de actividad entre la muestra analizada y la fuente radiactiva que se mide en el detector. Esta disminución de actividad viene cuantificada por el rendimiento químico (en tanto por ciento) y su valor está afectado por la puesta a punto del procedimiento radioquímico aplicado. En segundo lugar tenemos una segunda determinación asociada a lo que se denomina la eficiencia de recuento del detector, es decir la fracción de partículas alfa que salen de la fuente radiactiva y es contada en el detector. La eficiencia está afectada, fundamentalmente, por un factor geométrico, aunque otros factores como el grosor tanto de la fuente radiactiva, como de la ventana del detector también influyen. De acuerdo con lo anterior, la expresión que usaremos para el cálculo de la actividad de un radionucleído en una muestra viene dada por la ecuación [2.1] donde  $N$  es el número de cuentas neto en la región de interés en el espectro (Region Of Interest o ROI),  $t$  es el tiempo de medida,  $\varepsilon$  es la eficiencia de recuento,  $I$  la intensidad asociada a la emisión alfa considerada y  $R$  es el rendimiento químico.

$$A(\text{Bq}) = \frac{N}{t \cdot \varepsilon \cdot I \cdot R} \quad [2.1]$$

En el denominador de la ecuación anterior suele aparecer también la masa o volumen de la muestra si se expresa el resultado en unidades de concentración de actividad (Bq/kg o Bq/l).

Describiremos a continuación cada una de las calibraciones que hay que realizar en nuestro sistema de detección para obtener y cuantificar todos los parámetros que conforman la ecuación [2.1]. Además, comentaremos también el software asociado a nuestro sistema de medida utilizado para ir realizando dichos cálculos.

Para calcular correctamente  $N$  es esencial que los distintos picos estén en canales bien calibrados en energías, para así identificar las distintas emisiones presentes en nuestro espectro e identificar los radionucleidos presentes en la muestra analizada. Todas las calibraciones se han realizado para cada uno de los ocho detectores de que disponemos.

### 2.5.1 Calibración en energía

El rango energético en el que vamos a trabajar se sitúa entre los 4 y 6 MeV. Con el fin de realizar la calibración canal-energía en esta zona, se van a medir tres muestras que se encuentran electrodepositadas en planchetas circulares de acero de 25 mm de diámetro. Estas muestras contienen  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$  y  $^{243}\text{Am}$ , respectivamente.

Radionucleido	E (keV)	I de emisión (%)	Canal
$^{239}\text{Pu}$	$5105,5 \pm 0,8$	$11,5 \pm 0,8$	501
	$5144,3 \pm 0,8$	$15,1 \pm 0,8$	507
	$5156,6 \pm 0,1$	$73,3 \pm 0,8$	509
$^{242}\text{Pu}$	$4856,2 \pm 0,1$	$22,4 \pm 0,2$	465
	$4900,5 \pm 0,1$	$77,5 \pm 0,3$	471
$^{243}\text{Am}$	$5233,3 \pm 0,1$	$11,0 \pm 0,4$	521
	$5275,3 \pm 0,1$	$87,4 \pm 0,4$	526

Tabla 2.1: Fuentes usadas para la calibración en energía y listado de canales encontrados en una de las ocho cámaras del alpha analyst. Las energías conjuntamente con sus errores se encuentran en la bibliografía[Chu et al. 1999]

Una vez optimizados los distintos parámetros de nuestro sistema de medida[Vioque. 2002] como son la tensión de polarización, el grado de vacío de la cámara y la ganancia de amplificación, se realizó la medida de estas muestras patrón obteniendo una tabla de datos (tabla 2.1). En principio, un ajuste lineal describe perfectamente la respuesta de los espectrómetros alfa de nuestro laboratorio[García-Tenorio. 1983] y aún variando la distancia de las fuentes al detector en condiciones de vacío de 0,1 Torr, los máximos de los picos no sufren desplazamiento alguno en canales[Martinez-Aguirre. 1990] .

Si usamos la calibración en energías indicada, a la hora de obtener espectros de U (como se aprecia en la Figura 2.5 marcados en color verde), habría que extrapolar fuera de la zona de ajuste. Por este motivo, cuando se ha trabajado con espectros de U, lo que se ha hecho ha sido autocalibrar la correspondiente cámara, tomando como punto de partida la calibración inicial con Pu y Am.

En espectrometría alfa se trabaja con 1024 canales y dado que los espectros apenas presentan interferencias (incluso el fondo es ínfimo), la calibración en energía no tiene que ser tan exhaustiva como en espectrometría gamma.

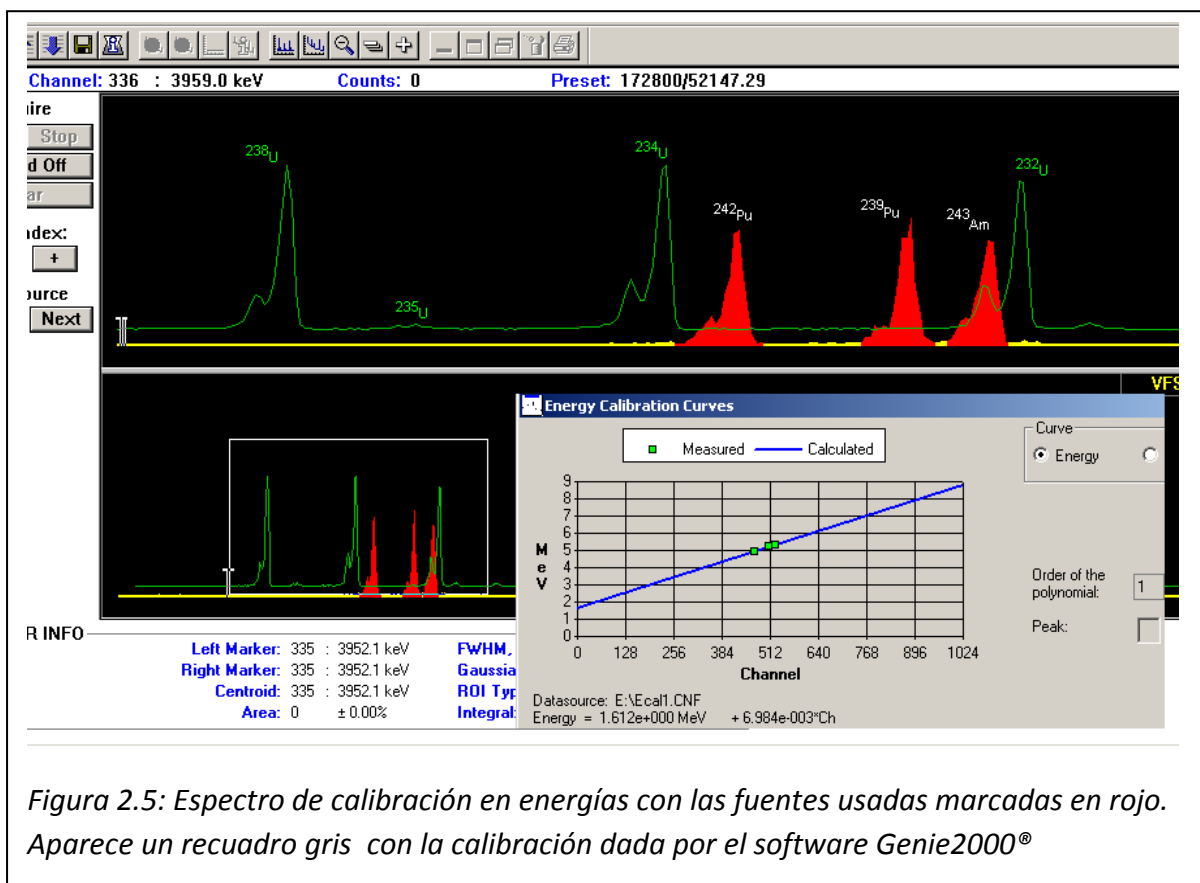


Figura 2.5: Espectro de calibración en energías con las fuentes usadas marcadas en rojo. Aparece un recuadro gris con la calibración dada por el software Genie2000®

Una vez realizada la calibración en energía ya podemos identificar los radionucleidos presentes en las muestras analizadas. Seleccionando la ROI correspondiente, tendremos para cada emisión el valor de N en la ecuación [2.1] y conocemos, pues están tabulados, también el valor de I. Para poder aplicar dicha ecuación, la siguiente calibración que tenemos que realizar es la relativa a la eficiencia ( $\epsilon$ ).

### 2.5.2 Calibración en eficiencia

Debido a la física de la interacción radiación-materia de las partículas alfa, se deriva que la eficiencia intrínseca (la del propio detector) de detección en los detectores semiconductores PIPS, no va a presentar una dependencia con la energía en los rangos energéticos en los que nos encontramos. El hecho de que en el detector interaccionan todas las partículas que le llegan, dejando toda su energía, hace que dicha eficiencia intrínseca pueda suponerse prácticamente del 100%. Ahora bien, para la determinación de la eficiencia de recuento hay otros factores que deben ser tenidos en cuenta:

- Geométricos, aunque si las medidas se realizan siempre en las mismas condiciones, tendremos una influencia de este factor constante para cada detector.
- Factores de autoabsorción en la muestra, que en el caso de muestras electrodepositadas sobre una plancheta pueden considerarse despreciables.

- Factor de absorción; entre la muestra y el detector, esto es, en la trayectoria, que también pueden considerarse despreciables si se realiza, como es el caso, el vacío suficiente en las cámaras de detección.

Así pues, el cálculo de la eficiencia de detección para espectrometría alfa esperamos que dependa, a priori, de la geometría muestra-detector.

Se ha procedido a realizar la calibración en eficiencias con una muestra de  $^{241}\text{Am}$  ( $\alpha_1 = 5,378 \text{ MeV}$  y  $\alpha_2 = 5,477 \text{ MeV}$ ) de actividad  $274,5 \pm 1,0 \text{ Bq}$  evaporada sobre una plancheta de acero inoxidable, situando ésta a diversas distancias del detector. Los resultados obtenidos son mostrados en la Figura 2.6. La eficiencia de recuento máxima, para la distancia mínima, vale en torno al 35 %. La eficiencia disminuye rápidamente al aumentar la distancia entre la fuente y el detector. Ahora bien, inmediatamente, antes de realizar las correspondientes medidas surge la siguiente pregunta ¿cuál es la distancia a la que se debe colocar la plancheta respecto del detector?

En primer lugar, y basándonos en los resultados mostrados en la Figura 2.6 podría parecer conveniente situar la muestra lo más cercana posible al detector para obtener la mayor eficiencia posible. No obstante hay que tener presente la influencia de la distancia en la resolución de los picos observados en el espectro ya que si acercamos demasiado la muestra, aumenta el ángulo sólido y la posible pérdida parcial de energía de las partículas alfa emitidas por la muestra al atravesar un mayor espesor de la ventana del detector, con lo que se ensanchan los picos. Además a distancias muy cercanas entre la muestra y el detector aumenta notablemente el riesgo de contaminación en el detector debido a la posible implantación en él de núcleos de retroceso. Así, la distancia escogida es consecuencia de un compromiso, habiendo quedado fijada en 5,5 mm.

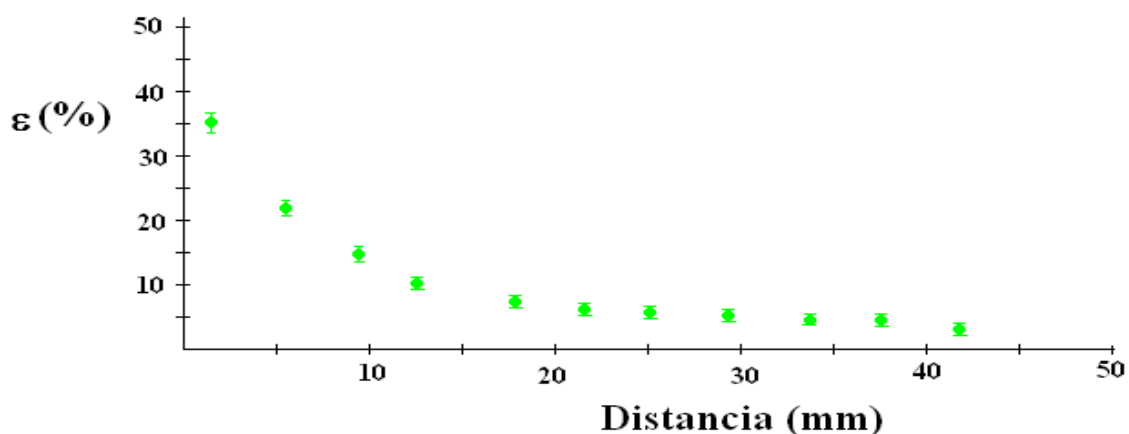


Figura 2.6: Variación experimental de la eficiencia con la distancia muestra-detector[Vioque. 2002]



Usando la ecuación [2.1] y despejando la eficiencia como incógnita, al conocerse la actividad de la muestra patrón de  $^{241}\text{Am}$ , se han determinado las eficiencias de cada una de las cámaras en la geometría de trabajo propuesta. Estas eficiencias, determinadas para una distancia muestra-detector de 5.5 mm se recopilan en la Tabla 2.2.

Cámara	1A	1B	2ª	2B	3A	3B	4A	4B
$\varepsilon(\%)$	18,3±1,1	23,0±1,3	20,8±1,2	21,9±1,2	21,2±1,2	23,4±1,3	19,4±1,2	22,2±1,3

Tabla 2.2: Resultados experimentales de eficiencias para las cámaras alfa.

Estos resultados se ha demostrado que se corresponden con la fracción de ángulo sólido subtendido por la muestra respecto del detector, comprobando así que prácticamente el 100% de las partículas que llegan al detector son detectadas. De esta forma se corrobora la suposición de que la eficiencia intrínseca de los detectores es del 100%, y la nula influencia de los factores de autoabsorción en la muestra y de absorción en la trayectoria de las partículas alfa entre muestra y detector [Vioque. 2002].

### 2.5.3 Rendimiento químico

Existe un tratamiento previo en las muestras que van a ser medidas por espectrometría alfa en el que se procede al aislamiento de los radionucleidos de interés y a su deposición en finas láminas por electrodeposición o autodeposición, para una apropiada medida al minimizar los efectos de autoabsorción. En estos procesos químicos, una fracción de la cantidad de radionucleido o radionucleidos presentes originalmente en la muestra pueden no llegar a encontrarse finalmente depositados en la plancheta. Tenemos que averiguar cómo determinar la fracción de la cantidad del radionucleido o radionucleidos de interés originalmente en la muestra analizada, que se encuentra finalmente en la plancheta que se va a medir. Es decir, debemos conocer el rendimiento químico.

Para determinar el valor de esta fracción, se añade a la muestra (antes de aplicar el proceso químico) una cantidad conocida de un trazador también emisor alfa que se comporte químicamente igual que el elemento que nos interesa, asegurándonos de que el isótopo añadido no se encuentre presente en ella. Así, cuando trabajemos en la determinación de los isótopos de U naturales, añadiremos una actividad conocida de  $^{232}\text{U}$  a la muestra, mientras que cuando queremos determinar  $^{210}\text{Po}$  usaremos el  $^{209}\text{Po}$  como trazador interno. Evidentemente, las energías de emisión de estos radionucleidos son tales que no interfieren con los ya existentes en la muestra (debido en parte, al poder de resolución de los detectores) (ver Tabla 2.3).

Radionucleido	E (keV)	I (%)		Trazador	E (keV)	I (%)
<sup>238</sup> U T <sub>1/2</sub> = 4,47 x 10 <sup>9</sup> años	4151 ± 5	20,9 ± 0,3	⇒	<sup>232</sup> U T <sub>1/2</sub> = 68,9 años	5263,36 ± 0,09	31,55 ± 0,02
	4198 ± 3	79,0 ± 0,3				
<sup>235</sup> U T <sub>1/2</sub> = 7,04 x 10 <sup>7</sup> años	4366,1 ± 0,2	17 ± 2				
	4397,8 ± 0,1	55 ± 3				
	4556 ± 0,2	4,2 ± 0,3				
<sup>234</sup> U T <sub>1/2</sub> = 2,44 x 10 <sup>5</sup> años	4596,4 ± 0,1	5,0 ± 0,5	5320,12 ± 0,01	68,15 ± 0,02		
	4722,4 ± 0,1	28,4 ± 0,9				
	4774,6 ± 0,1	71,4 ± 0,2				
<sup>210</sup> Po T <sub>1/2</sub> = 138,4 días	5304,38	100	⇒	<sup>209</sup> Po T <sub>1/2</sub> =102 años	4482	100

Tabla 2.3: Radionucleidos bajo estudio en este trabajo por espectrometría alfa y trazadores usados según el elemento.

Así, si nos centramos por ejemplo en el U, al conocer en cada muestra la actividad añadida para el <sup>232</sup>U (el trazador), conocer *I* (base de datos), la eficiencia de detección ( $\epsilon$ ) y poder determinar el valor de <sup>232</sup>U a partir del espectro medido de la plancheta analizada, podemos despejar de la ecuación [2.1] el valor de R que será idéntico para el resto de radionucleidos de uranio en la muestra, ya que las técnicas químicas no distinguen entre isótopos. Si hacemos lo mismo para el <sup>209</sup>Po como trazador, obtendríamos el rendimiento obtenido para dicho elemento.

#### 2.5.4 Determinación de la actividad por dilución isotópica

Ahora bien el uso de trazadores internos, permite adicionalmente determinar de una forma alternativa las actividades de los radionucleidos de interés sin utilizar el concepto de rendimiento químico. Este método es conocido como el método de dilución isotópica y se fundamenta en la determinación de la actividad del radionucleido problema a partir del cociente entre las cuentas determinadas en el espectro en la ROI del trazador y en la ROI del radionucleido que se va a determinar, suponiendo conocida la actividad añadida de trazador, tal y como se detalla en las ecuación 2.2.

$$\left. \begin{aligned} A_i(B_q) &= \frac{N_i}{t \cdot \varepsilon \cdot I_i \cdot R} \\ A_{traz}(B_q) &= \frac{N_{traz}}{t \cdot \varepsilon \cdot I_{traz} \cdot R} \end{aligned} \right\} \begin{array}{l} \xrightarrow{t \varepsilon R} \\ \text{Coinciden para} \\ \text{ambos} \end{array} A_i(B_q) = \frac{N_i \cdot I_{traz} \cdot A_{traz}}{I_i \cdot N_{traz}} \quad [2.2]$$

Obviamente en la ecuación anterior el subíndice “i” representa al elemento que queremos estudiar y el subíndice “traz” al trazador.

Usando la ecuación (2.2), el cálculo de la incertidumbre de la medida se simplifica y pasa a depender fundamentalmente de las incertidumbres en el número de cuentas en la ROI del trazador,  $N_{traz}$ , y en la ROI del radionucléido,  $N_i$ .

## 2.6 Límites de detección en espectrometría alfa

En nuestros trabajos se suelen medir muy bajas concentraciones de actividad de manera que, en algunos casos, resulta difícil diferenciar entre el número de cuentas con origen en una fuente radiactiva y el número de cuentas que procede de la radiación de fondo que llega al mismo tiempo al detector. Se utiliza el concepto de “Técnicas de medida de radiactividad de bajo fondo”, como una traducción técnica de la expresión inglesa “Low Level Counting” para indicar que las concentraciones de actividad son tan pequeñas que, a veces, se confunden con el fondo radiactivo.

Currie [Mantero. 2007] definió dos conceptos fundamentales relacionados con esta cuestión que fueron: el nivel crítico ( $L_C$ ) y el límite de detección ( $L_D$ ) (usado en análisis cualitativos), si bien después, otros autores definen un tercer límite (usado en análisis cuantitativos).

### 2.6.1 Límite Crítico y Límite de Detección

Partimos de un espectro de medida de una fuente radiactiva en el que hemos definido una serie de ROIs de interés, correspondientes a las diferentes emisiones alfa que se observan en el espectro. Supongamos que, a continuación, hacemos una medida de un espectro de fondo alfa durante un tiempo  $t_B$ .  $N_B$  representará el número de cuentas en una ROI de interés en el espectro de fondo que ha sido medido.

Procedemos a continuación a realizar la medida de una fuente radiactiva en la que se esperan muy bajas concentraciones de actividad. Consideremos que el espectro ha sido medido durante un tiempo  $t_T$ . Denotaremos por  $N_T$  el número de cuentas en una ROI de interés.

La primera hipótesis que se plantea será considerar una situación de medida en la que no hay “cuentas reales” netas. En esta situación cabe la posibilidad de que cometamos un error. Se define error de tipo I como aquél en el que hemos considerado actividad

en una muestra cuando realmente no la hay. La probabilidad de cometer un error de este tipo se define por  $\alpha$ .

$$\alpha = \int_{K_\alpha}^{\infty} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{\left(\frac{-x^2}{2}\right)} dx \quad [2.3]$$

Hemos de introducir un nuevo parámetro,  $K_\alpha$ , como el factor que define un nivel de confianza determinado en las medidas. Este valor se encuentra tabulado para distribuciones gaussianas. Podremos decir que: *“depende del nivel de confianza que queramos, estaremos cometiendo un error con probabilidad  $\alpha$  de considerar una medida como procedente de la muestra cuando realmente proviene del fondo”*. Si queremos que el nivel de confianza de nuestra medida sea del 95%,  $\alpha$  valdrá un 5% (pues el área bajo la gaussiana vale la unidad, de ahí que  $K_\alpha$  se denote en algunos textos como  $K_{1-\alpha}$ ), así que hay un 5% de probabilidad de que estemos cometiendo un error de tipo I. Bajo estas condiciones  $K_\alpha = 1.65$ . Si quisiéramos, por ejemplo, cometer tan sólo un 1% de error del tipo I (o sea un 99% de nivel de confianza)  $K_\alpha = 2.33$ .

En este momento se define: Umbral Crítico como el valor  $L_C$  tal que, con el 95% de confianza, un valor encontrado en la medida que esté por encima de él, se corresponderá realmente con cuentas provenientes de la muestra y no del fondo (sólo el 5% podrán ser debidas a fluctuaciones estadísticas del fondo). Dicho de otro modo, los contajes realizados por encima de  $L_C$  son significativamente diferentes de cero, con el 95% del nivel de confianza.

Siguiendo el modo de operar descrito por Hartwell[Hartwell, 1975] se llega a que:

$$L_C = K_\alpha \frac{\sqrt{N_B}}{t_B} \sqrt{\left(\frac{t_B}{t_T} + 1\right)} \quad [2.4]$$

Este límite establece un umbral del número de cuentas por unidad de tiempo que, cuando sea excedido por una muestra, indicará con una confianza del 95% en sentido estadístico, que se ha detectado actividad en nuestra medida.

Consideremos ahora el caso de una medida con una cierta probabilidad de cometer un error de tipo II, que consiste en considerar cuentas que realmente son de la muestra, como si fueran del fondo. Este error también se puede conseguir con un nivel de confianza determinado. Definiremos como  $K_\beta$  el valor que controla ese nivel de confianza en ensayos “de una cola”, y  $\beta$  representa la probabilidad de cometer un error de este tipo. Entonces:

$$\beta = \int_{-\infty}^{K_{\beta}} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{\left(-\frac{x^2}{2}\right)} dx \quad [2.5]$$

Si imponemos que  $\alpha=\beta=5\%$  (o sea, con un 95% de confianza) resulta que  $K_{\alpha} = K_{\beta} = K$  y se obtiene [Hartwell. 1975] la expresión correspondiente para el límite de detección:

$$L_D = \frac{1}{t_T} \left( K^2 + 2K \sqrt{N_B + \frac{N_B \cdot t_B}{t_T}} \right) \quad [2.6]$$

De aquí se desprende que toda muestra cuyo número de cuentas por unidad de tiempo supere  $L_D$  será detectada con un 95% de confianza en que no estamos cometiendo un error del tipo II. ( $K_{\beta}=1.65$ ).

Hemos introducido, pues, dos umbrales críticos que, en la práctica tienen una interpretación simple. Por una parte tenemos el Límite Crítico ( $L_C$ ), Se trata de un umbral del número de cuentas por unidad de tiempo tal que, cuando es excedido por una muestra, indicará (con la confianza deseada) la presencia de material radiactivo. Por otra parte tenemos el Límite de Detección ( $L_D$ ) que expresa numéricamente la “sensibilidad de un método” al establecer la cantidad mínima de material radiactivo que es cuantificable por dicho método. Currie llama al primero ( $L_C$ ) un límite “a posteriori” por ser establecido después de efectuar la medida, y al último ( $L_D$ ) un límite “a priori” establecido antes de haber realizado la medida.

Si en una medida se encuentra por encima del  $L_C$  pero por debajo del  $L_D$  se dirá que ha sido detectada la actividad de la muestra, pero no puede ser medida, dando como cota superior de esa actividad el valor de  $L_D$ .

### 2.6.2 Actividad Mínima Detectable

Una vez definido el concepto de límite de detección, señalamos el término que usaremos para dar los valores mínimos en las actividades detectables (MDA). No es más que la transformación de aquellos en unidades adecuadas como son el Bq/kg o el Bq/l de forma que al comparar con la actividad estimada en la muestra, sepamos si nuestro sistema de medida es o no adecuado.

Una definición del MDA para una medida por espectrometría alfa sería[Genie 2000]:

$$MDA = \frac{1}{I \cdot \varepsilon \cdot R_Q \cdot V \cdot C \cdot D \cdot t_T} \left( K^2 + 2K \sqrt{N_B + \frac{N_B \cdot t_B}{t_T}} \right) \quad [2.7]$$

Donde:

- I, se expresa en tanto por uno y recoge la probabilidad de emisión del radionúclido de interés (con valores cercanos al 100% en el caso de los emisores alfa).
- $\varepsilon$ , se expresa en tanto por uno y representa la eficiencia de recuento. Esta eficiencia será definida y tratada en capítulos posteriores.
- $t_T$ , se expresa en segundos y es el tiempo de medida de la muestra.
- $t_B$ , se expresa en segundos y es el tiempo de medida del fondo.
- V, representaría bien la masa en kg, bien el volumen en litros, en el caso de que quisiéramos un resultado del MDA por unidad de masa o volumen. De lo contrario se expresaría como la unidad.
- $R_Q$ = Rendimiento químico. En espectrometría alfa es un parámetro relevante, se expresa en tantos por uno. En espectrometría gamma, al no existir normalmente pretratamiento en las muestras, este factor suele valer la unidad.

En algunos casos particulares hay que introducir factores de corrección en el denominador de la expresión (2.7):

- C= factor de corrección por decaimiento del radionucleido desde que se obtiene la muestra hasta que es medido. Se estima en  $e^{\left(-\frac{t_d \ln 2}{T_{1/2}}\right)}$  donde  $t_d$  es ese tiempo transcurrido,  $T_{1/2}$  es el período de semidesintegración del radionúclido, e irá en las mismas unidades que  $t_d$ .
- D, factores de conversión de masas o volúmenes como procesos de dilución de muestra, o de secado de material,.....

## 2.7 Necesidad de la medida del $^{210}\text{Pb}$

Aunque el objetivo fundamental de esta tesis requiere de la medida de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en diferentes tipos de muestras (dieta, alimentos de origen marino, orina humana), la influencia que puede tener en esos resultados la presencia de su progenitor, el  $^{210}\text{Pb}$ , se estudia en algunos casos.

El  $^{210}\text{Pb}$  y el  $^{210}\text{Po}$  pertenecen a la cadena de desintegración del  $^{238}\text{U}$ . Al contrario que lo que sucede para el  $^{210}\text{Po}$  (emisor alfa), la desintegración natural del  $^{210}\text{Pb}$  tiene lugar mediante la emisión de una partícula beta acompañada por la emisión de un fotón

gamma de 46,54 keV, que puede ser detectado por espectrometría gamma. En la Tabla 2.4 se resumen las propiedades más importantes del  $^{210}\text{Pb}$  como emisor gamma.

Radionucléido	Periodo de semidesintegración ( $T_{1/2}$ )	Energía de emisión (keV)	Intensidad de emisión (%)
$^{210}\text{Pb}$	$22,3 \pm 0,2$ años	$46,539 \pm 0,001$	$4,25 \pm 0,04$

Tabla 2.4: Datos relativos al radionucleido de interés [Chu et al. 1999]

El origen del  $^{210}\text{Pb}$  en la naturaleza está en la litosfera, donde se produce la emanación del gas radón, que es el progenitor del  $^{210}\text{Pb}$  en la cadena de desintegración del uranio. Desde la atmósfera el  $^{210}\text{Pb}$  se distribuye sobre la superficie terrestre entrando en los diferentes compartimentos naturales (hidrosfera, biosfera, cadena trófica, etc.).

Por otra parte, una segunda fracción de  $^{210}\text{Pb}$  puede proceder directamente del  $^{238}\text{U}$  en compartimentos que han permanecido aislados mucho tiempo (como en sistemas geológicos). Si los sistemas geológicos tienen una evolución rápida, de unos 200 años, como es el caso de sedimentos lacustres, el radioisótopo que regula la concentración de actividad de  $^{210}\text{Pb}$  en el sustrato es el  $^{226}\text{Ra}$ .

### 2.7.1 Cálculo de la actividad del $^{210}\text{Pb}$ a partir de $^{210}\text{Po}$

Mediante espectrometría alfa, como se ha visto en el apartado anterior, podremos obtener la actividad de  $^{210}\text{Po}$ . A partir de ésta, y bajo determinadas condiciones, también se podrá inferir la actividad de  $^{210}\text{Pb}$ , suponiendo que ambos estén en *equilibrio secular*. A continuación describimos en detalle las condiciones necesarias para poder aplicar esa aproximación cuyo corolario principal sería que: “ambos emisores (padre e hijo) tendrán la misma actividad”.

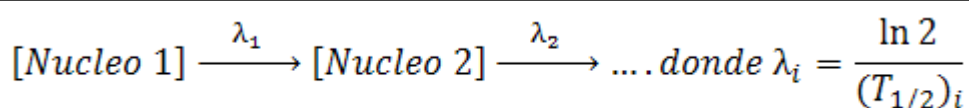


Figura 2.7: Esquema de decaimiento de dos núcleos (padre-hijo) caracterizados cada uno por su período de semidesintegración ( $T_{1/2}$ )

Supongamos una serie radiactiva con dos núcleos (padre e hijo) tal y como indica la Figura 2.7. Lo que queremos saber es qué número de átomos de cada elemento tendremos en cada instante  $N_i(t)$ .

Las ecuaciones que gobiernan este sistema vienen dadas por [2.8]. Donde  $N_i(t)$  es el número de átomos del radionucleido “i-ésimo” en el instante  $t$ , y  $\lambda_i$  su densidad de probabilidad de desintegración por unidad de tiempo (relacionada inversamente con su período de semidesintegración).

$$\begin{aligned} \frac{dN_1(t)}{dt} &= -\lambda_1 N_1(t) \\ \frac{dN_2(t)}{dt} &= \lambda_1 N_1(t) - \lambda_2 N_2(t) \end{aligned} \quad [2.8]$$

Para resolver esas ecuaciones diferenciales necesitaremos unas condiciones de contorno. En nuestro caso, para el instante  $t = 0$  impondremos que no exista ningún núcleo hijo,  $N_2(0)=0$ .

Tras resolverlo, las soluciones adoptan la forma dada por [2.9]

$$\begin{aligned} N_1(t) &= N_1(0) \cdot e^{-\lambda_1 t} \\ N_2(t) &= N_1(0) \cdot \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}) \end{aligned} \quad [2.9]$$

Examinando dichas expresiones, vemos que si se cumple la condición de que

$$(\lambda_2 - \lambda_1) \cdot t \gg 1, \quad [2.10]$$

se podría despreciar el término exponencial de  $N_2(t)$  en [2.9] quedando entonces como:

$$N_2(t) = N_1(0) \cdot \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad [2.11]$$

Y como la actividad es proporcional al número de átomos de la forma: la expresión [2.11] quedaría como:

$$\frac{A_2(t)}{A_1(t)} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad [2.12]$$

Si  $\lambda_2 \gg \lambda_1$ , es decir, el núcleo hijo tiene una probabilidad de desintegración mucho mayor que la del padre ( o lo que es lo mismo, la semivida del padre mucho mayor que la del hijo  $[T_{1/2}]_1 \gg [T_{1/2}]_2$  ), el cociente anterior se hace  $\approx 1$  manteniéndose así indefinidamente y dando lugar a lo que se conoce como equilibrio secular.

Si en la cadena en vez de considerar padre e hijo, considerásemos también la segunda generación (nietos), se obtienen ecuaciones análogas cuyas condiciones de equilibrio secular vendrán dadas por:



- El periodo de semidesintegración del padre sea mucho mayor que el del hijo y nieto

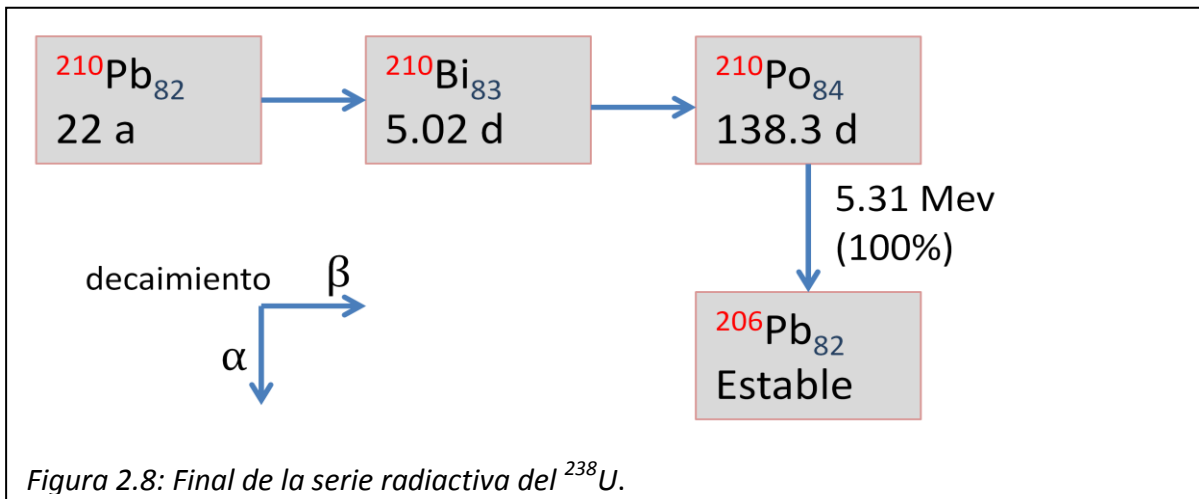
$$[T_{1/2}]_1 \gg [T_{1/2}]_2, [T_{1/2}]_3 \quad [2.13]$$

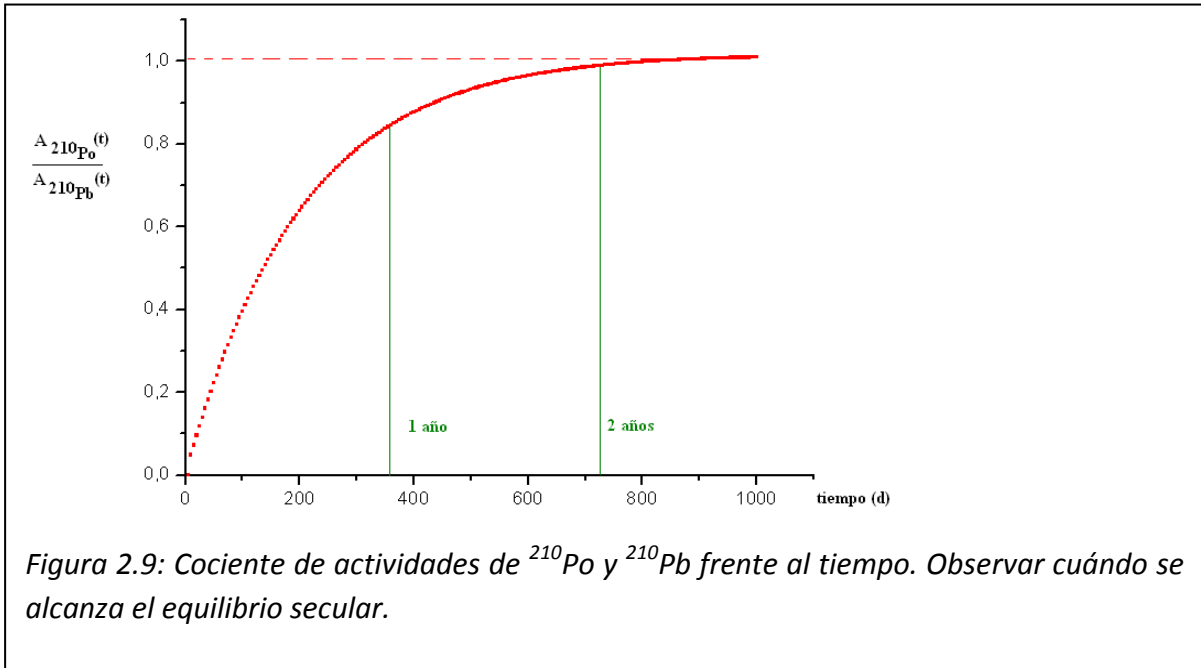
- El tiempo transcurrido (t) sea también varias veces mayor que los periodos de semidesintegración de la descendencia.

$$t \gg [T_{1/2}]_2, [T_{1/2}]_3 \quad [2.14]$$

En general, la condición de equilibrio secular se cumple cuando han transcurrido como mínimo 5 períodos de semidesintegración de la descendencia. Y entonces:

$$A_1(\text{Bq}) \sim A_2(\text{Bq}) \sim A_3(\text{Bq}) \quad [2.15]$$



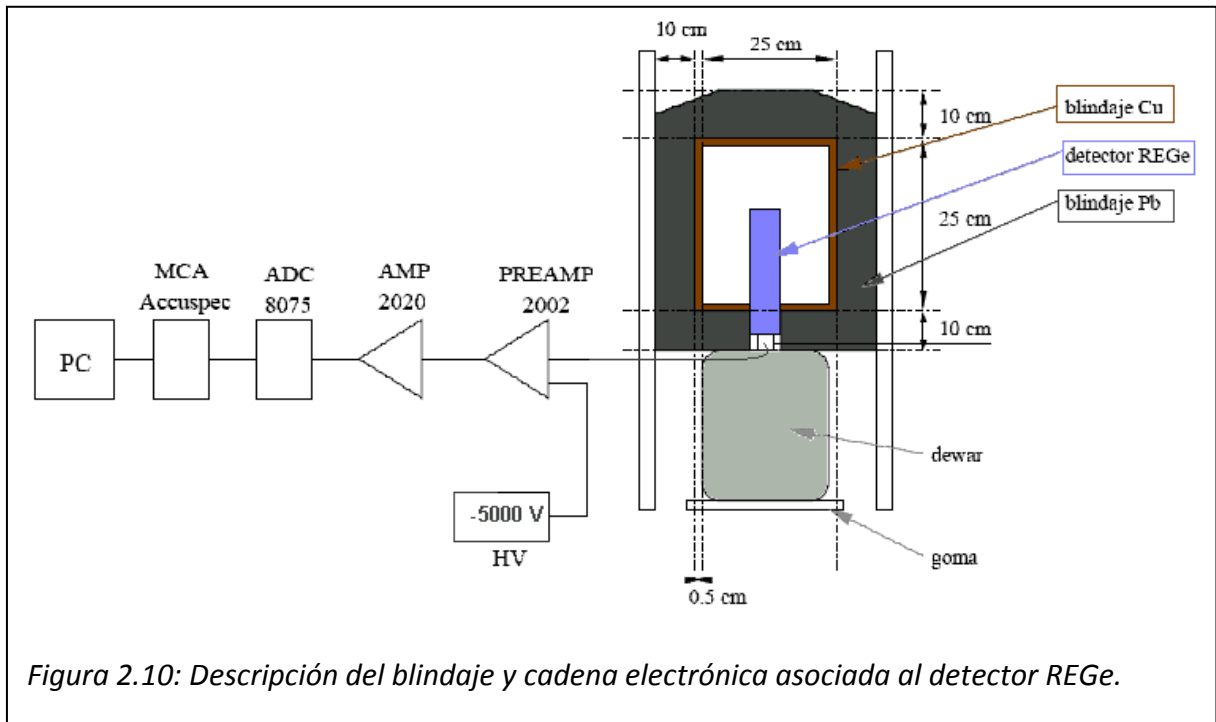


Si observamos la parte inferior de la serie del  $^{238}\text{U}$  que nos interesa (Figura 2.8). El  $^{210}\text{Pb}$  decae vía  $^{210}\text{Bi}$  hasta  $^{210}\text{Po}$ . El padre posee un periodo de semidesintegración de 22 años, muy superior al de su descendencia, tanto del  $^{210}\text{Bi}$  como del  $^{210}\text{Po}$ , por lo que la condición [2.13] ya se está cumpliendo.

Para que se cumpla la condición [2.14] habrá que esperar que pasen varios periodos de semidesintegración en la descendencia, y el que marca la pauta en este sentido es el  $^{210}\text{Po}$  (por ser el de mayor periodo de semidesintegración). En la Figura 2.9 se ha representado la evolución temporal de la actividad del  $^{210}\text{Po}$  en función del tiempo y se puede observar que, pasado un año, se tiene el 84% de la actividad del padre, y pasados dos años, el 99%. Así pues, tras 2 años aproximadamente, ya ha transcurrido el tiempo necesario para considerar que estamos en situación de equilibrio secular en esa cadena, pudiendo aplicar la expresión [2.15].

Este hecho será utilizado en la cuantificación del  $^{210}\text{Pb}$ , asumiendo equilibrio secular entre el padre ( $^{210}\text{Pb}$ ) y el hijo ( $^{210}\text{Po}$ ) cuando el tiempo transcurrido antes de medir las muestras así lo garantice.

## 2.8 Medida de $^{210}\text{Pb}$ por espectrometría gamma: detector REGe



Para la determinación de las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Pb}$  por espectrometría gamma hemos utilizado un detector (denominado REGe, acrónimo de Reverse Electrode Germanium) que presenta la geometría típica de un detector coaxial pero con una importante diferencia, los electrodos están dispuestos de forma contraria a un detector coaxial convencional. El electrodo positivo (de Boro implantado) está en el exterior del cristal de Ge y el negativo (de Litio difundido) en el interior, lo que le confiere una clasificación como detector de tipo n. Para minimizar la deposición de contaminación y aislarlo térmicamente, es necesario realizar un alto vacío en el interior de la carcasa del detector. Tiene una ventana que está fabricada en Be ( $Z=4$ ), y posee un espesor muy pequeño (0,5 mm), lo que minimiza la atenuación de los fotones al atravesarla. El equipo tiene un blindaje pasivo habitual para disminuir la radiación de fondo que llega al detector y una cadena electrónica convencional para el tratamiento de la señal eléctrica originada por la detección de un fotón gamma.

La puesta a punto del equipo para ponerlo en condiciones de medida se realizó en el marco de otro trabajo de investigación y fue realizado por otros investigadores de nuestro equipo de investigación [Mantero, 2013] que nosotros hemos aprovechado para la realización de las medidas correspondientes, jugando un simple papel de usuarios del sistema de espectrometría gamma. Por ello nos remitimos a la referencia [Mantero, 2013] para encontrar una detallada descripción de la puesta a punto del equipo de medida REGe.

### 3. METODOLOGÍA

En este capítulo se va a llevar a cabo la descripción de la metodología experimental empleada en este trabajo tanto en la determinación de las actividades de los isótopos naturales de U y  $^{210}\text{Po}$  por espectrometría alfa, como las de  $^{210}\text{Pb}$  por espectrometría gamma, en las distintas matrices naturales estudiadas.

En lo que podría ser un primer bloque dedicado a muestras que se encuentran en la cadena de consumo humano, se va a trabajar con muestras representativas de nuestra dieta, distintos alimentos y aguas minerales. En un segundo bloque, las matrices de trabajo son muestras de orina y pelo.

Como ya se explicó en el capítulo anterior, la forma en que la radiación interactúa con la materia implicará que, en medidas por espectrometría alfa sea necesario un procedimiento radioquímico previo en las muestras, que será inexistente en el caso de la espectrometría gamma donde las muestras se miden directamente tras garantizar unas condiciones geométricas reproducibles. Por el contrario, debido precisamente a ese tratamiento a que son sometidas las muestras, los espectros alfa estarán libres de interferencias y será relativamente fácil trabajar con ellos, cosa que no ocurrirá con los espectros gamma mucho más complejos de analizar. Además, en cuanto a límites de detección se refiere, los extraordinariamente bajos niveles de fondo en el espectro alfa supondrán AMD inferiores, hasta en dos órdenes de magnitud, respecto a las medidas por espectrometría gamma.

El proceso experimental, que se inicia con la toma de muestras y concluye con la muestra lista para entrar a medir en los sistemas espectrométricos alfa, se puede ordenar en los siguientes pasos:

- a) recogida y preservación de la muestra.
- b) pretratamiento, consistente en poner en disolución los elementos que componen la muestra.
- c) separación, en la que se aíslan los elementos de interés.
- d) preparación de fuentes de medida.

Este capítulo seguirá este mismo esquema donde se tendrá en cuenta cada una de las distintas matrices con las que se va a trabajar. Si bien, al final del capítulo habrá un apartado en el que se describa con más detalle el proceso de autodeposición del polonio, ya que se ha llevado a cabo un estudio para la optimización de dicha etapa.

### **3.1 Recogida de muestras**

En estudios de radiactividad ambiental es muy importante asegurarse, dentro de las limitaciones que existen, que la muestra que vayamos a analizar sea lo más representativa posible. Los resultados analíticos se pueden ver afectados en gran medida en este paso, por eso es de suma importancia el poner especial interés en ello y a su vez tenerlo en cuenta a la hora del análisis de los resultados. Los resultados de los análisis radiométricos no serán representativos si las muestras no lo son.

En función del radionucléido que se va a estudiar, la actividad esperada de la muestra, de la matriz y de los niveles esperables de radiactividad, las cantidades requeridas de la misma variarán, así como la cantidad de trazador que se va a adicionar. Además, al trabajar con muestras reales, lo primero que ha de asegurarse es la homogeneidad de la muestra para que ésta sea lo más representativa posible.

A continuación se detallarán cómo se llevó a cabo la obtención de los distintos tipos de muestras, describiendo las características y peculiaridades de los distintos procedimientos en función de la matriz de las mismas. En nuestro caso cuatro fueron los grupos de muestras: agua mineral, dieta tipo, alimentos varios y orina y cabello.

#### **3.1.1 Muestras de agua mineral**

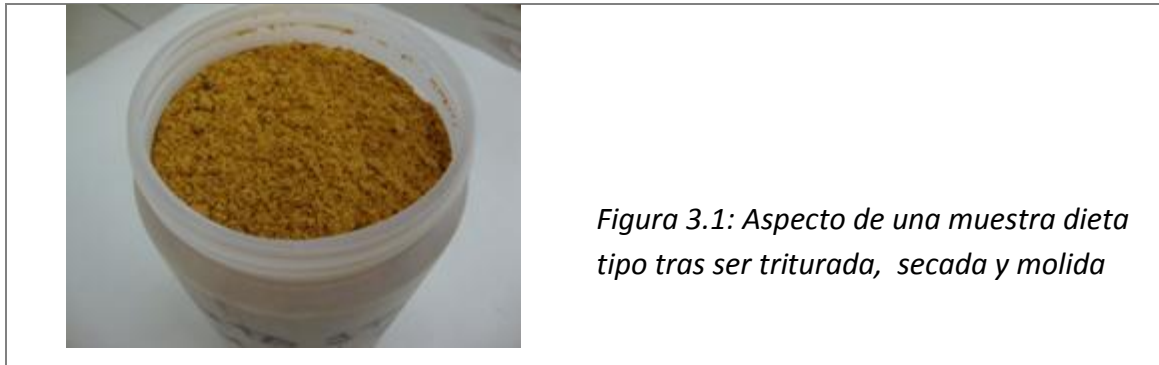
La obtención de muestras de agua mineral se ha realizado a través de botellas de las distintas marcas comerciales de distintos orígenes, pero en su gran mayoría de procedencia de distintas regiones españolas, y por tanto con diferencias en sus componentes mayoritarios, en sus oligoelementos, así como en sus propiedades físicas. Estas muestras se deben preservar en un lugar fresco y evitando la luz. Todas han sido adquiridas en centros de alimentación. Adicionalmente, se han recogido dos muestras, para dos marcas distintas, con una diferencia de 4 meses entre ellas, con objeto de hacer un estudio temporal de las mismas.

#### **3.1.2 Muestras de dieta tipo**

Las muestras para el estudio de la dieta tipo se han recogido en un restaurante, una vez al trimestre. Cada muestra se compone de varios platos preparados y bebidas que figuran en el menú del día, y que representan lo que puede ingerir una persona de lunes a viernes. La masa bruta obtenida en origen es aproximadamente de unos 7 kg de muestra, donde se incluirá carne, pescado, verdura, fruta, cereales y lácteos, entre otros.

De inmediato, se pasa a la homogenización de la muestra mediante trituración y mezcla de todos los alimentos obtenidos. La pasta resultante se deja secar en la estufa a unos 50 °C durante una semana, hasta su completa desecación. Entonces, la muestra se muele con un molinillo de cuchilla modelo IKA-M20, y se envasa en un contenedor

cilíndrico de cierre hermético (Figura 3.1), quedando así la muestra a la espera para su posterior tratamiento radioquímico.



### 3.1.3 Muestras de alimentos

Dentro del conjunto de muestras de alimentos hay que hacer una agrupación en función de los distintos tipos que han sido seleccionados para su análisis. Los distintos productos han sido adquiridos en varios comercios y, en función del alimento y de su forma habitual de consumo, se ha procedido a su cocción o no.

La clasificación que se ha llevado a se describe en la Tabla 3.1.

Tipo	Alimento	¿Cocinado?	Forma de cocción
<b>Productos cárnicos y derivados</b>	Huevos	Si	Hervido
	Pollo	Si	Asado
	Cerdo	Si	Asado
	Vacuno	Si	Asado
<b>Productos marinos</b>	Pescado	Si	Asado
	Mariscos	Si	Hervido y asado
	Conservas	No	
<b>Lácteos</b>	Leche y yogures	No	
<b>Cereales y legumbres</b>	Pasta	Si	Hervido
	Pan	No	
	Lentejas	Si	Hervido

*Tabla 3.1: Clasificación de los distintos productos alimenticios analizados*

Tipo	Alimento	¿Cocinado?	Forma de cocción
<b>Frutas y hortalizas</b>	Manzana	No	
	Patata	Si	Hervido
	Endibia	No	
	Espinacas	No	
	Acelgas	No	
	Lechuga	No	
	Escarola	No	
	Canónigos	No	
	Brócoli	No	
	Cogollos	No	
<b>Vino</b>	Vino tinto	No	

Tabla 3.1: Clasificación de los distintos productos alimenticios analizados.

Una vez que el producto está listo para su consumo, bien sea tras su cocción o no, se deja secar en la estufa a unos 50 °C durante una semana, hasta su completa desecación. Entonces, la muestra se muele con un molinillo de cuchilla modelo IKA-M20, y se envasa en un contenedor cilíndrico de cierre hermético, quedando así la muestra a la espera para su posterior tratamiento radioquímico.

### 3.1.4 Muestras de tabaco

Se adquirieron en un estanco un par de cajetillas de tabaco de una misma marca comercial.

Para proceder a la toma de muestras, se dispuso un sistema de filtrado para hacer pasar el humo de un cigarro encendido a través de un filtro milipore de tamaño de poro de 45µm. Este filtro se saturaba al paso del segundo cigarro por lo que, para una cajetilla de 20 cigarros, se usó un filtro por cigarro, los filtros limpios tenían un peso entre 0,0772 y 0,0778 g. Además tomamos muestras recogiendo el tabaco del cigarro, tal como venía en la cajetilla. Se recogieron estos dos tipos de muestras para ver cuánto de lo que realmente lleva el tabaco no es retenido por los filtros que el cigarrillo tiene.

### 3.1.5 Muestras de orina

En lo referente a las muestras de orina, han sido obtenidas de 5 individuos, de ellos 4 hombres y una mujer, de edades comprendidas entre los 27 y 55 años. Las muestras

eran colectadas a primera hora de la mañana, en recipientes limpios y con cierre hermético, y eran trasladadas al laboratorio en las siguientes horas. Para su mejor preservación, se conservaban en frío hasta el comienzo de su tratamiento radioquímico.

### **3.1.6 Muestras de pelo**

Dentro de este conjunto de muestras, hay que distinguir entre dos tipos. Pelos del cuero cabelludo y pelos de la barba. Ambos tipos de muestras se han obtenido del mismo individuo. La obtención de los dos tipos de muestras se llevaba a cabo de forma diferente. En el caso del cabello, se tomaba una muestra cuya longitud se aproximaba al centímetro no llegando al ras del cuero cabelludo, sino que se quedaba una longitud de aproximadamente medio centímetro hasta llegar a él. En las muestras de barba la longitud obtenida era de aproximadamente medio centímetro, y se llevaba a cabo la rasuración de la zona, por lo cual sí se obtenía todo el pelo que estaba expuesto en superficie. Tras la obtención de la muestra, ésta se guardaba en una bolsa de cierre hermético hasta su análisis.

## **3.2 Pretatamiento de muestras**

La determinación de radionucléidos emisores gamma, como ya se señaló anteriormente, no suelen necesitar un proceso de separación y aislamiento de la matriz en la que se encuentran. Así pues, las muestras de productos marinos que se han medido mediante esta técnica no han requerido de este paso, si bien las muestras han tenido que adaptarse a una geometría de medida conocida. Antes de su medida, las muestras, convenientemente selladas, se han almacenado un tiempo de espera de unas semanas para garantizar el equilibrio secular en las series radiactivas y, a continuación, poder llevar a cabo la medida de  $^{210}\text{Pb}$ .

En cuanto a la medida de actividad de los otros isótopos radiactivos de interés ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$  y  $^{210}\text{Po}$ ), mediante la técnica de espectrometría alfa, será necesaria la aplicación de un proceso radioquímico que será específico para cada tipo de matriz. Estos procesos se deben aplicar fundamentalmente por dos razones: la primera, que las partículas alfa tienen muy poco poder de penetración, lo que provoca que tengamos que conseguir la deposición de los emisores alfa sobre finas capas para evitar la autoabsorción; y la segunda, se debe generalmente, a que las muestras naturales contienen otros radionucléidos que emiten partículas alfa con energías próximas a las energías de emisión de los radionucléidos de interés y que podrían interferir en la medida, así pues, debemos aislar químicamente al elemento de estudio de esos otros emisores.

Para poder extraer y aislar los elementos, previamente debemos acondicionar la muestra. Este acondicionamiento va a ser distinto en función de la matriz de partida.

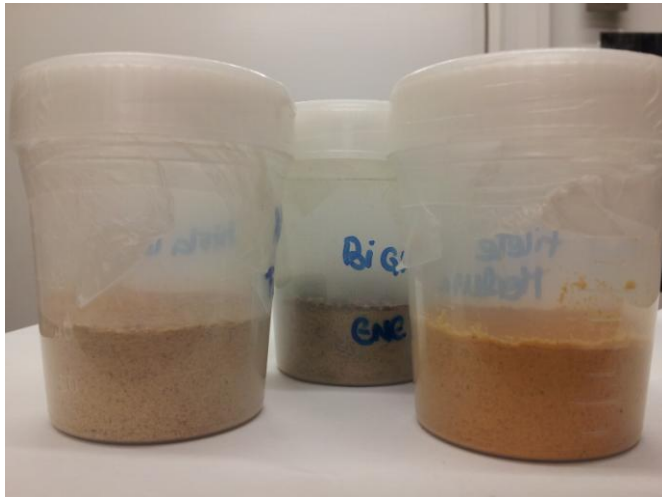


En nuestro caso vamos a hacer una distinción entre muestras sólidas (para muestras de dieta tipo, alimentos varios y pelo) y muestras líquidas (para muestras de agua mineral, vino y orina).

### **3.2.1 Pretratamiento de las muestras para espectrometría gamma**

Tal y como se ha comentado previamente, esta técnica sólo se va a emplear para algunas muestras de productos marinos sin que sea necesario un tratamiento radioquímico previo a su medida.

Una vez que se ha hecho el tratamiento previo de la muestra, es decir su cocción, secado y homogenización, cada muestra se envasa en un recipiente de geometría conocida, el cual se etiqueta con la fecha de envasado y el nombre de la muestra y se cierra herméticamente. Con el fin de garantizarnos el equilibrio secular, la muestra queda a la espera de ser medida unos días tras su preparación. En la Figura 3.2 se presentan varias muestras preparadas para su medida por espectrometría gamma.



*Figura 3.2: Aspecto de varias muestras de productos marinos listas para entrar a medir*

### **3.2.2 Pretratamiento de las muestras para espectrometría alfa**

Esta etapa tiene como objetivo la puesta en disolución de los radionucleidos de interés, que suelen ir acompañados de otros radionucleidos que posteriormente han de ser eliminados.

#### **3.2.2.1 Muestras líquidas**

Se trata de muestras de agua mineral y vino. El caso de las muestras de orina se tratará más adelante de manera independiente.

En las muestras de agua debemos evitar el crecimiento biológico. Este problema no lo tenemos en el caso de las muestras de agua minerales, las cuales se encuentran en un

estado óptimo para su ingesta y al adquirirse se encuentran en envases que nos garantizan dicho estado. Al ser muestras líquidas, los radionucleidos se encuentran ya disueltos. Una vez que se vaya a comenzar el tratamiento radioquímico para su posterior análisis, se toma un volumen de muestra adecuado, se le añaden los trazadores (nosotros emplearemos  $^{209}\text{Po}$  y  $^{232}\text{U}$ ) y se pondrá la muestra en agitación un tiempo con el fin de asegurarnos la distribución homogénea de éstos.

### 3.2.2.2 Muestras sólidas

Comenzamos tomando una cantidad adecuada de muestra que ha tenido un tratamiento previo descrito en los apartados 3.1.2, 3.1.3, 3.1.4 y 3.1.6 atendiendo al tipo de matriz que analicemos. Esta cantidad se toma en función de la actividad estimada a priori. Posteriormente se traza, como ya hemos comentado anteriormente, para determinar el rendimiento químico. Tras esa etapa, iniciamos un proceso de digestión.

La digestión va a tener como objetivos fundamentales: poner en disolución los radionucleidos existentes en la matriz; y destruir la materia orgánica. Esto último se logra normalmente en los pretratamientos habituales de las muestras mediante la calcinación de las mismas, pero no debemos olvidar que en nuestro estudio tenemos como fin el análisis del  $^{210}\text{Po}$ , y este elemento es volátil a partir de los 105 °C por lo que estamos limitados en este sentido.

Existen varios métodos para la digestión de muestras orgánicas sólidas, y entre ellos nosotros hemos estudiado sin éxito la posibilidad de aplicar una digestión ácida en abierto. Como alternativa, hemos podido poner a punto un método de digestión mediante microondas para los distintos tipos de muestras sólidas analizadas en este trabajo.

#### 3.2.2.2.1 Digestión ácida en abierto

El método convencional de digestión, o digestión en abierto, comprende el tratamiento de la muestra con  $\text{H}_2\text{O}_2$  y  $\text{HNO}_3$ , tal y como se describe detalladamente en la Tabla 3.2.

El problema que nos encontramos con este método es que no es capaz de digerir del todo la muestra en el caso de dietas y alimentos varios. Tengamos en cuenta que estamos tratando con muestras que contienen normalmente una cantidad considerable de lípidos y al finalizar este proceso se ha encontrado en alguna muestra una capa oleosa difícil de eliminar, que imposibilita el proceso de precipitación de actínidos necesario de llevar a cabo tras la digestión. Además supone el empleo de mayor tiempo en esta etapa.

Este procedimiento está bien establecido para muestras orgánicas que han sufrido calcinación. Como en este trabajo no se podía aplicar dicha calcinación, creemos que

aquí radica el que este procedimiento no haya sido válido en nuestro caso de trabajo particular. Sin embargo, este problema se ha resuelto con la puesta a punto de un método alternativo basado en el uso de un sistema digestor microondas.

FASE	DESCRIPCIÓN
<b>Toma de muestra</b>	Se toman entre 1 y 4 g.
<b>Trazado</b>	Se añade una cantidad conocida de $^{209}\text{Po}$ y $^{232}\text{U}$ . $^{209}\text{Po} = 173 \pm 5 \text{ mBq/g}$ $^{232}\text{U} = 118 \pm 6 \text{ mBq/g}$
<b>Inicio de la digestión</b>	Se añaden 50 ml de $\text{HNO}_3$ 8M y se deja en agitación mínimo 4 horas a unos 50 °C.
<b><math>\text{HNO}_3</math> 8M + <math>\text{H}_2\text{O}_2</math></b>	Se aumenta la temperatura a unos 80 °C y esperamos que la evaporación nos deje un volumen de unos 30 ml. Después de esto, se le añade gota a gota, 5 ml de $\text{H}_2\text{O}_2$ . Cuando la efervescencia cesa, se le añaden 10 ml de $\text{HNO}_3$ 8M, y se espera de nuevo a que el volumen llegue a 30 ml para repetir el proceso hasta un total de 3 veces.
<b>Fin de la digestión</b>	Tras evaporarse la disolución por tercera vez hasta 30 ml, se agregan 20 ml de $\text{HNO}_3$ 8M, y dejamos en agitación unas 12 horas a temperatura ambiente.
<b>Filtrado y evaporación</b>	La solución se filtra con un filtro sin cenizas cuyo tamaño de poro es de 45 $\mu\text{m}$ y posteriormente se deja evaporar hasta un volumen de 10 ml para luego completar con agua destilada hasta los 50 ml.

Tabla 3.2: Procedimiento para la digestión ácida de muestras orgánicas

### 3.2.2.2.2 Digestión con horno microondas

En nuestro laboratorio disponemos de un sistema digestor Anton Paar. En concreto, un horno microondas modelo Multiwave 3000, equipado con un rotor de 8 vasos XF100. Se trata de unos vasos capaces de trabajar a una presión controlada de 60 bar y soportar temperaturas de hasta 260 °C. Al trabajar en vasos con presión controlada, ningún gas o elemento volátil escapa del vaso durante el proceso de digestión, por lo que evitaríamos la pérdida de  $^{210}\text{Po}$  a la par que sí estamos llevando a cabo una digestión de la muestra. Los vasos están fabricados en teflón y van embutidos en una camisa de cerámica que aporta rigidez al conjunto. Una fotografía de los viales y del rotor aparece en la Figura 3.3.

En este método de digestión se toman entre 1,8 y 6,4 gramos de muestra, en función del tipo de matriz que se va a tratar, repartidos entre los 8 vasos que porta el rotor. La muestra es trazada en estos vasos, y se añaden a continuación los diferentes ácidos

que participarán de la digestión. Después, las celdas se cierran herméticamente y se introducen en el horno microondas, programando una secuencia específica para muestras orgánicas siguiendo un protocolo indicado por el fabricante del equipo. Este proceso se describe en detalle en la Tabla 3.3.

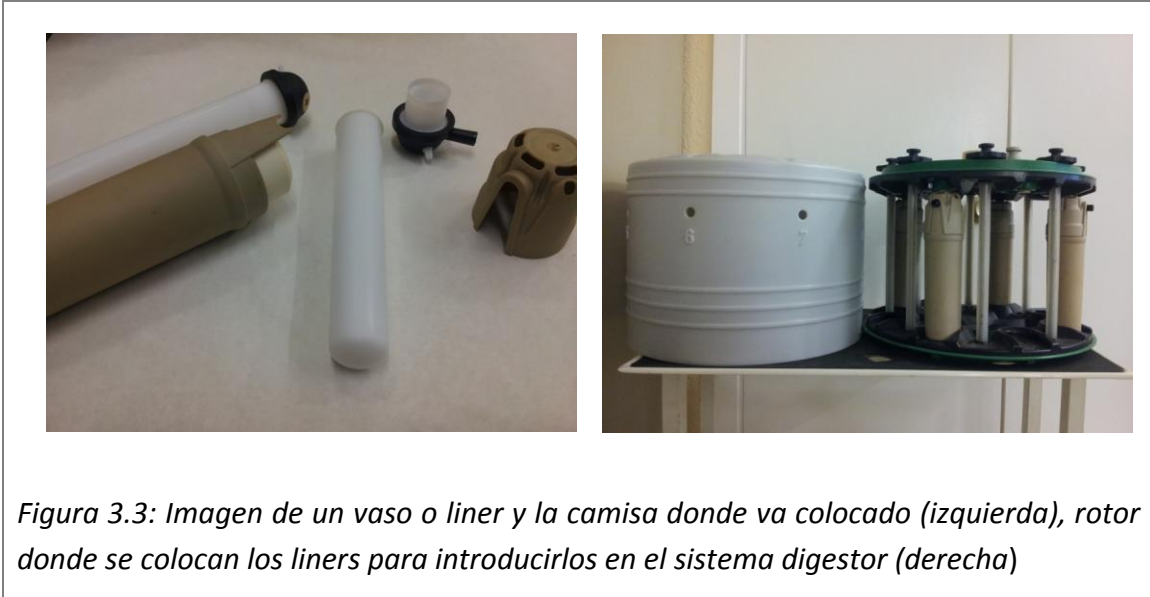


Figura 3.3: Imagen de un vaso o liner y la camisa donde va colocado (izquierda), rotor donde se colocan los liners para introducirlos en el sistema digestor (derecha)

FASE	DESCRIPCIÓN
<b>Toma de muestra</b>	Se toman entre 300-800 mg de muestra por cada vaso del rotor.
<b>Trazado</b>	Se añade una cantidad conocida de $^{209}\text{Po}$ y $^{232}\text{U}$ .
<b>Adición de reactivos</b>	Se añaden los siguientes reactivos en cada vaso: $\text{HNO}_3$ $\text{H}_2\text{O}_2$ $\text{HCl}$ $\text{H}_2\text{SO}_4$ Los volúmenes van a ser variables dependiendo del tipo de muestra, como se detallará posteriormente
<b>Inicio de la digestión</b>	Se cierran herméticamente las celdas y se programa el microondas a una potencia de 800W durante 20 minutos con una rampa de 10 minutos.
<b>Fin de la digestión</b>	Una vez finalizado el proceso se dejan enfriar los vasos y el contenido se vierte en un vaso de cristal que se deja evaporar hasta llegar a los 10 mL. Una vez llegada a esa cantidad se completa hasta llegar a los 50 mL con agua destilada.

Tabla 3.3: Procedimiento de digestión con horno microondas para muestras sólidas

Tras llevar a cabo este protocolo con las muestras orgánicas y ver los primeros resultados en el proceso de digestión, enumeramos una serie de ventajas que presenta este equipo:

- 1) No se pierden elementos volátiles durante el proceso de digestión.
- 2) Es un equipo que permite fácilmente su control y automatización para cada tipo de muestra, reaccionando automáticamente durante el proceso de digestión si fuese necesario para que no se produzcan sobrepresiones o aumentos bruscos de temperatura (reacciones espontáneas en la muestra).
- 3) El tiempo empleado para hacer la digestión es mucho menor que el necesario para la digestión ácida en abierto.
- 4) Se consigue una completa digestión de la muestra, quedando totalmente en disolución el radionucleido de interés.

En contrapartida, también posee una serie de inconvenientes de entre los que destacamos:

- 1) Estamos limitados a entre 1,8 y 6,4 g de muestra por tanda, con lo que si necesitáramos aumentar la cantidad deberíamos hacer varias digestiones por separado, y entonces aumentaría el tiempo de digestión total de la muestra.
- 2) Una vez comenzado el proceso no podemos cambiar los parámetros ni adicionar más reactivos.
- 3) La cantidad de reactivos también está limitada, ya que el liner tiene una capacidad determinada.
- 4) Todas las celdas que vayan a participar en un mismo proceso de digestión deben contener el mismo tipo de muestra, con los mismos reactivos y en igual cantidad.
- 5) Si las muestras generan demasiados gases súbitamente durante el proceso de digestión, se puede producir un aumento de presión en el interior del vaso y si excede los límites del sistema, éste se pararía, perdiendo esa tanda de digestión, sin descartar incluso el que llegara a estallar alguno de los vasos del rotor. En ese caso, el sistema está preparado con una serie de medidas que garantizan la seguridad del personal de laboratorio.

En función de la matriz que se esté tratando, las cantidades de muestra que se ponen en cada vaso del rotor, así como los reactivos varían. En la Tabla 3.4 se detallan para cada tipo de matriz empleada.

TIPO DE MUESTRA	Alimento	Cantidad en cada vaso (mg)	Reactivos
<b>Dieta</b>		400-600	6ml HNO <sub>3</sub> , 1ml HCl, 1ml H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>
<b>Productos cárnicos y derivados</b>	Huevos	400-600	8ml HNO <sub>3</sub> , 2ml H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>
	Pollo Cerdo Vacuno	500	6ml HNO <sub>3</sub> , 1ml HCl, 1ml H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>
<b>Productos marinos</b>	Pescado	400-600	6ml HNO <sub>3</sub> , 1ml HCl, 1ml H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>
	Mariscos	400-600	8ml HNO <sub>3</sub> , 2ml H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>
<b>Lácteos</b>	Leche y yogures	300-400	8ml HNO <sub>3</sub> , 1ml HCl
<b>Cereales y legumbres</b>	Pasta Pan	500-800	6ml HNO <sub>3</sub> , 1ml HCl
	Lentejas	400-600	6ml HNO <sub>3</sub> , 1ml HCl, 1ml H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>
<b>Frutas y hortalizas</b>	Manzana Patata	500	4ml HNO <sub>3</sub> , 1ml HCl, 4ml H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>
	Endibia Espinacas Acelgas Lechuga Escarola Canónigos Brócoli, Cogollos	500	6ml HNO <sub>3</sub> , 2ml HCl
<b>Filtro tabaco</b>		300	4ml HNO <sub>3</sub> , 1ml HCl, 2ml H <sub>2</sub> O
<b>Pelo</b>		400-600	6ml HNO <sub>3</sub> , 1ml HCl, 1ml H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>

Tabla 3.4: Reactivos y cantidades de muestra empleadas por cada vaso del rotor en función de la matriz tratada

### 3.3 Tratamiento radioquímico

#### 3.3.1 Separación de actínidos

##### 3.3.1.1 Muestras líquidas

Se trata de muestras de agua mineral y vino. Lo más relevante en el acondicionamiento de las matrices líquidas, en este caso en nuestras muestras de agua mineral y vino es lo que denominaremos preconcentración. Este proceso se basa en la

coprecipitación de los elementos actínidos (U) y Po con hidróxido de hierro en medio básico [Holm et al. 1977]. Para conseguir la coprecipitación, se le añade a la muestra de agua 10 mg de portador de hierro ( $\text{Fe}^{3+}$ ) y a continuación procedemos a un ajuste de pH entre 8 y 9 mediante la adición de amoníaco concentrado. A estos valores de pH, precipita el hidróxido de hierro que se forma, arrastrando en esta precipitación al Po y U presentes en la disolución.

FASE		DESCRIPCIÓN
<b>Toma de muestra</b>	<b>de</b>	Se toma un volumen de muestra adecuado, en nuestro caso 1 litro.
<b>Trazado</b>		Se añade una cantidad conocida de $^{209}\text{Po}$ y $^{232}\text{U}$ . Los marcadores que disponemos tienen la siguiente actividad:  $^{209}\text{Po} = 173 \pm 5 \text{ mBq/g}$ $^{232}\text{U} = 117,8 \pm 0,6 \text{ mBq/g}$
<b>Adición del portador de hierro</b>	<b>del de</b>	A una temperatura de 40 °C, se le añaden 2 mL de una disolución portadora de $\text{Fe}^{3+}$ (5 mg/mL).
<b>Precipitación de actínidos</b>	<b>de</b>	Se añade amoníaco concentrado, hasta llegar a pH entre 8 y 9, produciéndose entonces la precipitación de hidróxido de hierro y coprecipitación de los actínidos.
<b>Centrifugación</b>		Se dispone la solución con el precipitado en tubos de centrifuga, y se lleva a cabo durante 10 minutos un centrifugado de la misma a 4500 r.p.m. Con ello se busca la completa separación del sobrenadante y precipitado.
<b>Secado y disolución del precipitado</b>	<b>y del</b>	Se elimina el sobrenadante, y se deja secando el precipitado con una lámpara de infrarrojos o en una estufa (de 1 a 12 horas). Una vez seco, se disuelve en 10 mL de $\text{HNO}_3$ 8M.

Tabla 3.5: Procedimiento para la preconcentración de las muestras de agua

A continuación debemos proceder a separar el precipitado de la fase acuosa, empleando para ello la centrifugación. Una vez que se ha eliminado el sobrenadante, se le añade  $\text{HNO}_3$  8M para disolver el precipitado. Esta nueva disolución va a contener el Po y U originalmente presente en la alícuota de agua (excepto algunas pérdidas inevitables que controlaremos mediante el uso de los trazadores) así como otros elementos estables y radiactivos interferentes.

Tras este tratamiento (recogido en detalle en la Tabla 3.5), la muestra ha reducido drásticamente su volumen y se encuentra en medio nítrico, con ello se encuentra lista

para proceder al aislamiento secuencial de los isótopos de polonio y uranio tal y como describiremos con posterioridad.

### 3.3.1.2 Muestras sólidas

Una vez terminada la digestión, bien sea mediante digestión ácida o por microondas, se lleva a cabo el proceso de coprecipitación de manera análoga a lo expuesto en el caso de matrices líquidas. Recordemos que al finalizar la digestión tenemos la muestra disuelta en un volumen de 50 mL. A esta disolución se adiciona el portador de  $\text{Fe}^{3+}$  y se sigue con el mismo proceso detallado en la Tabla 3.6.

FASE		DESCRIPCIÓN
<b>Adición del portador de hierro</b>	<b>del de</b>	Partiendo de la disolución de 50 mL de la etapa anterior, a una temperatura de 40 °C, se añaden 2 mL de la disolución portadora de $\text{Fe}^{3+}$ .
<b>Precipitación de actínidos</b>	<b>de</b>	Se le añade amoníaco concentrado, hasta llegar a un pH entre 8 y 9, produciéndose a ese pH la precipitación de hidróxido de hierro y coprecipitación de los actínidos y del polonio.
<b>Centrifugación</b>		Se dispone la solución con el precipitado en tubos de centrífuga, y se lleva a cabo durante 10 minutos un centrifugado de la misma a 4500 r.p.m. Con ello se busca la completa separación del sobrenadante y precipitado.
<b>Secado y disolución del precipitado</b>	<b>y del</b>	Se elimina el sobrenadante, y se deja secando el precipitado con una lámpara de infrarrojos o en una estufa (de 1 a 12 horas). Una vez seco, se disuelve en 10 mL de $\text{HNO}_3$ 8M.

*Tabla 3.6: Procedimiento para la precipitación de actínidos [Absi. 2005] para muestras que han experimentado una digestión previa*

### 3.3.2 Separación secuencial U/Po

En el apartado anterior hemos terminado, tanto para muestras de agua como para muestras orgánicas, con una disolución de 10 mL en medio nítrico que contiene los radionucléidos de interés presentes en la muestra que se va a analizar. Una vez puestos estos elementos radiactivos en disolución y para que podamos determinar la concentración de actividad de cada uno de ellos, es necesario aplicar un método radioquímico que permita extraerlos selectivamente de la disolución de  $\text{HNO}_3$  en la que se encuentran y posteriormente ponerlos en condiciones óptimas para la preparación final de las fuentes de medida. Es necesario que aislemos los radionucléidos que vamos a estudiar, no sólo por evitar posibles interferentes que



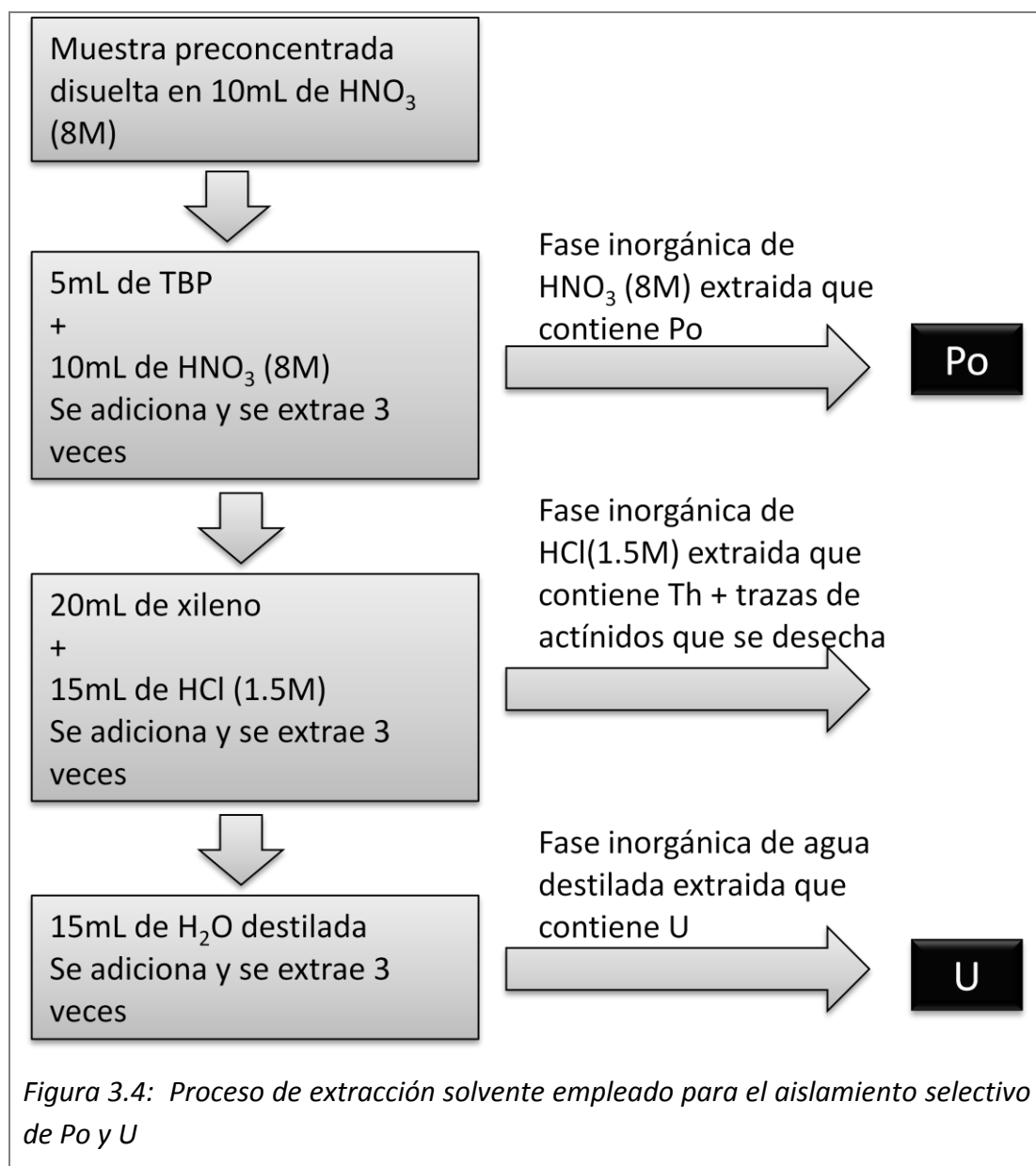
provoquen solapamientos en las emisiones energéticas, sino también por la existencia de elementos, que puedan aumentar el espesor considerablemente a la hora de preparar la fuente de medida, con lo que se produciría una pérdida de la energía de sus emisiones alfa empeorando así la resolución del espectro.

Son varias las técnicas que se emplean en el aislamiento y purificación de los radionucléidos presentes en muestras ambientales. En nuestro caso vamos a emplear la técnica de extracción líquido-líquido, también conocida como técnica de extracción solvente[Vera Tomé et al. 2002]. Este método se fundamenta en la propiedad que tienen algunas de las especies presentes originalmente en una disolución acuosa de ser absorbidos por disolventes orgánicos. Esta transferencia (extracción) es favorecida por la mezcla de ambos líquidos, dado que la fase acuosa y la orgánica son inmiscibles. Dicha mezcla debe producirse por agitación.

La razón por la que hemos elegido este método para el aislamiento selectivo de los radioisótopos que queremos estudiar es porque es una técnica con una buena selectividad, que podemos llevar a cabo de forma rápida y sencilla. La extracción con disolvente orgánico que llevamos a cabo en este estudio para el aislamiento selectivo y secuencial de los isótopos de polonio y uranio, se basa en el método inicialmente desarrollado por Holm y Fukai[Holm et al. 1977]. Un esquema del método, que vamos a describir a continuación, se presenta en la Figura 3.4. La fase orgánica está formada por 5 mL de tributil-n-fosfato (TBP), mientras que la fase acuosa será los 10 mL de  $\text{HNO}_3$  que obtuvimos al final de la etapa de preconcentración.

Comenzamos el proceso añadiendo 5 mL de TBP a un embudo decantador y a continuación los 10 mL de  $\text{HNO}_3$  8M. El objetivo es que el TBP (fase orgánica) extraiga de la fase acuosa el U y otros elementos (entre los que encontramos torio, que es un interferente en la medida de uranio y tendremos que asegurarnos de eliminar). Sin embargo, otros elementos radiactivos como Po, Ra, así como la totalidad de compuestos metálicos presentes desde un inicio en la fase acuosa, quedarán en ella[Jaakkola. 1994] .

Tras la agitación mecánica, la mezcla de las dos fases se deja reposar para que la acción gravitatoria logre que podamos observar una clara separación de la fase orgánica (en la parte superior) y la acuosa (en la fase inferior). Llegados a este punto, se procede a separar la fase acuosa (que contendrá principalmente Po o Ra entre otros elementos) , para posteriormente añadir al embudo, que aun contiene el TBP, otros 10 mL de  $\text{HNO}_3$  8M, agitar y volver a separar, repitiéndose el proceso dos veces. Con esto nos aseguramos de retomar los posibles remanentes de Po que pudieran quedar en el embudo decantador. La segunda y tercera fase acuosa resultante de las repeticiones, se añade a la primera, obteniéndose finalmente 30 mL de  $\text{HNO}_3$  8M que contiene  $^{210}\text{Po}$  y  $^{209}\text{Po}$ , quedando ya lo suficientemente aislado para poder ser tratado para la obtención de la fuente de medida por espectrometría alfa.



Una vez extraído el polonio de la fase acuosa de  $\text{HNO}_3$  8M, en el embudo nos queda la fase orgánica de TBP en la que se encuentra el U y el Th, entre otros, formando complejos. Debemos tener en cuenta que aunque el Th no sea objeto de nuestro estudio, éste debe ser eliminado porque, en algunas zonas del espectro alfa, determinado por espectrometría alfa con detectores de semiconductor, se solapa con el uranio. Para conseguirlo, a la fracción de TBP que contiene el U y el Th, se le adicionan 20 mL de xileno, y a la mezcla orgánica resultante se le añaden 15 mL de  $\text{HCl}$  1,5M (fase acuosa), agitando posteriormente el embudo y dejando reposar para ver de nuevo la distinción de las fases. Tras esa agitación, los isótopos de Th se habrán incorporado a la nueva fase acuosa de  $\text{HCl}$  1,5M. Procedemos después a la eliminación

de la fase acuosa y por ello del Th. A esta fase orgánica de TBP y xileno se le vuelven a adicionar de nuevo 15 mL de HCl 1,5M, agitando de nuevo y separando, repitiendo la acción dos veces para asegurarnos en la medida de lo posible la eliminación del Th. Después de este procedimiento el resultado final es una fase orgánica en la que ya quedan sólo los isótopos de U.

El paso final sería la liberación de los isótopos de uranio de la fase orgánica en la que se encuentran. Esto lo conseguimos mediante su extracción con una fase acuosa de agua destilada. Al TBP y xileno que quedaban en el embudo decantador se le añaden 15 mL de agua destilada y posteriormente se agita. Tras la agitación se deja en reposo para después poder separar ambas fases. Este proceso de mezcla y agitación se repite dos veces más uniendo todas las fases acuosas, con lo que finalmente el uranio de la muestra que tomamos en un inicio se encontrará disuelto y ya aislado en 45 mL de agua, pudiendo con ello comenzar la fase de preparación de fuentes.

### 3.3.3 Muestras de orina

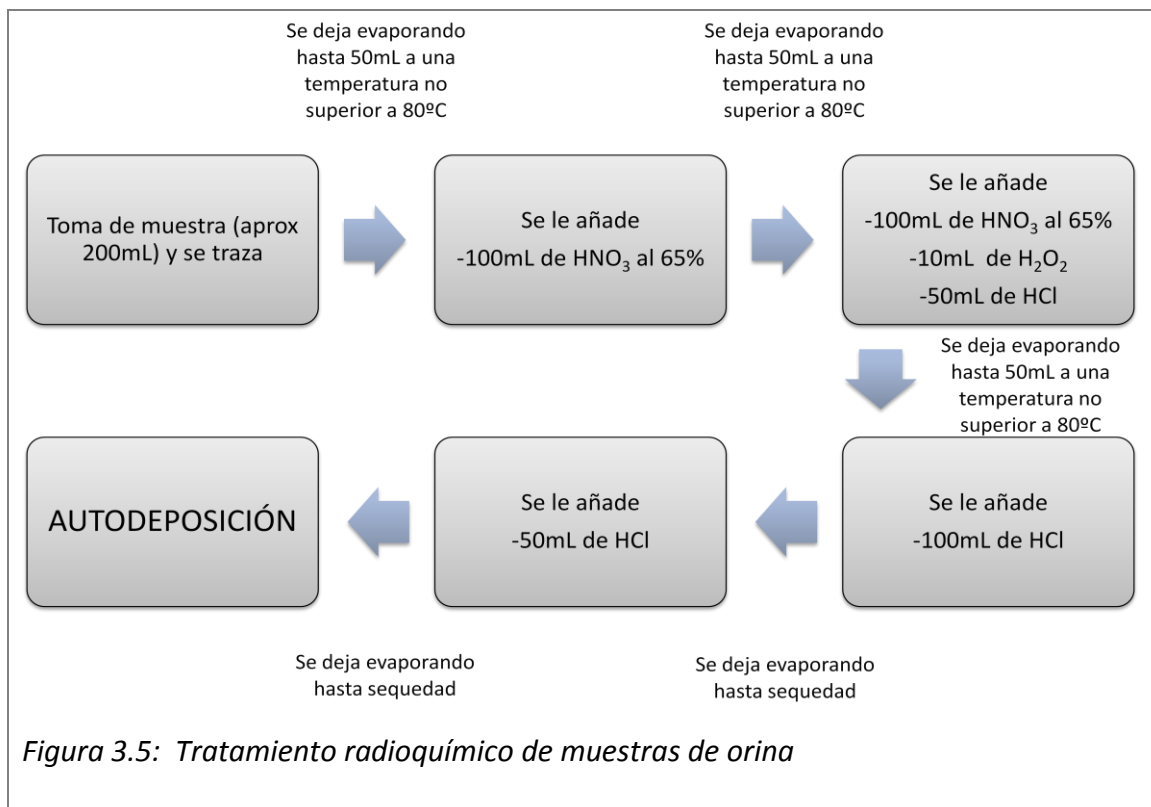


Figura 3.5: Tratamiento radioquímico de muestras de orina

Las muestras de orina han sido tratadas en su tratamiento radioquímico previo a la medida de una forma distinta respecto al resto de muestras líquidas analizadas (aguas minerales y vino). A través de los protocolos seguidos en distintas referencias de este tipo de muestras encontrados en la literatura, se decidió introducir cambios en el que a priori se eligió [Puerta et al. 2009], ya que durante el proceso de preparación de la

fuente de medida, proceso que se describe en el apartado siguiente, sobre la plancheta se quedaba una capa oleosa y los rendimientos eran más bajos a los obtenidos tras la modificación. El procedimiento seguido para el tratamiento químico de estas muestras se detalla a continuación en la Figura 3.5.

En primer lugar se toma la muestra la cual durante el tiempo de espera para el inicio del tratamiento radioquímico se ha conservado en frío. Se traza y se pone a evaporar a 80°C. Tras aproximadamente 24 horas se alcanza un volumen de 50 ml se le añade 100ml de HNO<sub>3</sub> al 65%, con precaución y poco a poco ya que suele producirse una efervescencia. De nuevo se deja evaporar a 80°C hasta que la solución alcanza un volumen de 50ml. Tras esto se vuelve a añadir 100ml de HNO<sub>3</sub> al 65%, 10ml de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> gota a gota para evitar efervescencia y finalmente tras esto se le añade 50ml de HCl. Esta disolución se deja evaporando a una temperatura no superior de 80°C hasta los 50ml tras lo cual se añadirán 100ml de HCl. Tras esta última adición se deja evaporando hasta sequedad y para añadir de nuevo 50ml de HCl dejando ya la muestra a secar por última vez. Es así como la muestra queda acondicionada y lista para realizar el proceso de autodeposición.

Como se observa en la Figura 3.5, el tratamiento de estas muestras, carece de una fase de preconcentración y separación secuencial. Después de poner en contacto la muestra con los distintos ácidos, que pretenden acabar con los restos orgánicos presentes, y tras varias evaporaciones, la muestra queda lista para la preparación de la fuente de medida.

### **3.4 Preparación de fuentes de medida de Po y U para espectrometría alfa**

Como se pretende hacer un análisis espectrométrico, y dadas las características de las emisiones alfas, debemos tener en cuenta una serie de consideraciones. Con el fin de evitar pérdidas de energía de las emisiones alfa debido a la autoabsorción se busca que la fuente de medida sea lo más delgada posible y esté sobre una superficie plana. Este objetivo no siempre es posible debido a la difícil eliminación de trazas de contaminantes, con lo cual se empeora la resolución del espectro. Es aquí donde los métodos radioquímicos anteriormente descritos juegan su papel más importante, ya que evitarán la presencia de estos elementos no deseado en las fuentes, que junto con una correcta preparación de la fuente de medida, harán que el espesor de dicha capa sea el mínimo posible y el espectro esté lo mejor resuelto que permita nuestro sistema de medida.

En la manipulación de las fuentes de medida se debe prestar especial cuidado con el fin de evitar pérdidas del material depositado. Además, los detectores son especialmente sensibles a los ácidos, de manera que aquellos usados en la preparación de las fuentes, tendrán que ser eliminados para evitar dichos daños.

### 3.4.1 Preparación de fuentes de medida para U

Para la preparación de fuentes de medida para espectrometría alfa de U, utilizamos el método más extendido y empleado para ello: la electrodeposición. Este método se basa en la deposición forzada de uranio gracias a la electrólisis en una disolución previamente acondicionada que lo contenga [Halltadius. 1984], [García-Tenorio et al. 1986], sobre una superficie, que será una plancheta de acero inoxidable. La inducción de corriente por la disolución se produce creando una diferencia de potencial entre la plancheta metálica (cátodo) donde se depositarán los radioisótopos que se van a medir y un hilo de platino que se encuentra enrollado (ánodo) en forma de espiral en su parte inferior y que se sitúa a una distancia de aproximadamente 5 mm de la plancheta. La corriente provoca la deposición de los isótopos de interés sobre la superficie de la plancheta que queda expuesta a la disolución (electrolito) en la celda de electrodeposición.

Una celda de electrodeposición (Figura 3.6), consta de un cuerpo de teflón con un ánodo de platino, un cátodo (plancheta) de acero inoxidable y una fuente de tensión regulable.

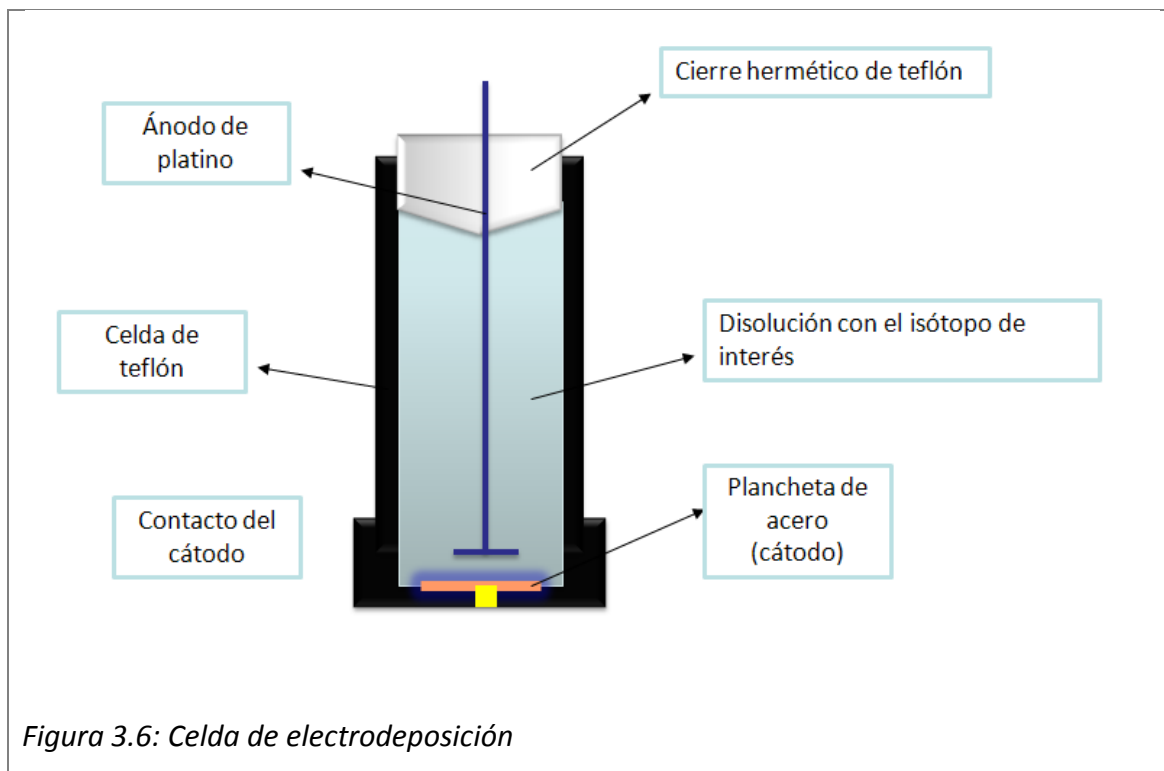


Figura 3.6: Celda de electrodeposición

El proceso de electrodeposición consta de distintas etapas que serán detalladas a continuación. Recordemos que tras el proceso de separación y aislamiento de los radionucléidos de interés, finalmente nos quedábamos con los isótopos de U disueltos en 45 mL de agua destilada. En primer lugar, esa solución ha de ser evaporada hasta llevarla aproximadamente a unos 2 mL, con el fin de acondicionar los actínidos en una

disolución apropiada para poder llevar a cabo con éxito la electrodeposición [Halltadius. 1984]. Para evitar que el U se absorba en las paredes del vaso, se le añade 1 mL de  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  0,3M y se lleva a sequedad. Con ello tendremos finalmente un residuo seco en el que se encontrarán los isótopos de uranio.

Posteriormente procedemos a redissolver el depósito seco añadiéndole 30  $\mu\text{L}$  de  $\text{H}_2\text{SO}_4$  concentrado y 4 mL de agua destilada, calentando a continuación suavemente el vaso para conseguir una buena disolución.

El siguiente paso es llevar la solución a pH 2,2-2,5. Para ello añadimos azul de timol como indicador (el color pasará de rosa intenso hasta color de vino rosado-anaranjado) y procedemos al ajuste de pH con vapores de amoníaco. A continuación se vierte en la celda de electrodeposición que ha sido previamente preparada y donde ya está colocada la plancheta sobre la que se electrodepositará el U. El vaso se lava dos veces con 2,5 mL de  $\text{H}_2\text{SO}_4$  al 1% y se vuelve a reajustar el pH con vapores de amoníaco.

Para poder comenzar el proceso, finalmente colocamos el electrodo de platino a la distancia adecuada del cátodo y ajustamos la intensidad a 1,2 A, durante una hora [Mantero. 2007]. Un minuto antes de la finalización del proceso, se añade 1 mL de  $\text{NH}_3$ , interrumpiendo con ello la reacción y evitando la redissolución del U que se ha depositado en la plancheta al cortar la corriente eléctrica.

Una vez que se desconecta la corriente eléctrica, se elimina la solución electrolítica, y la plancheta donde se ha depositado el radionucléido, se lava con acetona y agua destilada, dejándose a continuación secar a temperatura ambiente. Con esto habremos conseguido la obtención de la fuente de medida de U para espectrometría alfa.

Tanto el ánodo de platino como todos los componentes de la celda que han estado en contacto con la disolución, han de ser descontaminados antes de una nueva utilización. Para ello durante un mínimo de 24 horas se mantendrán en una disolución de ácido nítrico y posteriormente se lavarán con agua y detergente.

#### **3.4.2 Preparación de fuentes de medida de Po**

Para la preparación de fuentes de medida por espectrometría alfa de Po se emplea la autodeposición del mismo sobre un material que posea un potencial redox inferior, como son: Ag, Cu o Ni. El método principal y más empleado fue desarrollado por Flynn en los años 60 y posteriormente modificado por Asean en los años 70 y consistía en la reducción del  $\text{Fe}^{3+}$  a  $\text{Fe}^{2+}$  y posteriormente la autodeposición de Po en planchetas de plata en una disolución de ácido clorhídrico [Flynn. 1968], aunque también existen métodos para la preparación de las fuentes de medida en planchetas de cobre [Aslani et al. 2005].

Además de la propiedad de que el Po se deposita de forma espontánea sobre un material más activo, nos encontramos con que esta deposición es selectiva para este elemento, no produciéndose la deposición de otros emisores alfa que pudieran interferir y que estuvieran presentes en la disolución portadora de polonio (como por ejemplo el Ra). Por este motivo en las muestras de orina no se empleó el método de aislamiento de polonio.

Recordemos que tras el proceso de separación y aislamiento de los radionucléidos de interés, finalmente nos quedábamos con los isótopos de polonio ( $^{210}\text{Po}$  y el trazador  $^{209}\text{Po}$ ) disueltos en 30 mL de  $\text{HNO}_3$  8M. En primer lugar, esa disolución ha de ser evaporada hasta llevarla sequedad, con el fin de acondicionarse a medio clorhídrico. Para conseguirlo, se adicionan 20-40 mL de  $\text{HCl}$  al 35% y se redisuelve el depósito seco que había quedado. Se vuelve a dejar evaporar la disolución a sequedad y finalmente se le añaden 50 mL de  $\text{HCl}$  1,5M. Esta será ya la disolución acondicionada en la que se llevará a cabo la autodeposición.

El metal sobre el que se realiza esta deposición se introduce en forma de plancheta en el vaso que contiene la solución. Esta va a contener otros elementos en disolución tales como radio o bismuto, pero no van a interferir en la medida de polonio ya que no se van a depositar. Sin embargo, sí que puede interferir el  $\text{Fe}^{3+}$  presente en la solución, ya que éste sí se puede depositar sobre el metal, produciendo un aumento en el espesor de la fuente de medida y haciendo por ello que las partículas alfa pierdan energía y además reduciendo la deposición de polonio sobre la plancheta [Gonzalez-Labajo et al. 2003]. Podemos eliminar la posibilidad de precipitación e interferencia de  $\text{Fe}^{3+}$ , reduciendo el mismo a  $\text{Fe}^{2+}$  mediante la adición a la disolución ácido ascórbico. De esta forma el  $\text{Fe}^{2+}$  se mantendrá disuelto y no se depositará en la plancheta.

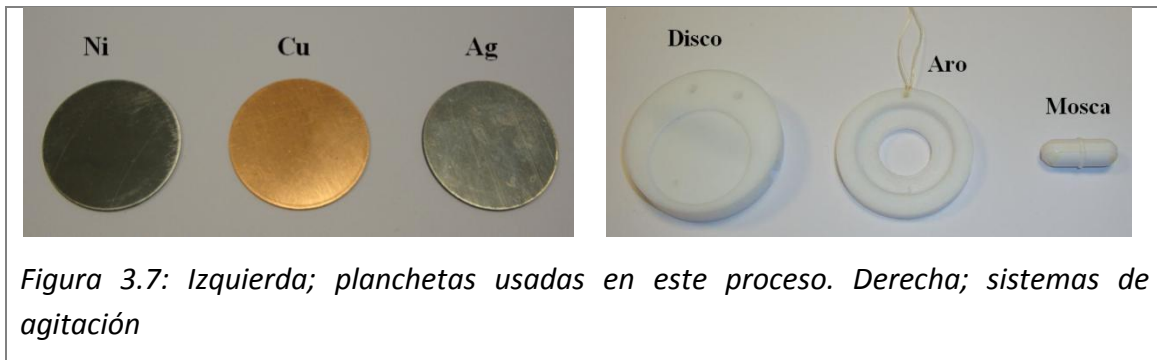
Una vez que tenemos lista la disolución con la plancheta en su interior, ponemos la misma en agitación a una temperatura entre 70-80 °C, y se mantiene así durante 4 horas. Pasado ese tiempo se desecha la disolución y se extrae y lava con agua la plancheta, dejándose secar posteriormente a temperatura ambiente. Con esto habremos conseguido la obtención de la fuente de medida de Po para espectrometría alfa.

### **3.4.3 Optimización del procedimiento de autodeposición de polonio**

Tal como se comentó anteriormente, el proceso de autodeposición se lleva a cabo de forma muy extendida en planchetas de plata. Aparecen en la literatura numerosos estudios sobre la deposición espontánea del Po sobre planchetas de este metal en distintas condiciones con rendimientos altos, lo cual indica la robustez de la técnica. Sin embargo, en nuestro laboratorio hemos querido optimizar este proceso y se ha llevado a cabo un estudio considerando varios parámetros que intervienen en el proceso de autodeposición.

Existen también estudios donde se ha considerado la velocidad del depósito mediante el aumento del diámetro de la plancheta, con la desventaja por ello de la disminución en la eficiencia de detección del sistema [Smith-Briggs et al. 1984]. Como alternativa a la deposición espontánea en planchetas de Ag, se han utilizado para la autodeposición de polonio el Cu [Vrecek et al. 2004] y el Ni [Blanchard. 1966], los cuáles van a ser objeto de nuestro estudio en este proceso de optimización, si bien distintos autores señalan que el empleo de éstos hacen las medidas más vulnerables a posibles interferencias de  $^{210}\text{Bi}$  o  $^{210}\text{Pb}$  que pueden ser depositados en el mismo proceso [Gonzalez-Labajo. 2003].

Con el fin de conseguir una mejora en este proceso de preparación en la fuente de medida para espectrometría alfa de polonio, se han probado distintas configuraciones en el método que se va a llevar a cabo. Entre ellas, como se dijo antes, está el uso de distintos tipos de metales en las planchetas (cobre, plata y níquel), el empleo de distintas formas de agitador (mosca, disco, aro), y distintos tiempos para el procedimiento (Figura 3.7).



Detallando en qué consisten los distintos métodos de agitación, comentar que en principio, el sistema utilizado en nuestro laboratorio es el etiquetado como “Mosca”. Consiste simplemente en depositar una plancheta metálica en el fondo del vaso y se inicia la agitación con un agitador magnético (comúnmente llamado *mosca*). Así la plancheta está en reposo y el agitador mueve el medio ácido. Por otra parte, se han implementado un par de sistemas de agitación adicionales con la intención de ver si se podía mejorar el rendimiento variando el método. El proceso de agitación denominado “Disco” se trata de un cilindro de teflón de 5 mm de altura y 30 mm de diámetro que posee una hendidura en la superficie superior del tamaño exacto de la plancheta, de forma que ésta queda aprisionada ahí mientras el disco (con un imán en su interior) gira. Como la hendidura está descentrada respecto del eje de simetría, la plancheta es ahora la que se mueve a través del medio ácido. Y el tercer sistema diseñado consiste en un aro de teflón donde de nuevo se inserta la plancheta pero en esta ocasión, se deja colgando de un hilo de sedal a media altura en el medio ácido mientras un agitador magnético mueve el medio. Se pretende con esta tercera variante, ver si



existe dependencia con la altura en cuanto a la recuperación química en el proceso de autodeposición.

Esta serie de experiencias se inician añadiendo directamente una cantidad conocida de  $^{209}\text{Po}$  al medio clorhídrico en el que se va a llevar a cabo la autodeposición. Entonces comienza la agitación variando: tipo de plancheta, método y tiempo. Por último se miden los rendimientos químicos obtenidos en las diferentes situaciones.

Los resultados que aparecen recopilados en la Tabla 3.7 bajo la columna “rendimiento” corresponden con la media de tres repeticiones realizadas bajo las mismas condiciones, y la columna “error”, presenta sus desviaciones típicas. Para visualizar mejor los resultados obtenidos se presenta la Figura 3.8.

Viendo el tiempo de autodeposición, si se agrupan el total de los resultados para 2 y 4 horas se obtiene un promedio de  $59 \pm 6\%$  y  $63 \pm 9\%$  respectivamente. Esta diferencia no parece muy elevada, pero debemos tener en cuenta que recoge 18 variantes y tres repeticiones por configuración, luego un total de 64 rendimientos. Ese incremento del 5% hace que quede establecido el tiempo de la autodeposición en 4 horas. Y se deja abierto el estudio de cara a ampliar a 6 y 8 horas pues en conversaciones personales con otros laboratorios se nos ha indicado que dejan los procesos de autodeposición durante toda una noche.

Metal empleado	Tiempo de la autodeposición	Tipo de agitación	Código de muestra	Rendimiento (%)
<b>Niquel</b>	4h	Mosca	Ni4hmosca	65±7
		Disco	Ni4hdisco	70±3
		Aro	Ni4haro	77±4
	2h	Mosca	Ni2hmosca	58±4
		Disco	Ni2hdisco	60±6
		Aro	Ni2haro	72±2
<b>Cobre</b>	4h	Mosca	Cu4hmosca	56±3
		Disco	Cu4hdisco	65±2
		Aro	Cu4haro	69±4
	2h	Mosca	Cu2hmosca	56±5
		Disco	Cu2hdisco	55±11
		Aro	Cu2haro	61±3
<b>Plata</b>	4h	Mosca	Ag4hmosca	55±5
		Disco	Ag4hdisco	51±2
		Aro	Ag4haro	—
	2h	Mosca	Ag2hmosca	59±12
		Disco	Ag2hdisco	52±1
		Aro	Ag2haro	—

Tabla 3.7: Resultados del proceso de optimización de la autodeposición

Atendiendo al parámetro “metal que compone la plancheta” los promedios son los siguientes:  $67 \pm 7$  % para Ni,  $60 \pm 6$  % para Cu y  $54 \pm 4$  % para la Ag. Aquí las planchetas de Ni se destacan del resto, lo que las hace unas buenas candidatas a ser utilizadas y quedando aún por verificar la presencia de Bi o Pb en ellas como indican otros autores.

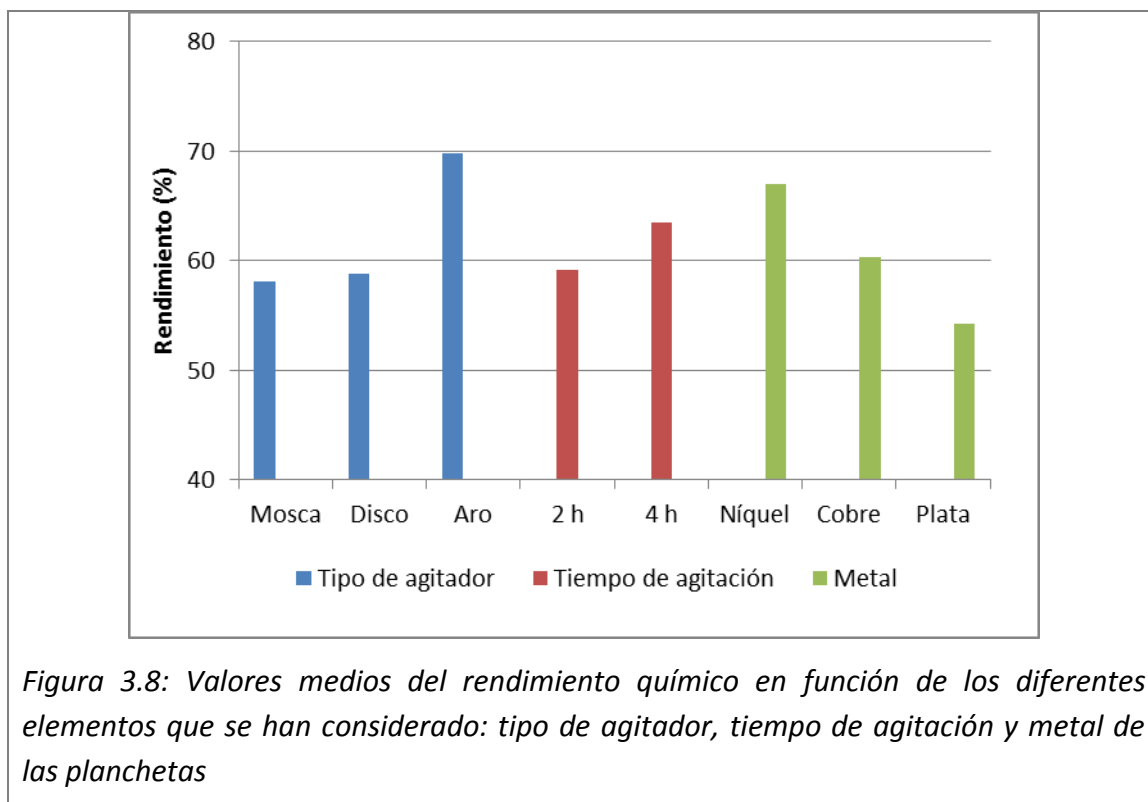


Figura 3.8: Valores medios del rendimiento químico en función de los diferentes elementos que se han considerado: tipo de agitador, tiempo de agitación y metal de las planchetas

Si se observa el último parámetro considerado que sería el tipo de agitador, los promedios quedan:  $58 \pm 4\%$  para la mosca,  $59 \pm 8\%$  para el disco y  $69 \pm 7\%$  para el aro. Así pues será este último el sistema de agitación que demuestra ser más eficiente. Y en el caso de mosca y disco, vemos que son muy similares. La justificación a este comportamiento creemos que está asociada a la “sección útil” que la plancheta presenta durante el proceso de autodeposición. En el caso del aro, la plancheta, por causa de su peso, mantiene una posición vertical respecto a la dirección de rotación del medio en el que se encuentra inmersa, mientras que tanto en el disco, como en la mosca, la plancheta se encuentra en el fondo del vaso y orientada paralelamente a la dirección del movimiento que se produce en el seno de la solución. Este hecho podría justificar que el proceso de autodeposición fuese más efectivo en la configuración “aro” que en el resto.

### 3.5 Validación del método

Para corroborar la bondad de los métodos empleados, descritos en los apartados anteriores, se han hecho medidas en muestras certificadas y se ha participado en distintos ejercicios de intercomparación dentro de los distintos programas de control en los que nuestro grupo de investigación se incluye. De esta forma la metodología de los distintos procedimientos radioquímicos mostrados en este capítulo para polonio y uranio se examinan.

El parámetro empleado para valorar el resultado obtenido en estas pruebas es el Z-Score definido como:

$$Z - score = \frac{Valor\ obtenido - Valor\ de\ referencia}{0,1 \cdot Valor\ de\ referencia} \quad [3.1]$$

Donde el *Valor obtenido* es el resultado hallado al analizar dicha muestra, y el *Valor de referencia* es el resultado que aporta la muestra certificada del ejercicio.

Según los valores absolutos de Z-score obtenidos y bajo los criterios del Organismo Internacional de la Energía Atómica [IAEA. 2008] concluimos los que se presenta en la tabla 3.8.

Valor absoluto de Z-score	Clasificación
$ Z-score  \leq 2$	SATISFACTORIO
$2 <  Z-score  < 3$	CUESTIONABLE
$ Z-score  \geq 3$	INSATISFACTORIO

*Tabla 3.8: Clasificación del resultado según el valor del Z-Score de acuerdo con los criterios utilizados por el Organismo Internacional de la Energía Atómica (OIEA) en los ejercicios de calidad de los laboratorios de medida de radiactividad*

En nuestro laboratorio se han analizado distintas matrices, pero los resultados que presentamos son los de las matrices que más se asemejan a las de las muestras que analizamos en este trabajo. Así, presentaremos aquí la valoración de cinco ejercicios de calidad coordinados por diferentes organismos o instituciones: Universidad de Extremadura (Laurex 2008), Consejo de Seguridad Nuclear (CSN/CIEMAT 2010, CSN/CIEMAT 2011) y el Organismo Internacional de la Energía Atómica (muestra certificada IAEA-414 y muestra certificada IAEA-437).

Los resultados obtenidos se muestran en la Tabla 3.9. Los valores de Z-Score son todos menores que 2, en la mayoría de los casos son menores que la unidad, lo que nos lleva a la conclusión que el resultado del experimento es satisfactorio en todos los casos.

Tipo de Muestra	Intercomparación	Isótopo	Valor medio obtenido	Valor de referencia	Z-score
Agua subterránea (mBq/ℓ)	Laurex 2008	<sup>234</sup> U	1323±84	1430±35	0,75
		<sup>238</sup> U	233±18	244±8	0,45
		<sup>210</sup> Po	18±2	16,4±1,1	1,10
Agua (Bq/ℓ)	CSN/CIEMAT 2011	<sup>234</sup> U	0,26±0,03	0,25±0,04	0,36
		<sup>238</sup> U	0,25±0,03	0,24±0,04	0,20
		<sup>210</sup> Po	1,16±0,05	1,2±0,2	0,16
Cenizas de alimentos (Bq/kg)	CSN/CIEMAT 2010	<sup>234</sup> U	28,4±0,7	29±5	0,03
		<sup>238</sup> U	27,4±0,9	27±5	0,03
Pescado (Bq/kg)	IAEA-414	<sup>210</sup> Po	2,6±0,3	2,2±0,7	1,66
Mejillones (Bq/kg)	IAEA-437	<sup>210</sup> Po	4,1±0,4	4,6±0,9	1,08

Tabla 3.9: Resultados obtenidos en los ejercicios de validación con muestras de distintas matrices y con muestras de referencia

### 3.6 Cálculo de la dosis

Las medidas realizadas persiguen la estimación de la dosis efectiva debido a la ingesta del <sup>210</sup>Po. Para el cálculo de dosis efectiva anual debida a la ingestión de un determinado radioelemento en muestras líquidas, en nuestro caso agua, leche y vino, simplemente tendremos que aplicar la siguiente expresión:

$$D_E = A \cdot F_C \cdot C \cdot T \quad [3.2]$$

Donde:

$D_E$  es la dosis efectiva vía ingestión anual para el radionucleido evaluado (Sv/año)

A es la concentración de actividad del radionucleido evaluado en la muestra analizada (Bq/ℓ)

$F_c$  es el factor de conversión específico para ingestión (dosis/concentración de actividad) determinado para el radionucleido evaluado (Sv/Bq)

C es la cantidad de agua representativa ingerida por persona en un día, expresada en ℓ/día, y T un factor de conversión temporal días/año, para expresar los valores de dosis efectivas en las unidades indicadas previamente.

En su aplicación a las aguas minerales, el valor de C ha sido tomado como 2 ℓ/ día (valor representativo de la ingestión diaria de agua por una persona), mientras que en agua y leche se han basado en datos estadísticos facilitados por el Panel de Consumo Alimentario del Ministerio de Agricultura, Alimentación y Medio Ambiente. Y T como 365 días/año, mientras que los valores de  $F_c$ , para los diversos radionucleidos analizados han sido los reflejados en la Tabla 3.10, los cuales son fruto de un consenso internacional logrado bajo los auspicios del OIEA, tras el análisis y evaluación de numerosos estudios experimentales y de modelización sobre el comportamiento metabólico y distribución entre órganos de los radionucleidos analizados, una vez que son ingeridos.

Obsérvese que los valores de los factores de conversión  $F_c$  son dependientes de la edad del ser humano ingestor y del radionucleido bajo estudio. Para una misma actividad de radionucleido ingerido, en general la dosis efectiva es mayor para los lactantes y la población de edad joven en crecimiento, que para los adultos. Y obsérvese también como de todos los radionucleidos reflejados en la Tabla 3.10, los que presentan mayores valores de  $F_c$  son los radionucleidos objeto central de nuestro estudio,  $^{210}\text{Po}$  y  $^{210}\text{Pb}$ , lo que pone de manifiesto su importancia radiológica.

GRUPO DE EDADES				
RADIONUCLÉIDO	2-7 años	7-12 años	12-17 años	Adultos
<sup>210</sup> Po	4,4 x 10 <sup>-6</sup>	2,6 x 10 <sup>-6</sup>	1,6 x 10 <sup>-6</sup>	1,2 x 10 <sup>-6</sup>
<sup>210</sup> Pb	3,6 x 10 <sup>-6</sup>	1,9 x 10 <sup>-6</sup>	1,9 x 10 <sup>-6</sup>	6,9 x 10 <sup>-7</sup>
<sup>238</sup> U	8,0 x 10 <sup>-8</sup>	6,8 x 10 <sup>-8</sup>	6,7 x 10 <sup>-8</sup>	4,5 x 10 <sup>-8</sup>
<sup>234</sup> U	8,8 x 10 <sup>-8</sup>	7,4 x 10 <sup>-8</sup>	7,4 x 10 <sup>-8</sup>	4,9 x 10 <sup>-8</sup>
<sup>226</sup> Ra	6,2 x 10 <sup>-7</sup>	8,0 x 10 <sup>-7</sup>	1,5 x 10 <sup>-6</sup>	2,8 x 10 <sup>-7</sup>

Tabla 3.10: Factores de conversión (Sv/Bq) asociados a la ingesta de distintos radionucleidos [IAEA. 1995]

En el caso de las muestras de dieta tipo o alimentos, para el cálculo de dosis efectiva anual debida a la ingestión de un determinado radioelemento aplicaremos la siguiente expresión:

$$D_E = A \cdot B \cdot F_C \cdot C \cdot T \quad [3.3]$$

Donde:

$D_E$  es la dosis efectiva vía ingestión anual para el radionucleido evaluado (Sv/año)

A es la concentración de actividad del radionucleido evaluado en la muestra analizada. Esa concentración se determina por unidad de masa seca

B es el cociente determinado para cada muestra peso seco/peso húmedo

$F_C$  es el factor de conversión específico (para ingestión dosis/concentración de actividad) determinado para el radionucleido evaluado (Sv/Bq)

C es la cantidad típica de dieta o alimentos, expresada en peso húmedo, ingerida por persona en un día, y T un factor de conversión temporal días/año, para expresar los valores de dosis efectivas en las unidades indicadas previamente.

En nuestro estudio, las medidas radiométricas nos han permitido determinar para las muestras de dieta analizadas y para cada radionucleido evaluado, el valor de A en Bq/kg peso seco, mientras que en el pretratamiento de cada muestra hemos determinado el valor de B al secar la muestra (kg masa seca/ kg masa húmeda). Por otra parte, los factores  $F_C$  son los ya mostrados en la Tabla 3.10 pues éstos no son dependientes del tipo de muestra con el que se ingiera el radionucleido bajo estudio, y

el valor de C se ha estimado en nuestro caso como 1 kg de dieta húmeda/día (valor que consideramos representativo de la dieta ingerida por persona y día) y para los distintos alimentos nos hemos basado en datos estadísticos facilitados por el Panel de Consumo Alimentario del Ministerio de Agricultura, Alimentación y Medio Ambiente. Finalmente el valor de T será 365 días/año.

Para los cálculos de dosis debido a la inhalación de  $^{210}\text{Po}$  por fumar tabaco, el cálculo llevado a cabo ha sido el resultado de esta operación

$$D_E = A \cdot F_c \cdot C \cdot T \quad [3.2]$$

Donde:

$D_E$  es la dosis efectiva vía inhalación anual para el  $^{210}\text{Po}$  (Sv/año)

A es la concentración de actividad del radionucleido evaluado en la muestra analizada (Bq/cigarro).

$F_c$  es el factor de conversión específico (para inhalación dosis/concentración de actividad) determinado para el radionucleido evaluado, que en nuestro caso para el  $^{210}\text{Po}$  en adultos es de  $4,3 \times 10^{-6}$  (Sv/Bq)

C es la cantidad típica de cigarrillos consumidos por una persona en un día, y T un factor de conversión temporal días/año, para expresar los valores de dosis efectivas en las unidades indicadas previamente.





#### 4. $^{210}\text{Po}$ E ISÓTOPOS DE URANIO EN AGUAS MINERALES

El agua es un recurso natural imprescindible para el desarrollo de la vida. Por todos es conocido que se trata de un componente esencial en la nutrición. En efecto, el agua es el principal componente de los seres vivos y va a intervenir en distintos procesos fisiológicos y reacciones orgánicas, buscando siempre encontrar el equilibrio vital. De hecho nuestro cuerpo está constituido de agua entre un 55 y 65% del peso corporal total [Verbalis. 2003], este valor variará en función de distintos factores, entre los que se encuentran la edad, el sexo y la cantidad de grasa corporal del individuo. El agua corporal total se distribuye entre el fluido intracelular y los compartimentos extracelulares (fluido intersticial y sangre), facilitando el mantenimiento de la presión osmótica pasando a través de la membrana plasmática hacia uno u otro sentido con la finalidad de mantenerla.

El balance hídrico corporal depende de la cantidad de agua incorporada a través de la ingesta y del metabolismo, y también tendrá en cuenta pérdidas producidas por las vías respiratoria, dérmica, renal y gastrointestinal. Entre los problemas médicos más comunes se encuentran los trastornos de fluidos corporales debido a que muchas enfermedades alteran los mecanismos encargados de controlar la incorporación y salida de agua y sólidos.

Queda claro que para que se den las distintas reacciones químicas indispensables para la vida, es necesaria la ingesta de la suficiente agua, ya que debe garantizar la correcta hidratación. Hemos de tener en cuenta que esa incorporación de agua se entiende no sólo como el agua ingerida como tal, sino que también se debe tener en cuenta la ingesta de otros líquidos y alimentos que la contienen.

La cantidad de agua que necesita el cuerpo va a estar determinada por el efecto homeostático [Verbalis. 2003]. La cantidad ingerida recomendada por la Autoridad Europea de Seguridad Alimentaria y la Organización Mundial de la Salud (OMS) se encuentra entre 2 y 3 l al día [NRC. 1989], siempre dependiendo del sexo, edad, exposición ambiental y actividad física del individuo. Estas recomendaciones se realizan para evitar una posible deshidratación y sus consecuentes efectos adversos, a los que se puede enfrentar el cuerpo ante ello, y representa aproximadamente un 80% del agua total ingerida.

Como consecuencia de todo lo anteriormente mencionado, y del creciente conocimiento de la población al respecto de la importancia de este tema, se tiende a la búsqueda de un agua de calidad.

El agua mineral natural, debido a la ausencia de procesado tras su captación, ha sido un reclamo en auge hasta hoy día. Las aguas minerales de consumo, son aguas

subterráneas con una garantía higiénica, libre de patógenos al estar bacteriológicamente sanas, que se diferencian del resto de aguas potables por su contenido en determinadas sales minerales y oligoelementos.

#### 4.1 Origen de las aguas minerales y control para su consumo.

El agua mineral es el resultado de un proceso de filtración natural, que se produce cuando el agua en forma de lluvia o de nieve penetra en el subsuelo. En este viaje subterráneo que va a experimentar, va disolviendo y llevando consigo los distintos minerales que están presentes en el sustrato a través del cual va pasando, hasta que, a una cierta profundidad, finalmente llega a una cavidad con un fondo impermeable que la retiene. La singularidad de este tipo de agua, va a residir en su composición química, que finalmente es consecuencia de factores como: la temperatura, el tiempo de residencia, la profundidad y el tipo de material que atraviesa, el lugar donde se almacena, y cómo alcanza la superficie.

Estas aguas son un recurso geológico que se emplea, no sólo para la bebida, como aguas envasadas con fines comerciales, sino también para tratamientos de enfermedades en balnearios. En España existe una gran variedad de aguas minerales dependiendo del marco geológico en el que se encuentra. Están registradas como aguas minerales oficialmente reconocidas un total de 154 marcas comerciales, que se abastecen de 163 manantiales distintos[AESAN. 2013].

Las características físico-químicas del agua estarán ligadas mayoritariamente al dominio geológico donde se origine, de manera que un tipo de agua deba ser siempre exclusivo de un entorno determinado. Sin embargo se pueden relacionar algunos tipos de aguas con grandes unidades geológicas, en función de las características que presentan éstas[Baeza et al. 2001].

La legislación actual establece que las aguas minerales naturales deben cumplir, entre otros requerimientos, el mantener constantes: la composición química, la temperatura y las restantes características esenciales del agua mineral natural[BOE Nº16. 2011].

El concepto de agua potable se entiende, como aquella agua bien sea de superficie o subterránea, tratada o no tratada, no contaminada y salubre. Hasta hace unas décadas, los análisis que hacían que un agua se destinara al abastecimiento de la población se centraban en que el agua reuniese las siguientes características: estuviese exenta de sabores y olores, no fuera muy dura y no contuviese bacterias patógenas. A día de hoy, debido a la creciente alteración del medio ambiente y la contaminación que ello conlleva, se han empezado a considerar otros parámetros que nos indican la calidad del agua.

Así la Directiva 98/83/CE del Consejo de 3 de noviembre de 1998, es la encargada de regular la calidad de las aguas destinadas al consumo humano en España. Esta directiva europea, permite a otros Estados Miembros la incorporación de otros parámetros a los que ya establece la propia Directiva que tienen con finalidad la valoración de la calidad y salubridad de las aguas. Desarrollando la mencionada Directiva Comunitaria, se aprueba en España el Real Decreto 140/2003, por el que se establecen “los criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano”. En el prólogo de este Real Decreto se indican los parámetros y valores que deben cumplirse. Dichos valores están basados en recomendaciones hechas por la OMS. Estos criterios vienen recogidos en el artículo 5 y en el Anexo I del Real Decreto y se presentan a continuación.

Los parámetros y valores paramétricos que se contemplan en el Real Decreto se clasifican en: microbiológicos, químicos, indicadores y radiactividad. Atendiendo a este último, que es en el que nos centramos en este trabajo, las magnitudes y valores de referencia que hay que tener en cuenta son los que se muestran en la tabla que se expone a continuación (Tabla 4.1).

Parámetro	Valor paramétrico
Dosis indicativa total	0,10 mSv/año
Tritio	100 Bq/l
Índice de actividad $\alpha$ total	0,1 Bq/l
Índice de actividad $\beta$ resto	1 Bq/l

Tabla 4.1: Dosis efectiva debido a la ingesta de  $^{210}\text{Po}$  en las distintas regiones ordenados en función de un mayor consumo de pescados y mariscos

Hay que señalar, que de la dosis indicativa total (DIT), quedan excluidos  $^3\text{H}$ ,  $^{40}\text{K}$ , Rn y los productos derivados de la desintegración del Rn. Del índice de actividad  $\beta$  resto se excluyen  $^3\text{H}$  y  $^{40}\text{K}$ .

## 4.2 Consumo de aguas minerales.

Existe una gran diferencia entre las distintas aguas destinadas a consumo. Distinguiremos las aguas minerales del agua potable de grifo. Siendo la primera apta para su consumo humano en su estado original y la segunda debiendo ser sometida a distintos tratamientos para garantizar la seguridad alimentaria.

El agua del grifo es de origen superficial y su composición sufre grandes cambios a través de un largo recorrido desde su origen hasta su punto de consumo. Con la finalidad de poderla hacer salubre, sufre unos procesos de desinfección en los que intervienen procesos tanto físicos como químicos. La multitud de factores que van a intervenir en la potabilización de cada agua van a provocar que su composición final sea variable.

Si bien es cierto que una gran parte del agua de grifo que se consume en España está valorada como de excelente calidad, también es cierto que en algunas zonas el agua es muy dura ya que posee una gran cantidad de sales de magnesio y cal.

Los grandes núcleos urbanos poseen en general unas buenas estaciones potabilizadoras de agua, que favorecen el buen tratamiento de las mismas, no es así normalmente el caso de las pequeñas localidades que se ven más limitadas en ello.

Las aguas minerales se caracterizan porque, al no recibir ningún tratamiento químico y microbiológico como las primeras y encontrarse confinadas y aisladas en un acuífero, están menos expuestas a fluctuaciones ambientales y contaminación, por lo que preservan su composición. Además, el proceso de filtración natural que sufren hace que adquieran un alto contenido en minerales. Por ende, contienen también cantidades trazas de radionucleidos naturales, fundamentalmente provenientes de las series del uranio y el torio. Además su confinamiento en depósitos subterráneos aislados evita la presencia de microorganismos y patógenos. Son múltiples las publicaciones que hablan sobre los beneficios de las aguas minerales.

Es verdad, como ahora a continuación se comentará, que las aguas minerales envasadas se han ido haciendo un hueco en el mercado, y su consumo sigue en auge. El estudio presentado a continuación se centra en las aguas minerales naturales de consumo habitual en España.

A la hora de plantearnos este estudio nos encontramos con que hay que tener especial cuidado, ya que no toda el agua embotellada que se vende en España es agua mineral natural. Se estima que ésta corresponde a un 95% del total, el 5 % restante se reparte entre aguas de manantial (agua subterránea, pura de origen, pero de composición variable) y agua potable preparada (agua tratada para su potabilización).

#### 4.2.1 Evolución en el uso y consumo de las aguas minerales

Tradicionalmente, las aguas minerales han sido consumidas por los posibles efectos



beneficiosos que estas producían en la salud. Los primeros atisbos de interés hacia las aguas minerales podemos situarlos en la época romana, la construcción de baños y termas deja patente el interés de esta civilización hacia ella. Si bien es cierto que Hipócrates, padre de la medicina, ya hablaba en el siglo IV a.C. de los beneficios de las mismas. Estos baños fueron evolucionando con el paso de los siglos a Balnearios, y empezaron a cobrar importancia. A raíz del creciente interés de la población por los beneficios de estos centros, los propietarios de estas instalaciones comenzaron a

envasar sus aguas y a distribuir las, esto hizo que a principios del siglo XX se comenzaran a comercializar las primeras aguas minerales en las farmacias, bajo el nombre de aguas mineromedicinales. Como dato curioso, en esta época se consideraba que la presencia de altas concentraciones de radionucléidos naturales en las aguas minerales elevaba su beneficio (Figura 4.1).

Las crecientes ventas y popularización de estos productos hicieron que en la década de los 50 comenzaran a estar presente en otros puntos de venta.

Según datos de la Asociación Nacional de Empresas de Aguas de Bebida Envasada (ANEABE) el 75% del mercado mundial de aguas de bebida envasada se localiza en Europa, y el consumo europeo de éstas no dejó de crecer en los últimos años, siendo 93 litros el consumo per cápita europeo, y concretamente siendo en España de 107 litros en 2011. España ha duplicado su consumo en los últimos diez años, situándose en cuarto lugar europeo como productor.

El agua envasada superó el consumo per cápita de refrescos y cervezas, las cuales estuvieron muchos años encima, en cuanto a consumo, de ésta [Martín. 2008].



Figura 4.2: Distribución general de los manantiales donde se extrajeron las muestras

### 4.3 Muestras analizadas

Un total de 32 marcas han sido analizadas para este estudio, en dos de estas marcas se ha llevado un seguimiento temporal. En total se van a presentar 44 resultados de medidas de concentración de  $^{210}\text{Po}$  en aguas. Para la mayor parte de ellas también se han determinado las concentraciones de  $^{234}\text{U}$  y  $^{238}\text{U}$ . Todas las botellas de agua mineral natural analizadas han sido adquiridas en distintos comercios de la geografía española para buscar una mejor representatividad de los resultados. Son marcas que se encuentran fácilmente en cualquier comercio y algunas muy conocidas por la población. Para preservar el anonimato de las distintas marcas comerciales, evitando cualquier tipo de publicidad o posible perjuicio, los resultados se van a asociar a una nomenclatura de códigos.

Con el fin de que quede clara la distribución de las muestras, a continuación se va a mostrar en la Figura 4.2 los puntos de los cuales provienen según el etiquetado las distintas muestras adquiridas. Quedan ausentes del mapa, las muestras cuyos códigos son el 1, 7 y 8 por tratarse de aguas minerales extranjeras.

Con el fin de que quede cada muestra asociada al sustrato geológico donde se extrajo, presentamos una tabla (Tabla 4.2) en la que hemos relacionado los puntos de adquisición de las muestras con mapas facilitados por el Instituto Geológico y Minero de España (IGME).

Código de Muestra	Nombre del Manantial	Lugar de Explotación	Geología Predominante de la zona
1	Cachat	Evian (Francia)	
2	Font Natura	Loja (Granada)	Calizas, Margas y Arcillas
3	Eliqua	Salem (Valencia)	Calizas, Margas y Dolomias
4	Fuente de Solán de Cabras	Beteta (Cuenca)	Calizas, Margas y Arenas
5	Bezoya Trescasas	Trescasas (Segovia)	Adamellitas, Leucogranitos
6	Sigüenza	Sigüenza (Guadalajara)	Calizas, Areniscas, Cuarcitas y Pizarras
7	Cambrian	Bethania (Reino Unido)	
8	Fuente de Voss	Vatnestrom (Noruega)	
9	Montepinos	Almazán (Soria)	Limos, Arcillas, Calizas
10	Fonte Forte	Lanjarón (Granada)	Conglomerados, Mármoles, Esquistos, Calizas y Filitas
11	Montepinos	Almazán (Soria)	Limos, Arcillas y Calizas
12	Fontoira	Cospeito (Lugo)	Esquisto, Cuarcita y Granito

Código de Muestra	Nombre del Manantial	Lugar de Explotación	Geología Predominante de la zona
13	Fuensanta de Buyer	Nava (Asturias)	Calizas y Pizarras
14	Fontecelta	Sarriá (Lugo)	Calizas, Pizarras y Granito
15	Fontdor	Sant Hilari Sacalm (Girona)	Arcillas, Esquisto y Leucogranito
16	Fuente Blanca	Villanueva del Arzobispo (Jaén)	Calizas, Dolomias y Conglomerados
17	El Chumacero	Valencia de Alcántara (Cáceres)	Cuarcitas, Granitos, Pizarras y Esquistos
18	San Antonio de Requena	Requena (Valencia)	Calizas, Arcillas y Dolomias
19	Cabreiroá	Verín (Ourense)	Pizarras, Esquistos y Granitos
20	Sierra de Cazorla	Villanueva del Arzobispo (Jaén)	Calizas, Dolomias y Conglomerados
21	Sierra de Cazorla	Villanueva del Arzobispo (Jaén)	Calizas, Dolomias y Conglomerados
22	Ribagorza	Graus (Huesca)	
23	Aguadoy	Calera y Chozas (Toledo)	Arenas, Gravas y Granitos
24	Fuente del Arca	Beteta (Cuenca)	Calizas, Margas y Arenas
25	Fuente Arquillo	El Robledo (Albacete)	
26	Balneario de Concorte	Soncillo (Burgos)	Calizas, Dolomias y Areniscas
27	Valtorre	Belvis de la Jara (Toledo)	Conglomerados, Pizarras y Granitos
28	Los Riscos de la Higüela	Alburquerque (Badajoz)	Cuarcitas, Granitos y Esquistos
29	Bronchales 3	Bronchales (Teruel)	Calizas, Cuarcitas y Pizarras
30	Fuente del Arca	Beteta (Cuenca)	Calizas, Margas y Arenas
31	Las Jaras	Herrera del Duque (Badajoz)	Cuarcitas, Pizarras y Diablasas
32	Fuente Primavera	Requena (Valencia)	Calizas, Arcillas y Dolomias

Tabla 4.2: Nombre de los manantiales, localizaciones de las muestras analizadas y geología predominante de la zona[MAGNA 50]

Si observamos la tabla (Tabla 4.2), podemos ver que distintas muestras comparte manantial. En nuestro caso una de ellas es una marca blanca que se comercializa en algún comercio.



#### 4.4 Resultados de actividades de $^{210}\text{Po}$

El  $^{210}\text{Po}$  ( $T_{1/2} = 138,376$  d) es un radioisótopo que pertenece a la serie del uranio, descendiente directo del  $^{210}\text{Pb}$  ( $T_{1/2} = 22,3$  a), con el que alcanza el equilibrio secular en muestras aisladas más de 400 días. El esquema de desintegración es el siguiente:



Las muestras de las cuales presentamos los resultados a continuación han sido analizadas inmediatamente después de su adquisición, pero desconocemos el momento de su embotellado, por esta razón no se puede considerar que exista equilibrio secular entre el  $^{210}\text{Po}$  y el  $^{210}\text{Pb}$ . Sin embargo, como la recogida de muestras se hizo de una manera semejante a la adquisición del agua por la población, las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  que se van a presentar se pueden considerar representativas de lo ingerido por la población que las consume, independientemente de si este radionucleido ha experimentado variaciones en su concentración desde que el agua fue embotellada debido a la presencia de su progenitor el  $^{210}\text{Pb}$ .

Para la determinación de las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  e isótopos de uranio se ha aplicado, en cada análisis, un método de separación de radioelementos, aislamiento de cada uno de los elementos (uranio y polonio) y concentración para su posterior medida, ésta última se ha realizado utilizando un sistema de espectrometría alfa. Dichos métodos se detallaron en el capítulo anterior de esta memoria. El método de determinación secuencial de  $^{210}\text{Po}$  e isótopos de uranio ha sido validado a través de participaciones en ejercicios de intercomparación de ámbito nacional e internacional organizados por el Consejo de Seguridad Nuclear y el Organismo Internacional de la Energía Atómica (OIEA), respectivamente.

A continuación en la Tabla 4.3 se recopilan los resultados obtenidos para las 32 muestras analizadas, expresando las incertidumbres asociadas a cada determinación con criterio de un sigma.

Muestra	$^{210}\text{Po}$ (mBq/ℓ)	Muestra	$^{210}\text{Po}$ (mBq/ℓ)
1	1,8 ± 0,3	17	46±5
2	2,8±0,4	18	20,5±1,1
3	3,9±0,6	19	2,2±0,3
4	2,4±0,3	20	1,1±0,2
5	10,3±1,1	21	4,2±0,4
6	2,0±0,2	22	2,3±0,3
7	2,0±0,4	23	2,4±0,3
8	1,9±0,3	24	<0,8
9	2,3±0,3	25	0,7±0,1
10	3,4±0,3	26	1,1±0,2
11	1,3±0,3	27	5,7±0,5
12	3,7±0,6	28	6,5±0,6
13	4,9±0,4	29	10,0±0,6
14	<0,7	30	1,0±0,2
15	4,0±0,3	31	41,2±2,3
16	1,3±0,2	32	<1,6

Tabla 4.3: Concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{234}\text{U}$  y  $^{238}\text{U}$  (en mBq/ℓ) determinadas en botellas de agua mineral comercial analizadas en este trabajo

En los casos en que se ha podido obtener la medida  $^{210}\text{Po}$  por encima del límite de detección de la técnica aplicada, las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  se encuentran en un rango desde 1,0±0,2 hasta 46±5 mBq/ℓ. El valor medio calculado es de 6±11 mBq/ℓ, aunque en la mayoría de las muestras las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  se encuentran por debajo de los 5 mBq/ℓ (Figura 4.3). Como podemos observar en la Figura 4.3, tenemos 25 resultados por debajo de 5 mBq/ℓ, 4 resultados entre 5 y 10 mBq/ℓ, un resultado entre 10 y 20 mBq/ℓ y dos resultados con más de 20 mBq/ℓ.

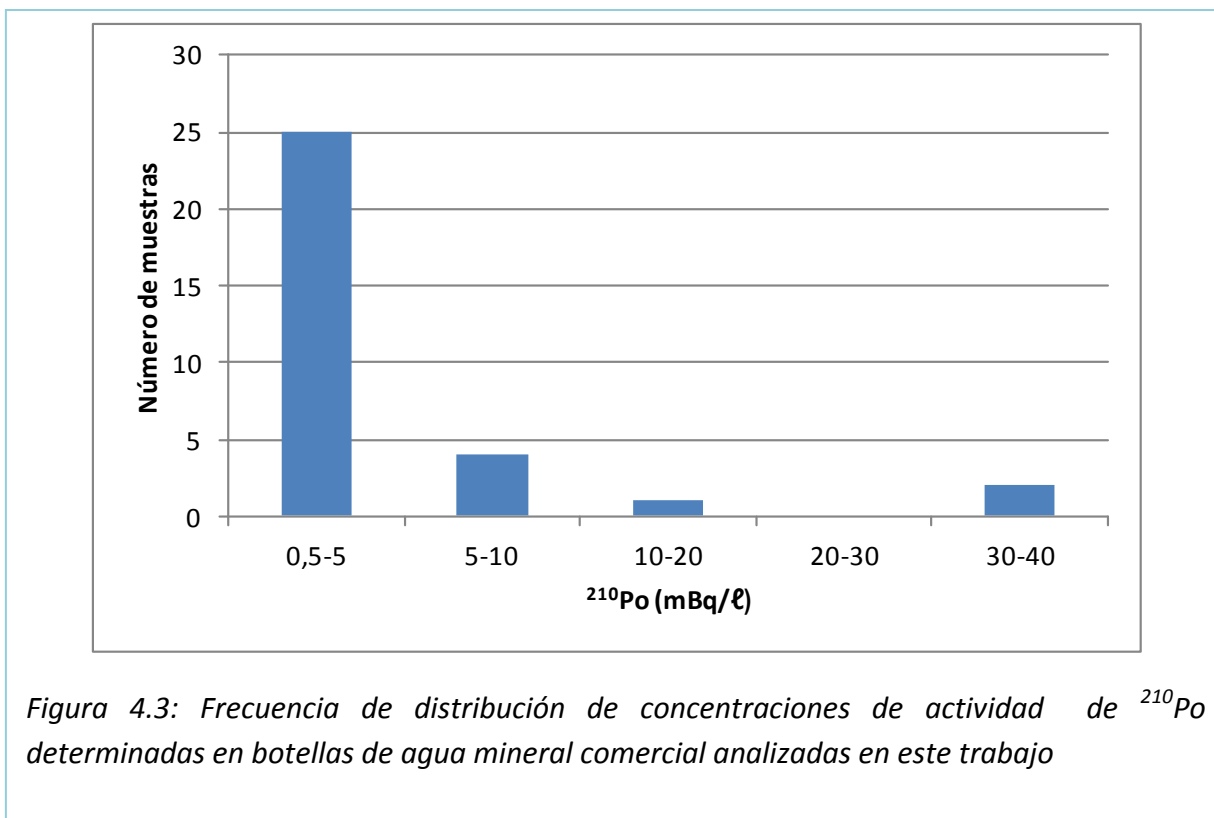


Figura 4.3: Frecuencia de distribución de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  determinadas en botellas de agua mineral comercial analizadas en este trabajo

Analizando estudios análogos realizados por distintos grupos de investigación de otros países podemos enunciar que son completamente concordantes con los mismos, validando de forma cualitativa los resultados obtenidos en este estudio. A modo comparativo podemos observarlos en la Tabla 4.4.

$^{210}\text{Po}$	España	Hungría [Kovács et al. 2003]	Austria [Katzlberger et al. 2000]	Polonia [Skwarzec et al. 2002]	Italia1 [Jia et al. 2007]	Italia2 [Desideri et al. 2007]	Brasil [Nieri et al. 1998]
$A_{\min}$	0,7±0,1	2,5±0,5	0,4±0,1	0,35±0,02	0,13±0,01	0,04	3
$A_{\max}$	49±5	19±2	6,1±0,4	3,43±0,08	11,3±0,5	21,01	398
$A_m$	6±11	7±6	1,9±1,8	1,3±1,0	3±3	2±4	76±105

Tabla 4.4: Comparativa de resultados de  $^{210}\text{Po}$  para muestras de agua mineral de distintos países donde  $A_{\min}$ =Actividad Mínima (mBq/ℓ),  $A_{\max}$ =Actividad máxima (mBq/ℓ),  $A_m$ =Actividad Media (mBq/ℓ).

Observamos que estos valores se encuentran entre un mínimo de 0,04 y 49±2 mBq/l en el caso de estudios de muestras europeas. En el caso de los valores encontrados en el estudio realizado en Brasil por Nieri y Mazzilli[Nieri et al. 1998], sin poner en duda la veracidad y calidad de estos resultados, la concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  se encuentra en un rango superior a los hallados en estudios europeos, superando bastante la media. A la hora de realizar cálculos de dosis indicativa total, como ya presentaremos más adelante se va a acercarse a los 0,1mSv/año, estas altas

concentraciones son justificadas en el estudio por la presencia en el sustrato por el que discurren y se forma este agua en cuya composición hay presencia de  $\text{U}_3\text{O}_8$ .

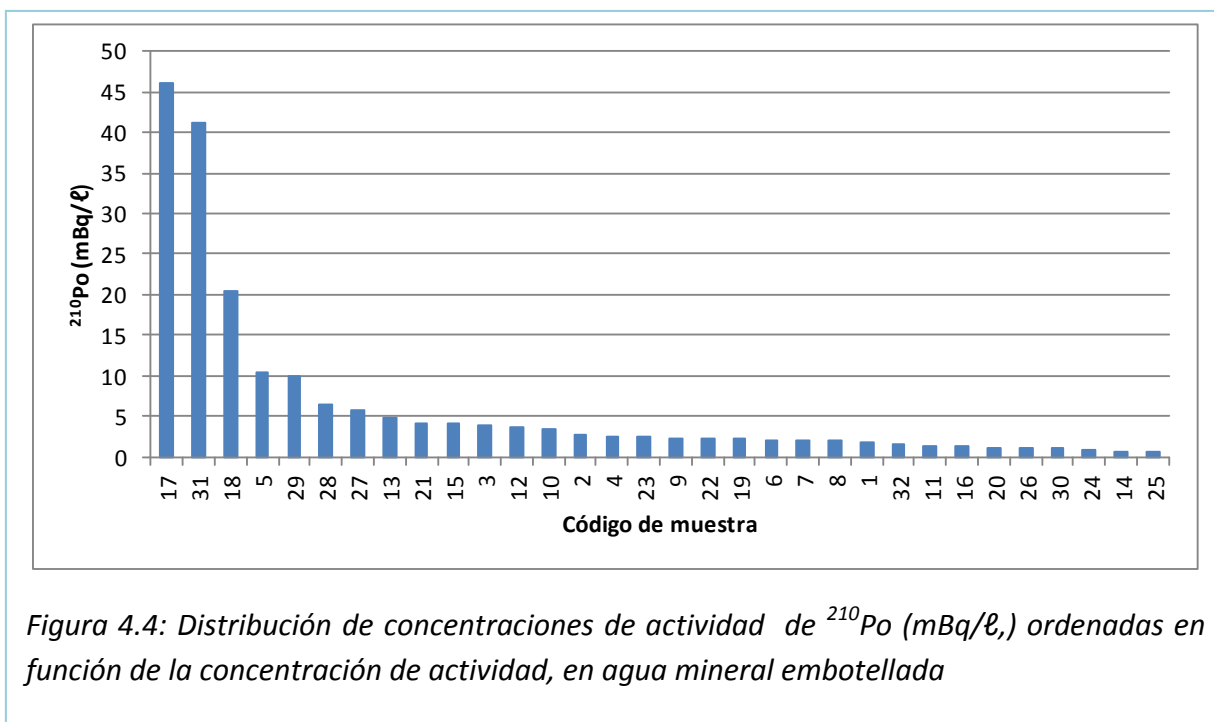


Figura 4.4: Distribución de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  (mBq/l,) ordenadas en función de la concentración de actividad, en agua mineral embotellada

Es reseñable el hecho de que las muestras que mayor concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  presentan, que se corresponden a las muestras 17 y 31 (Figura 4.4), se encuentran en una zona donde la litología predominante presenta rocas de origen plutónico. En el caso de la muestra 17, se encuentran granitos, y en el caso de la 31 diablasas o también conocidas como “cuarzo negro”.

#### 4.5 Resultados de actividades de isótopos de uranio

El uranio natural es una mezcla de tres isótopos:  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  y  $^{234}\text{U}$ , que presentan proporciones fijas. De los tres isótopos, el más abundante es el  $^{238}\text{U}$ . El uranio en el medio ambiente puede encontrarse en estado de oxidación bajo, reducido, o alto, oxidado. El uranio natural se encuentra fundamentalmente en rocas ígneas como el granito. Debido a la acción de las aguas subterráneas el uranio de las rocas ígneas se oxida y disuelve, de manera que puede ser observado en aguas minerales subterráneas.

De forma simultánea y secuencial a las determinaciones de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$ , se determinaron en las distintas muestras de aguas minerales las concentraciones de actividad de los isótopos de uranio, concretamente de  $^{238}\text{U}$  y  $^{234}\text{U}$ . Los resultados obtenidos se encuentran recopilados en la Tabla 4.5.

El rango de valores entre los que se encuentran los resultados obtenidos es bastante más amplio que el previamente encontrado para el  $^{210}\text{Po}$ . En el caso del  $^{234}\text{U}$ , el rango de valores se encuentra entre  $<0,25$  y  $173\pm 6$  mBq/ℓ, y para el  $^{238}\text{U}$  encontramos valores comprendidos entre  $<0,5$  y  $80\pm 2$  mBq/ℓ. Con una media de  $20\pm 35$  y  $11\pm 18$  mBq/ℓ respectivamente.

Muestra	$^{234}\text{U}$ (mBq/ℓ)	$^{238}\text{U}$ (mBq/ℓ)	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	Muestra	$^{234}\text{U}$ (mBq/ℓ)	$^{238}\text{U}$ (mBq/ℓ)	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
1	21,8±1,2	18,4±1,0	1,19	17	8,4±0,6	9,8±0,6	0,86
2	11,8±0,9	9,1±0,8	1,30	18	1,0±0,2	<0,45	2,36
3	20,6±1,1	14,0±0,9	1,47	19	1,5±0,4	1,1±0,4	1,31
4	59,7±2,7	26,6±1,7	2,25	20	---	---	---
5	1,7±0,2	1,4±0,2	1,22	21	29,5±1,0	19,6±0,8	1,51
6	31,1±1,3	11,9±0,8	2,61	22	9,5±0,8	3,4±0,4	2,77
7	0,6±0,4	<0,8	0,79	23	173±6	71±3	2,43
8	0,5±0,2	<2,0	0,52	24	13,2±0,6	6,4±0,4	2,07
9	33,3±1,7	8,9±0,8	3,74	25	13,5±0,8	5,4±0,5	2,49
10	4,9±0,8	4,0±0,7	1,23	26	1,1±0,3	<0,9	1,20
11	32,1±1,1	8,6±0,5	3,76	27	8,8±0,5	4,4±0,3	2,01
12	5,2±0,5	2,7±0,3	1,97	28	6,4±0,7	7,0±0,7	0,91
13	2,1±0,2	0,6±0,1	3,70	29	1,6±0,2	0,9±0,2	1,70
14	0,8±0,2	<0,5	1,81	30	8,6±0,5	4,0±0,3	2,17
15	102±2	80±2	1,27	31	7,4±0,6	8,7±0,7	0,85
16	<0,2	<0,5	0,49	32	11,1±0,9	11,7±0,9	0,95

Tabla 4.5: Concentraciones de actividad de  $^{234}\text{U}$  y  $^{238}\text{U}$  (en mBq/ℓ) determinadas en botellas de agua mineral comercial analizadas en este trabajo

Las concentraciones de actividad de  $^{238}\text{U}$  más frecuentes han quedado por debajo de 5 mBq/ℓ (Figura 4.5). También se han observado concentraciones de actividad de  $^{238}\text{U}$

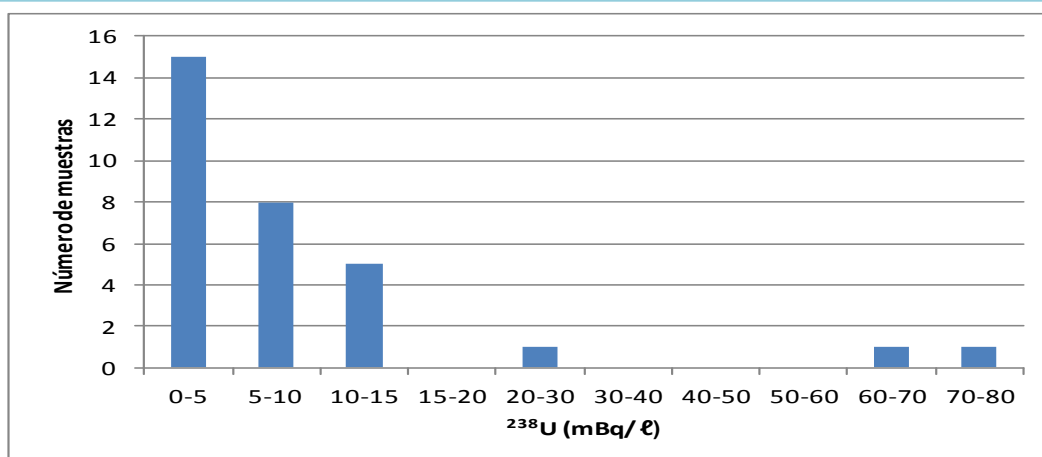


Figura 4.5: Frecuencia de distribución de concentraciones de actividad de  $^{238}\text{U}$  determinadas en botellas de agua mineral comercial analizadas en este trabajo

entre 5 y 15 mBq/ℓ. En muy pocos casos la concentración de actividad de  $^{238}\text{U}$  ha superado los 20 mBq/ℓ.

Los valores más altos que se han encontrado en concentraciones de uranio, se asocian a zonas con una litología donde de nuevo vuelve a estar presente el granito.

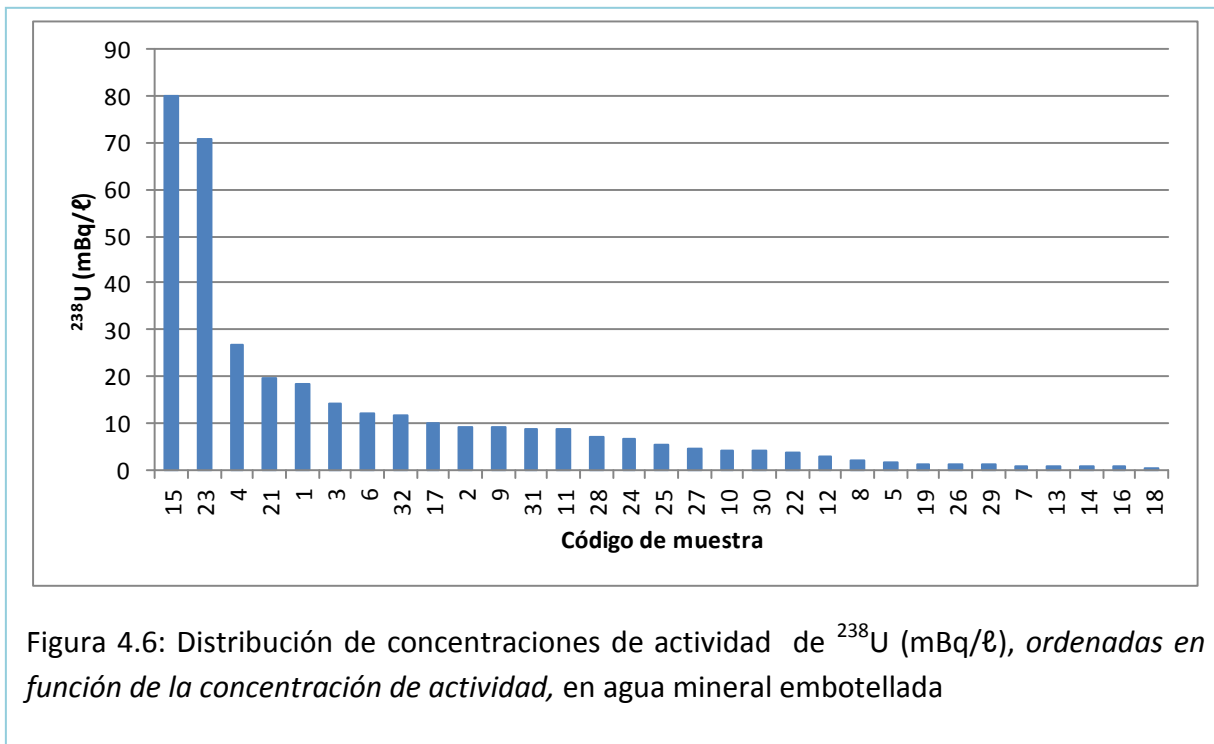


Figura 4.6: Distribución de concentraciones de actividad de  $^{238}\text{U}$  (mBq/ℓ), ordenadas en función de la concentración de actividad, en agua mineral embotellada

Estos valores más altos han correspondido a las muestras 15 y 23 (Figura 4.6), por encima de 70 mBq/ℓ. Hay un conjunto de muestras (4, 21, 1, 6 y 32) con valores intermedios (en el rango 1 – 30 mBq/ℓ), mientras que el resto queda por debajo de 1 mBq/ℓ.

Hay muestras de marcas diferentes pero que, según la etiqueta del producto, proceden del mismo manantial. Entre estos casos tenemos las muestras 9 y 11, que se obtienen en el manantial de Montepinos (Soria), en las que las concentraciones de actividad resultaron ser  $8,9 \pm 0,8$  y  $8,6 \pm 0,5$ , respectivamente. Casos similares son las muestras 20 y 21, de Sierra de Cazorla (Jaén), y las muestras 24 y 30, de Fuente del Arca (Cuenca). Se puede decir que, en estos casos, las medidas de isótopos de uranio confirman las especificaciones de las marcas de agua mineral embotellada. Los grupos de muestras 4 y 30, así como 16, 20 y 21, se encuentran en las mismas localidades aunque algunas no compartan punto de extracción (Figura 4.6). Los resultados obtenidos en la concentración de radionucleido de estudio son concordantes. No es así para el caso del grupo de muestras 18 y 32, que proceden de manantiales de Requena (Valencia), caso para el cual los resultados no se encuentran cercanos.

Las muestras 9 y 11, comparten el mismo lugar de extracción, presentando valores de concentración muy similares. No ocurre tanto así para las muestras 24 y 30, en las cuales el valor para el  $^{234}\text{U}$  difiere un poco entre sí.

Los grupos de muestras 4 y 30, 18 y 32, 16 y 20, comparten localización aunque no manantial, y los resultados en este caso para todos los grupos son dispares entre sí.

De la misma forma que se ha realizado para el  $^{210}\text{Po}$ , en la Tabla 4.6 se presentan resultados de  $^{234}\text{U}$  hallados en otros estudios similares.

$^{234}\text{U}$	España	Hungría [Kovács et al. 2003]	Austria [Katzlberger et al. 2000]	Polonia [Skwarzec et al. 2002]	Italia1 [Jia et al. 2007]	Italia2 [Desideri et al. 2007]
$A_{\min}$	<0,25	<2	1,4±0,2	0,35±0,01	0,25±0,06	0,17
$A_{\max}$	173±6	92±16	79±4	1,49±0,01	135±4	79
$A_m$	20±35	15±24	23±29	0,8±0,4	28±36	12±15

Tabla 4.6: Comparativa de resultados de  $^{234}\text{U}$  para muestras de agua mineral de distintos países donde  $A_{\min}$ =Actividad Mínima (mBq/ℓ),  $A_{\max}$ =Actividad máxima (mBq/ℓ),  $A_m$ =Actividad Media (mBq/ℓ)

Observamos que estos valores se encuentran entre un mínimo de <0,25 y 173±6 mBq/ℓ encontrándose también una mayor variabilidad en estos resultados que en los de  $^{210}\text{Po}$ . Aun así las medias se encuentran salvo en el estudio llevado por Skwarzec B, dentro de un rango similar.

#### 4.6 Razones de actividades $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ y $^{210}\text{Po}/^{238}\text{U}$ en las aguas minerales analizadas

Las razones de actividad  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  correspondientes a las muestras de aguas minerales analizadas se presentan en la Figura 4.7. En dicha figura podemos apreciar que las razones de actividad son mayoritariamente mayores que la unidad. Sólo en siete muestras encontramos un cociente isotópico  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  inferior a 1, aunque realmente sólo en dos de esas muestras lo hacen de forma significativa. Este hecho pone en evidencia la disolución preferencial del  $^{234}\text{U}$  frente al  $^{238}\text{U}$ . El  $^{234}\text{U}$  es descendiente del  $^{238}\text{U}$ , tras el decaimiento alfa de este último, y generalmente debido a su proceso de gestación, se encuentra en posiciones más asequibles de la estructura del sustrato que su progenitor, por ello es más fácilmente disuelto. El  $^{238}\text{U}$ , normalmente forma parte de la estructura cristalina que conforma la base del sustrato del acuífero. En la emisión alfa del  $^{238}\text{U}$ , los descendientes pueden experimentar cierto retroceso, pudiendo producir en algún caso la rotura cristalina y por ello quedar su situación más expuesta y disponible a la acción de agentes externos.

La razón de actividad  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  en las muestras 11 y 9, que proceden del mismo manantial de Montepinos (Soria), tiene el mismo valor (3,7), siendo éste el valor más alto que hemos encontrado en este estudio. Lo mismo sucede con la pareja de muestras 24 y 30, del manantial de Fuente del Arca (Cuenca).

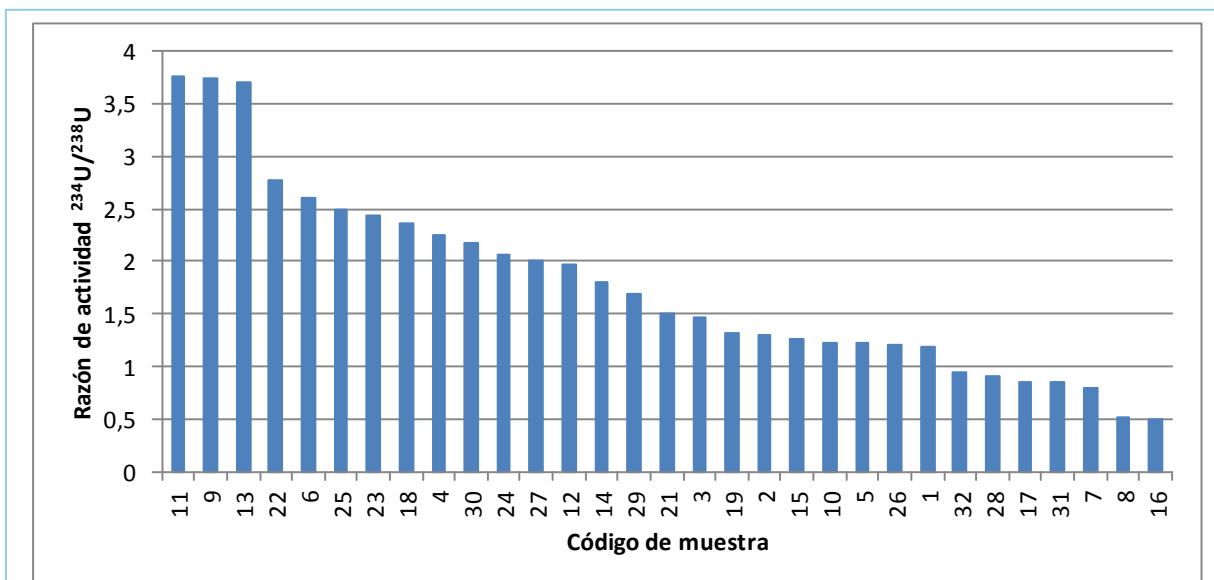


Figura 4.7: Distribución de las razones de actividad de  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  ordenadas en agua mineral embotellada

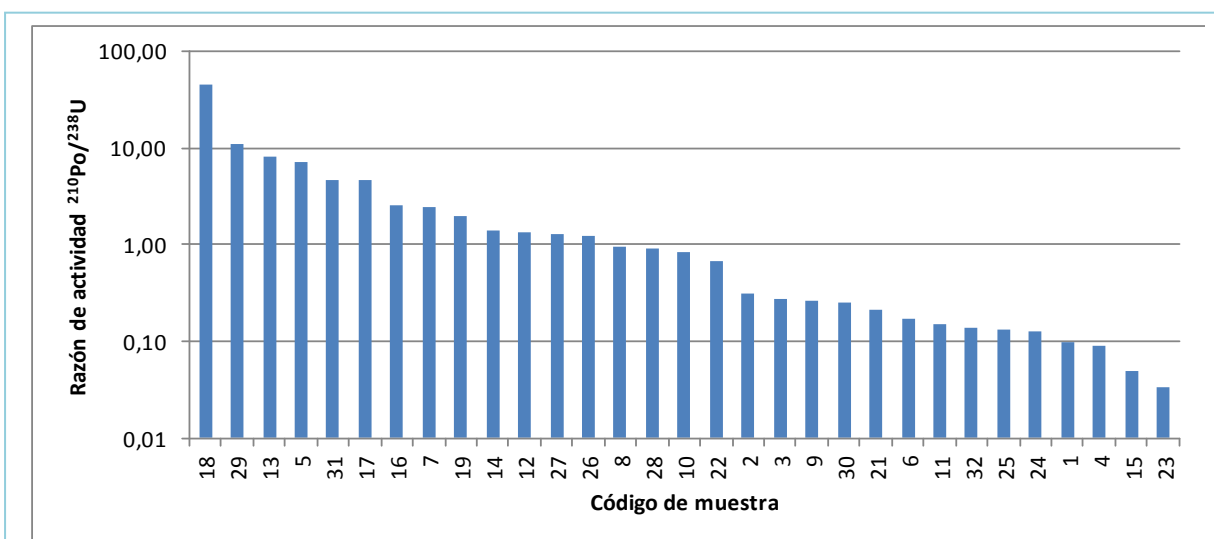


Figura 4.8: Distribución de las razones de actividad  $^{210}\text{Po}/^{238}\text{U}$  ordenadas en agua mineral embotellada



Las razones de actividad  $^{210}\text{Po}/^{238}\text{U}$  correspondientes a las muestras de aguas minerales analizadas se presentan en la Figura 4.8. En dicha figura tenemos razones de actividad superiores a la unidad (alrededor del 30 %), un conjunto de valores alrededor de la unidad y, mayoritariamente, otro conjunto de muestras con razones de actividad inferiores a la unidad. El hecho de encontrar concentraciones de actividad para los isótopos de uranio superiores a las de  $^{210}\text{Po}$ , puede relacionarse con la mayor tendencia del uranio a estar en disolución y mantenerse en este estado. Además, no podemos descartar la posibilidad de que exista desequilibrio entre el  $^{210}\text{Pb}$  y el  $^{210}\text{Po}$  en las muestras.

Esta última posibilidad ratifica la importancia de hacer un seguimiento temporal de estas marcas comerciales antes de sacar conclusiones definitivas. Con objeto de esto último, se hicieron análisis temporales de algunas de las marcas, tal y como se expondrá en el próximo apartado del estudio.

#### 4.7 Resultados de actividades de $^{210}\text{Po}$ en un estudio temporal de dos marcas comerciales distintas

Como bien se mencionó al comienzo de este capítulo, la aguas minerales, deben cumplir entre otros requerimientos, el mantener estable su composición. Son muchos los factores que determinan la composición química de un agua, siendo algunos de ellos inestables en el tiempo y difíciles de controlar, como podría ser en mantenimiento del caudal del manantial. Es por ello que se planteó este apartado, con el fin de observar si había variaciones temporales en las concentraciones del radionucleido en el que nos centramos en este trabajo.

Para ello, se eligieron dos de las marcas comerciales, concretamente las que se presentaron en el apartado anterior con los códigos 31 y 17, y que ahora en éste llamaremos A y B respectivamente. Con una periodicidad de 6 meses aproximadamente, se adquirió en el comercio una nueva botella de cada una, y se procedió a la determinación de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$ , cada nueva muestra va codificada con un número del 1 al 4 siendo la 1 la primera en adquirirse y la 4 la última. Para corroborar la bondad de los resultados, se realizó un duplicado de cada muestra, en la Tabla 4.7 van a quedar mostrados con la sigla R al lado del nombre de la muestra.

Con el fin de hacer asociaciones a las fluctuaciones de los parámetros que determinan la composición de las aguas, nos pusimos en contacto con las marcas que comercializan esas aguas para intentar conocer la fecha de extracción de las mismas a partir de datos del envase. Ninguna de las empresas, escépticas del trabajo que se quería llevar a cabo y de la confidencialidad del mismo, facilitó ningún dato, con lo

que se limitó este estudio y se imposibilitó el poder sacar conclusiones más concluyentes del mismo.

Las muestras estudiadas se extrajeron de la zona centroibérica de la península, concretamente de la región de Extremadura. La muestra A, pertenece a Herrera del Duque (Badajoz), tratándose del manantial de las Jaras, y la muestra B proviene del manantial El Chumacero en Valencia de Alcántara (Cáceres). La geología de Herrera del Duque se caracteriza por la presencia de diablasas, pizarras, cuarcitas y areniscas de grano medio, con presencia de óxidos de hierro[MAGNA 756]. Valencia de Alcántara presenta características litológicas similares, presentado presencia de cuarcitas, granitos, pizarras, esquistos e impregnaciones de óxido de hierro [MAGNA 701].

Conociendo que la zona de donde provienen las muestras aquí presentadas están asentadas sobre suelo granítico, y que este tipo de roca se caracteriza por ser una de las rocas con mayor contenido natural de  $^{238}\text{U}$ , no sorprende que dichas muestras que se han seleccionado son las que mayor concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  presentes en el estudio.

Muestra	$^{210}\text{Po}$ (mBq/ℓ)	Muestra	$^{210}\text{Po}$ (mBq/ℓ)
A1	39,6±1,2	B1	49,4±1,7
A1R	42,8±3,1	B1R	42,0±1,2
A2	16,5±1,0	B2	73,7±1,8
A2R	19,0±1,0	B2R	69,9±2,0
A3	48,3±1,7	B3	15,3±1,0
A3R	50,9±1,8	B3R	17,0±1,0
A4	31,5±1,1	B4	33,2±1,2
A4R	32,2±1,1	B4R	35,0±1,2

Tabla 4.7: Comparativa de resultados de concentraciones de actividad  $^{210}\text{Po}$  (mBq/ℓ) y duplicados(R) para muestras de agua mineral de dos marcas distintas (A y B), adquiridas con una evolución temporal

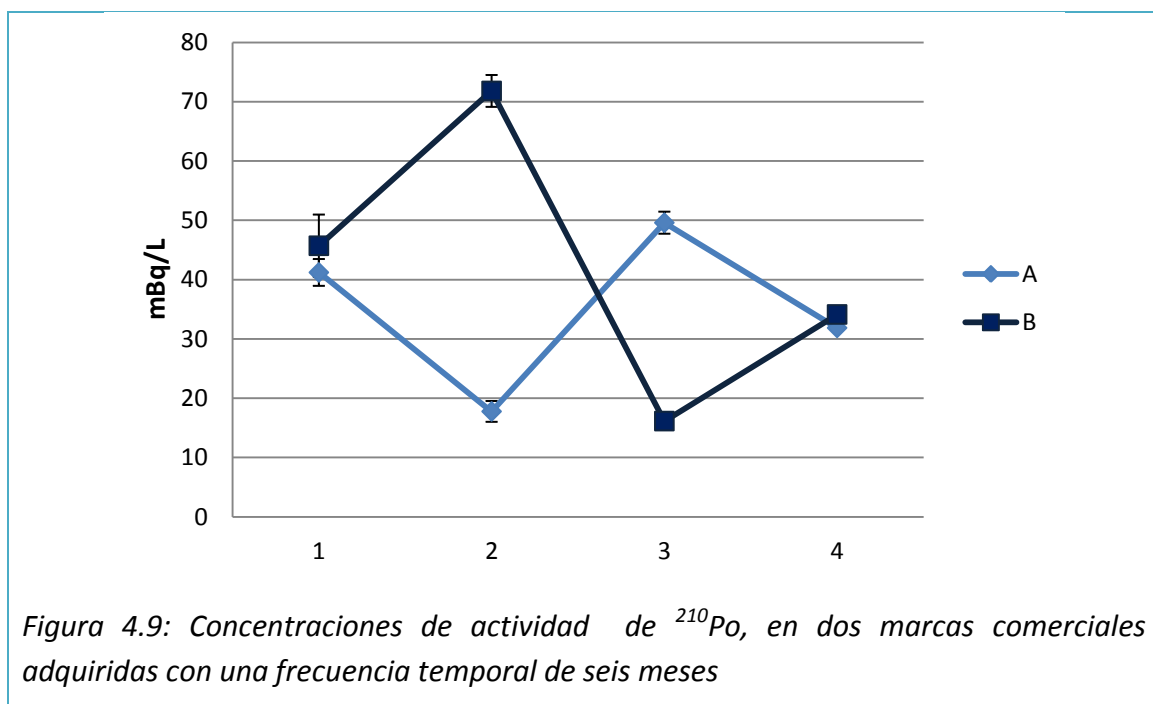
Tomando valores medios para las dos alícuotas de cada muestra analizada, para la muestra A se encuentran valores a lo largo del tiempo comprendidos entre  $18\pm 2$  y  $50\pm 2$  mBq/ℓ. En el caso de la muestra B el rango es mayor ya que se obtienen resultados entre  $16,1\pm 1,2$  y  $72\pm 3$  mBq/ℓ. Presentando una media de  $35\pm 13$  mBq/ℓ en el caso de la muestra A, y  $42\pm 22$  mBq/ℓ para la muestra B.

Se observa claramente la existencia de una variabilidad temporal en los resultados, que se podría relacionar con el hecho de que el  $^{210}\text{Po}$  se encuentra en crecimiento, como consecuencia de la desintegración del  $^{210}\text{Pb}$ , con el que no habría alcanzado el equilibrio secular.

A pesar de tomar un mismo intervalo de tiempo, seis meses, para la recogida sucesiva de muestras, no podemos asegurar que las muestras lleven embotelladas el mismo

tiempo, ya que eso dependerá de la distribución del producto de cada marca comercial.

Es observable en la Figura 4.9 la existencia de un comportamiento opuesto en los dos casos. La muestra A comienza disminuyendo, luego aumenta alcanzando el máximo valor para finalmente disminuir. La muestra B, por el contrario, comienza aumentando hasta alcanzar el máximo valor, luego disminuye hasta el mínimo para finalmente aumentar la concentración de actividad. Tanto en la primera muestra como en la última las concentraciones de actividad de ambas muestras son semejantes. La limitación en cuanto la adquisición de más datos sobre la muestra hace que las conclusiones se vean reducidas sobre el tema, aun así lo que si se puede decir al respecto es que las concentraciones de  $^{210}\text{Po}$  no se mantienen constantes.



#### 4.8 Resultados de dosis efectivas de $^{210}\text{Po}$ e isótopos de uranio en aguas minerales

Para la interpretación de los resultados de dosis obtenidos y que se muestran a continuación basta recordar que para las aguas destinadas a consumo humano la Directiva Europea (98/83 CE) y el Real Decreto 140/2003, basados en un informe de la OMS, fija la Dosis Indicativa Total (DIT), determinada para un consumo diario de 2 litros de agua para un adulto, en un valor máximo de 100  $\mu\text{Sv/año}$ , excluyendo las aportaciones debidas al tritio, al  $^{40}\text{K}$  y al radón y descendientes de éste de corto periodo de semidesintegración.

$^{210}\text{Po}$ (contribución a dosis comprometida por ingestión) $\mu\text{Sv/año}$					
Muestra	1-2 años	2-7 años	7-12 años	12-17 años	Adultos
1	5,8±1,0	5,8±1,0	3,4±0,6	2,1±0,4	1,6±0,3
2	9,0±1,2	9,0±1,2	5,3±0,7	3,3±0,5	2,5±0,3
3	12,4±1,9	12,4±1,9	7,3±1,1	4,5±0,7	3,4±0,5
4	7,7±0,8	7,7±0,8	4,6±0,5	2,8±0,3	2,1±0,2
5	33±4	33±4	20±2	12,0±1,3	9,0±1,0
6	6,5±0,6	6,5±0,6	3,9±0,4	2,4±0,2	1,8±0,2
7	6,5±1,5	6,5±1,5	3,8±0,9	2,3±0,6	1,8±0,4
8	6,1±0,9	6,1±0,9	3,6±0,6	2,2±0,4	1,7±0,3
9	7,3±1,2	7,3±1,2	4,3±0,7	2,7±0,4	2,0±0,3
10	10,8±0,9	10,8±0,9	6,4±0,6	3,9±0,4	2,9±0,3
11	4,3±1,0	4,3±1,0	2,5±0,6	1,5±0,4	1,2±0,3
12	12±2	11,8±2,0	7,0±1,2	4,3±0,7	3,2±0,6
13	15,7±1,4	15,7±1,4	9,3±0,8	5,7±0,5	4,3±0,4
14	<2,4	<2,4	<1,4	<0,9	<0,7
15	12,8±1,1	12,8±1,1	7,5±0,6	4,6±0,4	3,5±0,3
16	4,1±0,8	4,1±0,8	2,4±0,5	1,5±0,3	1,1±0,2
17	159±6	159±6	94±3	58±2	43,5±1,5
18	66±4	66±4	39±2	23,9±1,3	17,9±1,0
19	7,1±0,8	7,1±0,8	4,2±0,5	2,6±0,3	1,9±0,2
20	3,5±0,5	3,5±0,5	2,0±0,3	1,3±0,2	0,9±0,1
21	13,7±1,5	13,7±1,5	8,1±0,9	5,0±0,5	3,7±0,4
22	7,3±1,0	7,3±1,0	4,3±0,6	2,6±0,4	2,0±0,3
23	7,8±0,9	7,8±0,9	4,6±0,6	2,8±0,4	2,1±0,3
24	<2,6	<2,6	<1,6	<1,0	<0,7
25	2,4±0,4	2,4±0,4	1,4±0,3	0,9±0,2	0,6±0,1
26	3,5±0,6	3,5±0,6	2,1±0,4	1,3±0,2	1,0±0,2
27	18,3±1,5	18,3±1,5	10,8±0,9	6,6±0,5	5,0±0,4
28	20,8±1,9	20,8±1,9	12,3±1,1	7,6±0,7	5,7±0,5
29	32,2±1,8	32,2±1,8	19,0±1,1	11,7±0,6	8,8±0,5
30	3,2±0,6	3,2±0,6	1,9±0,3	1,1±0,2	0,9±0,2
31	132±7	132±7	78±4	48±3	36±2
32	5,3±0,1	5,3±0,1	3,1±0,1	1,9±0,1	1,4±0,1

Tabla 4.8: Contribución a la dosis efectiva por ingestión de  $^{210}\text{Po}$  (en  $\mu\text{Sv/año}$ ) para los distintos grupos de edades y las distintas marcas comerciales

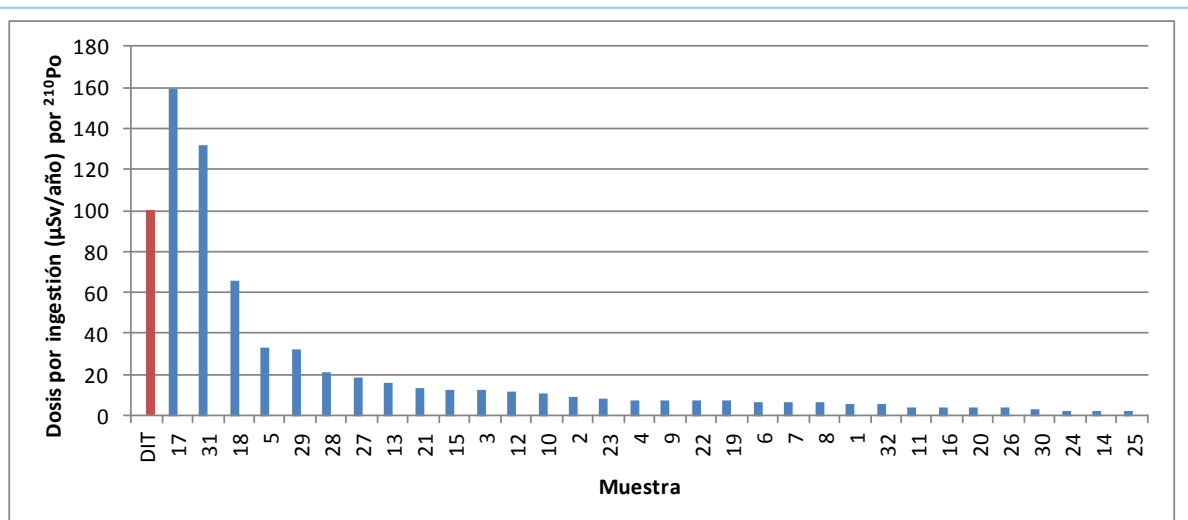


Figura 4.10: Dosis efectiva por ingesta de aguas minerales debida al  $^{210}\text{Po}$  ( $\mu\text{Sv/año}$ ) para niños de uno a dos años

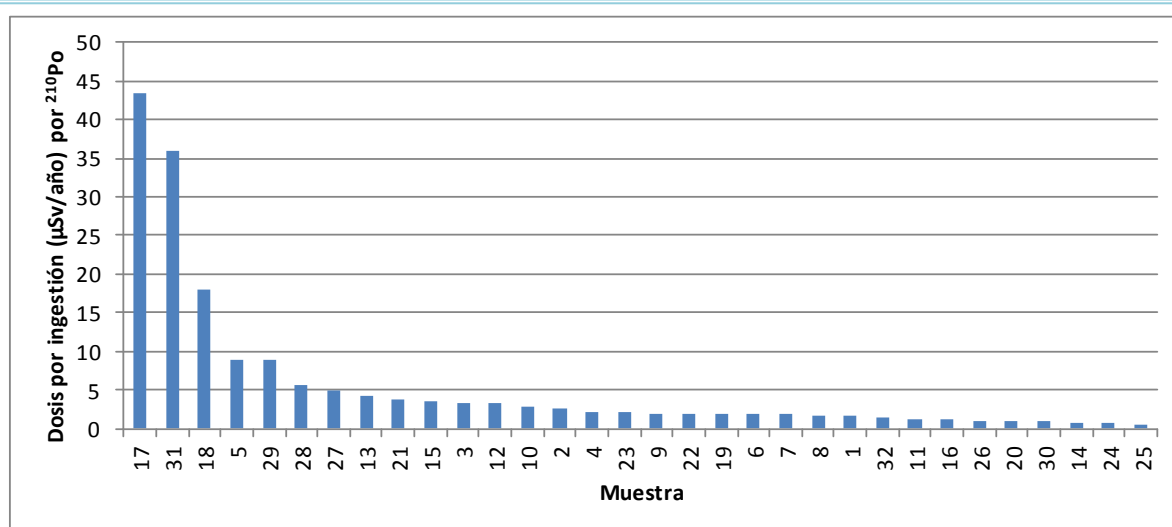


Figura 4.11: Dosis efectiva por ingesta de aguas minerales debida al  $^{210}\text{Po}$  ( $\mu\text{Sv/año}$ ) para individuos adultos

En la Tabla 4.8 se presentan los resultados obtenidos para la dosis efectiva de  $^{210}\text{Po}$  (en  $\mu\text{Sv/año}$ ), para los distintos grupos de edades y distintas marcas comerciales. Para el grupo de edad comprendido de 1 a 2 años la cantidad de agua ingerida que se ha considerado ha sido de 1 litro al día, mientras que para el resto se consideraron 2 litros diarios. Conforme la edad del grupo considerado disminuye, los valores de dosis por ingestión debido sólo a la contribución del  $^{210}\text{Po}$  va en aumento, ya que el coeficiente de dosis aumenta, dándose el caso de que, para la población infantil (Figura 4.10), hay

dos marcas que superan la DIT, en el caso de las muestras codificadas 17 y 31 y otro grupo de muestras supera un tercio ese valor de referencia. Estos valores de dosis efectiva debido a la ingesta de  $^{210}\text{Po}$  se encuentran entre  $<2,4$  y  $159\pm 6$   $\mu\text{Sv/año}$  con un promedio de  $20$   $\mu\text{Sv/año}$ . Los valores se encuentran entre  $0,6\pm 0,1$  y  $43,5\pm 1,5$   $\mu\text{Sv/año}$  para la población adulta (Figura 4.11), con un promedio de  $6\pm 10$   $\mu\text{Sv/año}$ , por lo que el valor del DIT no es superado por ninguna marca en este estudio, tal y como se puede observar en la figura, aunque hay un par de marcas que sí representan una fracción considerable de ese valor (muestras 17 y 31). Es remarcable que el valor de la DIT indicado, se corresponde a la aportación de todos los radionucleidos presentes en el agua, mientras que la dosis efectiva que hemos calculado se debe sólo a la contribución del  $^{210}\text{Po}$ .

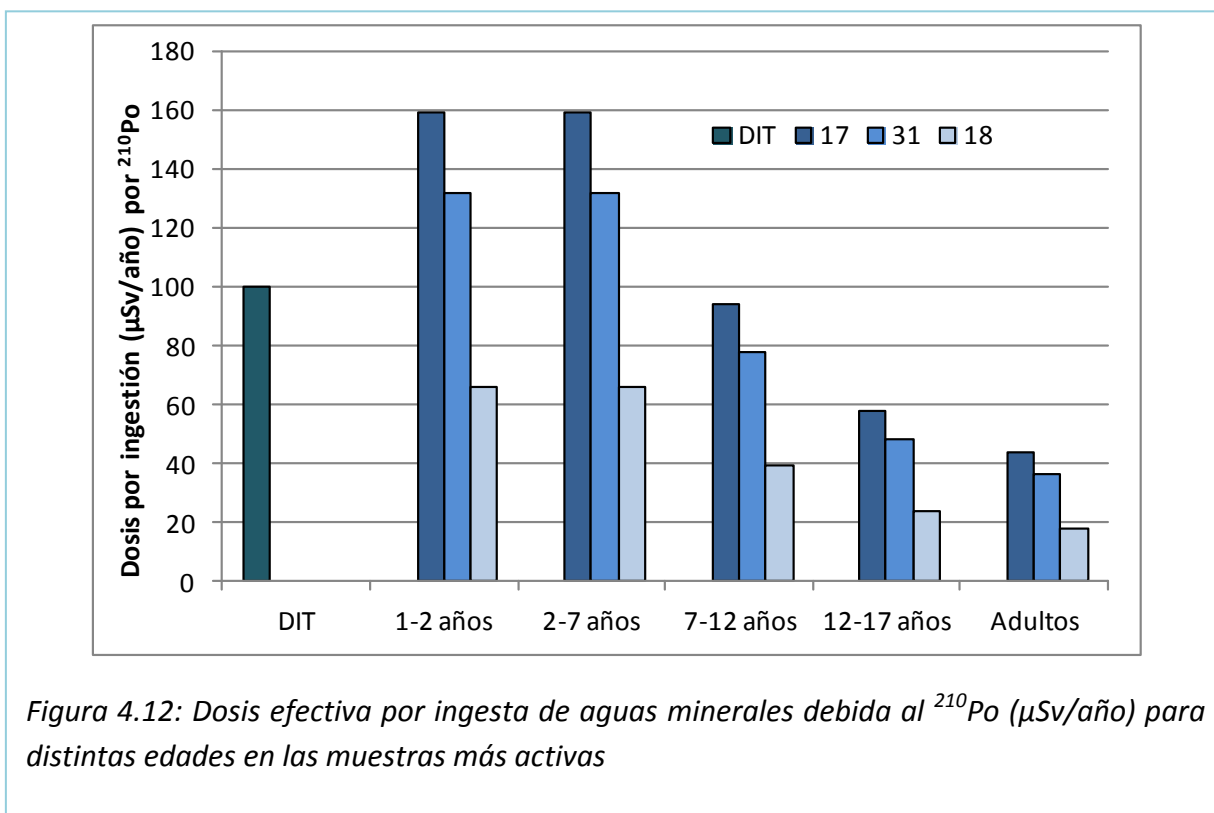


Figura 4.12: Dosis efectiva por ingesta de aguas minerales debida al  $^{210}\text{Po}$  ( $\mu\text{Sv/año}$ ) para distintas edades en las muestras más activas

No debe interpretarse el valor fijado de la Dosis Indicativa Total como un valor límite que tras superarse pueda tener automáticamente consecuencias adversas en la población que los consuma. El alto grado de conservadurismo, refleja el valor máximo ideal de la dosis por ingestión de agua que debería recibir la población.

El hecho de que el valor de la DIT (Figura 4.12) sea superado en algunas muestras para algunos grupos de edades, debe propiciar el estudio más al detalle de las mismas haciendo estudios temporales y de uniformidad de resultados en lotes iguales, para finalmente tomar con ello una iniciativa en caso de ser necesario.

De forma análoga al apartado 4.4, se presentan cálculos obtenidos a partir de estudios realizados en otros países. Se van a presentar en la Tabla 4.9 valores de Dosis Efectiva Media calculadas para adultos y expresadas en  $\mu\text{Sv/año}$ .

$^{210}\text{Po}$	España	Hungría [Kovács et al. 2003]	Austria [Katzlberger et al. 2000]	Polonia [Skwarzec et al. 2002]	Italia [Jia et al. 2007]	Italia2 [Desideri et al. 2007]	Brasil [Nieri et al. 1998]
$D_{EM}$	$5\pm 10$	$6\pm 5$	$1,6\pm 1,6$	$1,2\pm 0,9$	$3\pm 3$	$2\pm 9$	$67\pm 92$

Tabla 4.9: Comparativa de resultados de dosis efectiva por ingestión de  $^{210}\text{Po}$  (en  $\mu\text{Sv/año}$ ) en adultos, en distintos estudios realizados

Los resultados obtenidos de dosis efectiva por ingestión de  $^{210}\text{Po}$  (en  $\mu\text{Sv/año}$ ) en adultos en los distintos estudios realizados por distintos grupos de investigación, se encuentran entre  $1,2\pm 0,9$  y  $67\pm 92$   $\mu\text{Sv/año}$ , obteniéndose una media de  $13\pm 24$   $\mu\text{Sv/año}$ .

En todos los países europeos, así como en nuestro estudio, el valor de la dosis efectiva por ingestión de un agua mineral debido al  $^{210}\text{Po}$  es inferior a priori, al fijado para la dosis indicativa total. En particular, el estudio realizado por Nieri et Mazzilli en Brasil el valor medio de la dosis efectiva por  $^{210}\text{Po}$  calculado, se acerca a  $0,1$  mSv/año, dado que una gran parte de las aguas minerales que aparecen en dicho estudio presenta concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  superiores a  $40$  mBq/ℓ, llegando algunas a alcanzar cerca de los  $400$  mBq/ℓ.

Aunque no se puede asumir la existencia de equilibrio secular entre el  $^{210}\text{Pb}$  y  $^{210}\text{Po}$ , se puede realizar una estimación del límite inferior en el cálculo de dosis efectiva debida al  $^{210}\text{Pb}$ , basados en los resultados obtenidos para las concentraciones de actividad del  $^{210}\text{Po}$ .

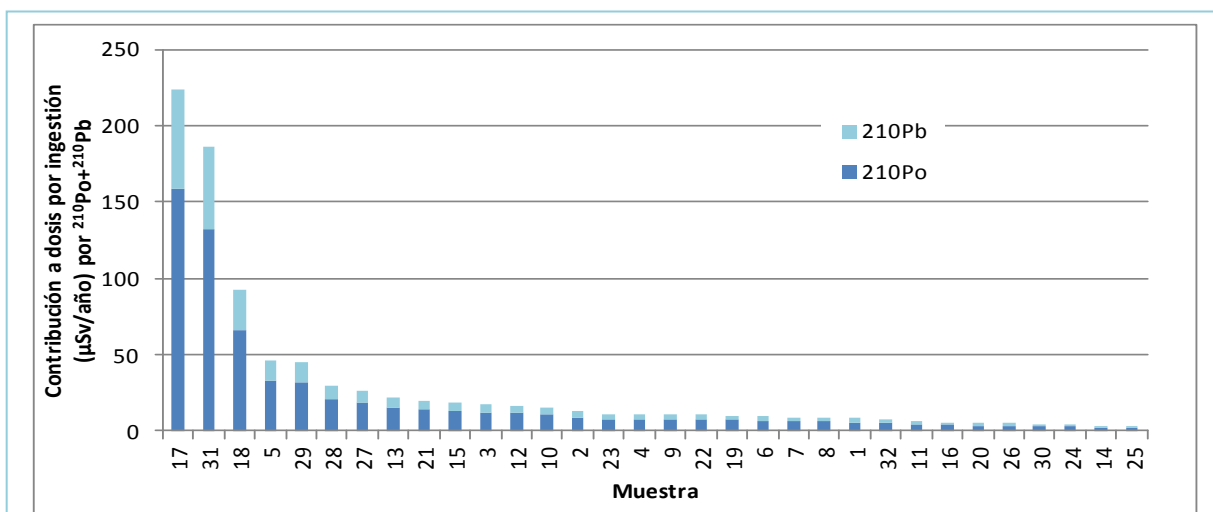


Figura 4.13: Dosis efectiva por ingesta de aguas minerales debida al  $^{210}\text{Po}$  y al  $^{210}\text{Pb}$  en niños de uno a dos años (en  $\mu\text{Sv/año}$ )

Las dosis efectivas por ingestión debidas al  $^{210}\text{Pb}$ , son generalmente un 50% inferiores a las debidas al  $^{210}\text{Po}$ , y su discusión sería similar a la realizada para el  $^{210}\text{Po}$ , dado que se ha asumido la concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  como límite inferior de la concentración de actividad de  $^{210}\text{Pb}$ . De esta forma, las aguas minerales que presentan valores de dosis más altos para el  $^{210}\text{Po}$ , son también las que presentan los valores más altos debidos al  $^{210}\text{Pb}$ .

Se pueden observar los resultados en la Figura 4.13, en la que se muestran esos valores para la ingesta en la población de niños de 1 a 2 años y se compraran a los obtenidos para  $^{210}\text{Po}$ . En el caso de las muestras 17 y 31 los valores que se obtienen quedan por encima de la DIT (100  $\mu\text{Sv/año}$ ). Análogamente, las dosis en la población con edad adulta se muestran en la Figura 4.14. En este caso, el rango de valores de dosis efectivas debido al  $^{210}\text{Pb}$  se encuentran entre  $<0,37$  y  $24,9 \pm 0,9 \mu\text{Sv/año}$  y con una media de  $3 \pm 5 \mu\text{Sv/año}$ . La suma de las dosis debidas a  $^{210}\text{Pb}$  y  $^{210}\text{Po}$ , hace que en algunas muestras se acerque al valor prefijado para la DIT. Lo cual indica de nuevo el interés de un estudio más detallado de esas muestras.

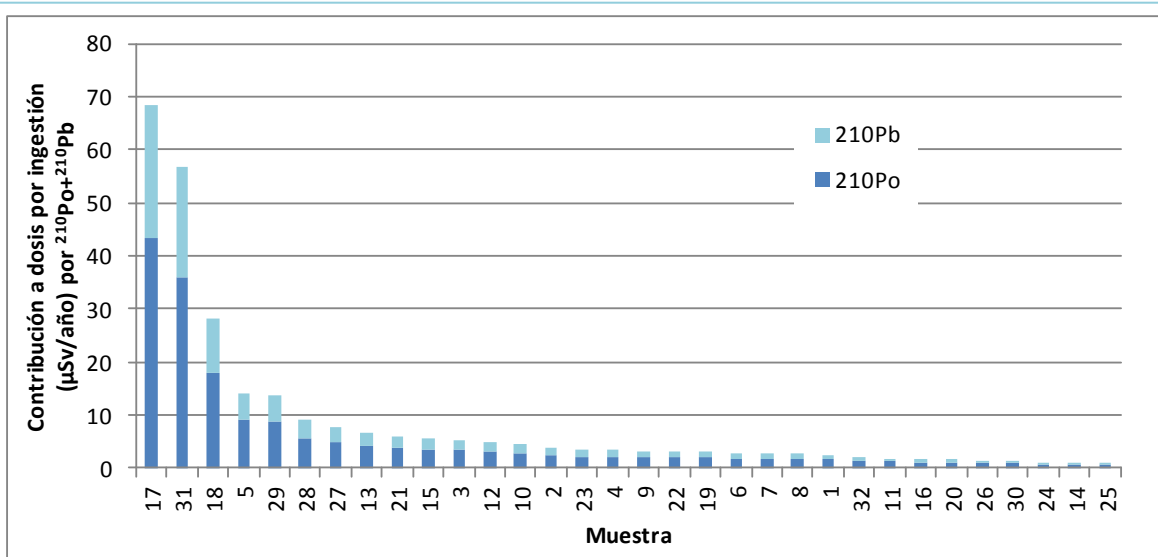


Figura 4.14: Dosis efectiva por ingesta de aguas minerales debida al  $^{210}\text{Po}$  y al  $^{210}\text{Pb}$  en adultos (en  $\mu\text{Sv/año}$ )



	1-2 años		2-7 años		7-12 años	
	<sup>234</sup> U	<sup>238</sup> U	<sup>234</sup> U	<sup>238</sup> U	<sup>234</sup> U	<sup>238</sup> U
1	1,03±0,05	0,80±0,05	1,40±0,07	1,07±0,06	1,18±0,06	0,91±0,05
2	0,56±0,05	0,40±0,04	0,76±0,06	0,53±0,05	0,64±0,05	0,45±0,04
3	0,98±0,05	0,61±0,04	1,32±0,07	0,82±0,05	1,11±0,06	0,69±0,04
4	2,83±0,13	1,16±0,07	3,84±0,18	1,55±0,10	3,23±0,15	1,32±0,08
5	0,08±0,01	0,06±0,01	0,11±0,01	0,08±0,01	0,09±0,01	0,07±0,01
6	1,48±0,06	0,52±0,03	2,00±0,09	0,70±0,04	1,68±0,07	0,59±0,04
7	0,03±0,02	<0,04	0,04±0,03	<0,05	0,03±0,02	<0,04
8	0,02±0,01	<0,04	0,03±0,01	<0,06	0,03±0,01	<0,05
9	1,58±0,08	0,39±0,04	2,14±0,11	0,52±0,05	1,80±0,09	0,44±0,04
10	0,23±0,04	0,17±0,03	0,32±0,05	0,23±0,04	0,27±0,04	0,20±0,03
11	1,53±0,05	0,37±0,02	2,07±0,07	0,50±0,03	1,74±0,06	0,42±0,02
12	0,25±0,02	0,12±0,01	0,33±0,03	0,15±0,02	0,28±0,02	0,13±0,02
13	0,10±0,01	0,02±0,01	0,14±0,01	0,03±0,01	0,11±0,01	0,03±0,01
14	0,04±0,01	<0,02	0,05±0,01	<0,03	0,05±0,01	<0,02
15	4,84±0,11	3,51±0,08	6,55±0,14	4,67±0,11	5,51±0,12	3,97±0,09
16	<0,01	<0,02	<0,02	<0,03	<0,01	<0,02
17	0,40±0,03	0,43±0,03	0,54±0,04	0,57±0,04	0,45±0,03	0,48±0,03
18	0,05±0,01	<0,02	0,07±0,01	<0,03	0,06±0,01	<0,02
19	0,07±0,02	0,05±0,02	0,10±0,03	0,07±0,02	0,08±0,02	0,06±0,02
20	NM	NM	NM	NM	NM	NM
21	1,40±0,05	0,86±0,04	1,90±0,07	1,14±0,05	1,60±0,06	0,97±0,04
22	0,45±0,04	0,15±0,02	0,61±0,05	0,20±0,03	0,51±0,04	0,17±0,02
23	8,19±0,30	3,11±0,14	11,09±0,41	4,14±0,18	9,32±0,34	3,52±0,16
24	0,63±0,03	0,28±0,02	0,85±0,04	0,37±0,02	0,71±0,03	0,32±0,02
25	0,64±0,04	0,24±0,02	0,87±0,05	0,32±0,03	0,73±0,04	0,27±0,02
26	0,05±0,02	<0,04	0,07±0,02	<0,05	0,06±0,02	<0,04
27	0,42±0,02	0,19±0,02	0,56±0,03	0,25±0,02	0,47±0,03	0,22±0,02
28	0,30±0,03	0,31±0,03	0,41±0,04	0,41±0,04	0,34±0,04	0,35±0,03
29	0,08±0,01	0,04±0,01	0,10±0,01	0,05±0,01	0,09±0,01	0,05±0,01
30	0,41±0,03	0,17±0,02	0,55±0,03	0,23±0,02	0,46±0,03	0,20±0,02
31	0,35±0,03	0,38±0,03	0,47±0,04	0,51±0,04	0,40±0,03	0,43±0,03
32	0,53±0,04	0,51±0,04	0,71±0,06	0,68±0,05	0,60±0,05	0,58±0,05

Tabla 4.10: Contribución a la dosis efectiva por ingestión de <sup>234</sup>U y <sup>238</sup>U (en  $\mu\text{Sv/año}$ ) para los distintos grupos de edades y las distintas marcas comerciales

Muestra	12-17 años		Adultos	
	$^{234}\text{U}$	$^{238}\text{U}$	$^{234}\text{U}$	$^{238}\text{U}$
1	1,18±0,06	0,90±0,05	0,78±0,04	0,60±0,03
2	0,64±0,05	0,44±0,04	0,42±0,03	0,30±0,03
3	1,11±0,06	0,68±0,04	0,74±0,04	0,46±0,03
4	3,23±0,15	1,30±0,08	2,14±0,10	0,87±0,05
5	0,09±0,01	0,07±0,01	0,06±0,01	0,05±0,01
6	1,68±0,07	0,58±0,04	1,11±0,05	0,39±0,03
7	0,03±0,02	<0,04	0,02±0,02	<0,03
8	0,03±0,01	<0,05	0,02±0,01	<0,03
9	1,80±0,09	0,44±0,04	1,19±0,06	0,29±0,03
10	0,27±0,04	0,20±0,03	0,18±0,03	0,13±0,02
11	1,74±0,06	0,42±0,02	1,15±0,04	0,28±0,02
12	0,28±0,02	0,13±0,02	0,19±0,02	0,09±0,01
13	0,11±0,01	0,03±0,01	0,08±0,01	0,02±0,01
14	0,05±0,01	<0,02	0,03±0,01	<0,02
15	5,51±0,12	3,91±0,09	3,65±0,08	2,63±0,06
16	<0,01	<0,02	<0,01	<0,02
17	0,45±0,03	0,48±0,03	0,30±0,02	0,32±0,02
18	0,06±0,01	<0,02	0,04±0,01	<0,01
19	0,08±0,02	0,06±0,02	0,05±0,02	0,04±0,01
20	NM	NM	NM	NM
21	1,60±0,06	0,96±0,04	1,06±0,04	0,64±0,03
22	0,51±0,04	0,17±0,02	0,34±0,03	0,11±0,01
23	9,32±0,34	3,47±0,15	6,17±0,23	2,33±0,10
24	0,71±0,03	0,31±0,02	0,47±0,02	0,21±0,01
25	0,73±0,04	0,26±0,02	0,48±0,03	0,18±0,02
26	0,06±0,02	<0,04	0,04±0,01	<0,03
27	0,47±0,03	0,21±0,02	0,31±0,02	0,14±0,01
28	0,34±0,04	0,34±0,03	0,23±0,02	0,23±0,02
29	0,09±0,01	0,05±0,01	0,06±0,01	0,03±0,01
30	0,46±0,03	0,19±0,02	0,31±0,02	0,13±0,01
31	0,40±0,03	0,43±0,03	0,26±0,02	0,29±0,02
32	0,60±0,05	0,57±0,05	0,40±0,03	0,38±0,03

Tabla 4.11: Contribución a la dosis efectiva por ingestión de  $^{234}\text{U}$  y  $^{238}\text{U}$  (en  $\mu\text{Sv/año}$ ) para los distintos grupos de edades y las distintas marcas comerciales

De forma análoga se ha realizado los cálculos de dosis efectivas para el  $^{234}\text{U}$  y  $^{238}\text{U}$ , para los distintos grupos de edades, tal y como presentamos en las Tablas 4.10 y 4.11.

Las dosis efectivas por ingestión de agua mineral debidas a los isótopos de uranio se observa que en todas las aguas minerales analizadas toman valores muy pequeños, no superando en la gran mayoría de los casos  $1\mu\text{Sv/año}$ , con independencia del grupo de

edad estudiado. Solo un 25% del total de las muestras supera  $1\ \mu\text{Sv/año}$  en los grupos de edades más bajos en el caso del  $^{234}\text{U}$ , y un 9% en las dosis efectivas del  $^{238}\text{U}$ . El valor más alto que se ha encontrado en dosis efectivas asociadas al  $^{234}\text{U}$  es para la muestra 23, en el que para el grupo de edad de 2 a 7 años correspondiéndole un valor de  $11,1\pm 0,4\ \mu\text{Sv/año}$ . Para  $^{238}\text{U}$  el valor más alto es también para el mismo grupo de edad, con un valor de  $4,7\pm 0,1\ \mu\text{Sv/año}$ .

El hecho de que para el grupo de edad entre 2-7 años presente mayores valores no se debe al coeficiente de dosis, que de hecho es mayor para el grupo de 1-2 años, sino a que las cantidades ingeridas que se consideran son mayores para este grupo de más edad. También no debe sorprender el hecho de que las dosis efectivas sean mayores para el  $^{234}\text{U}$  frente al  $^{238}\text{U}$ , dado que no sólo los coeficientes de dosis son más altos, sino que además en la mayoría de las muestras se encontraban mayores concentraciones de actividad.

En las Figuras 4.15 y 4.16 presentamos la distribución de la dosis por ingesta debida al  $^{238}\text{U}$  siguiendo el mismo orden que el utilizado para representar la dosis debida al  $^{210}\text{Po}$ . Debido a la diferente distribución de las concentraciones de actividad de isótopos de uranio, el diagrama correspondiente al  $^{238}\text{U}$  es muy diferente al que vimos para el  $^{210}\text{Po}$ .

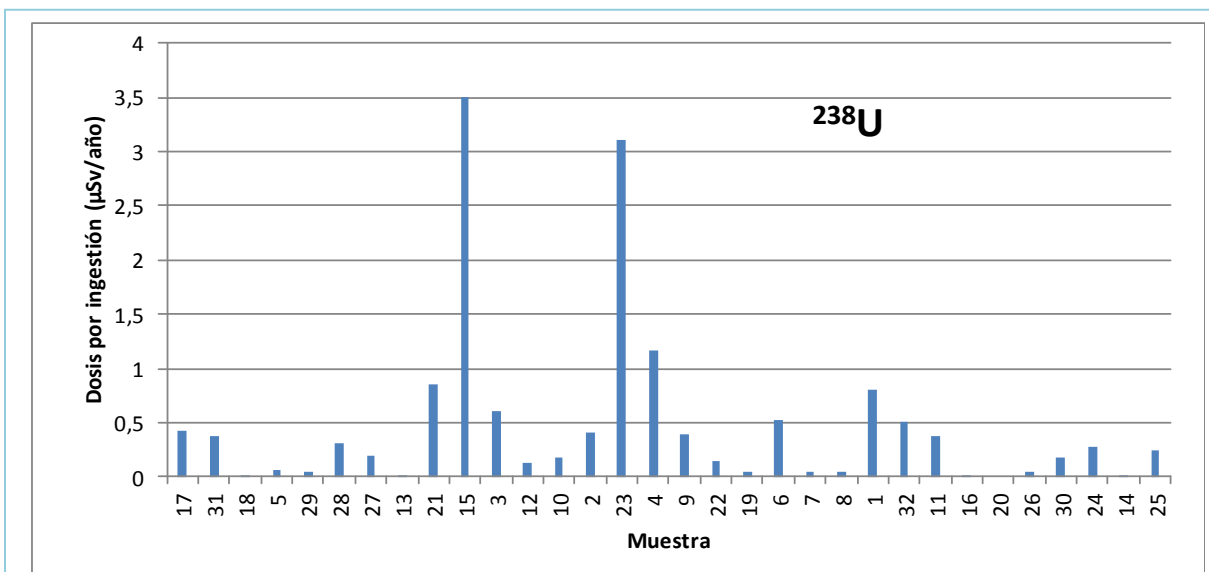


Figura 4.15: Dosis efectiva por ingesta de aguas minerales debida al  $^{238}\text{U}$  ( $\mu\text{Sv/año}$ ) para niños de uno a dos años

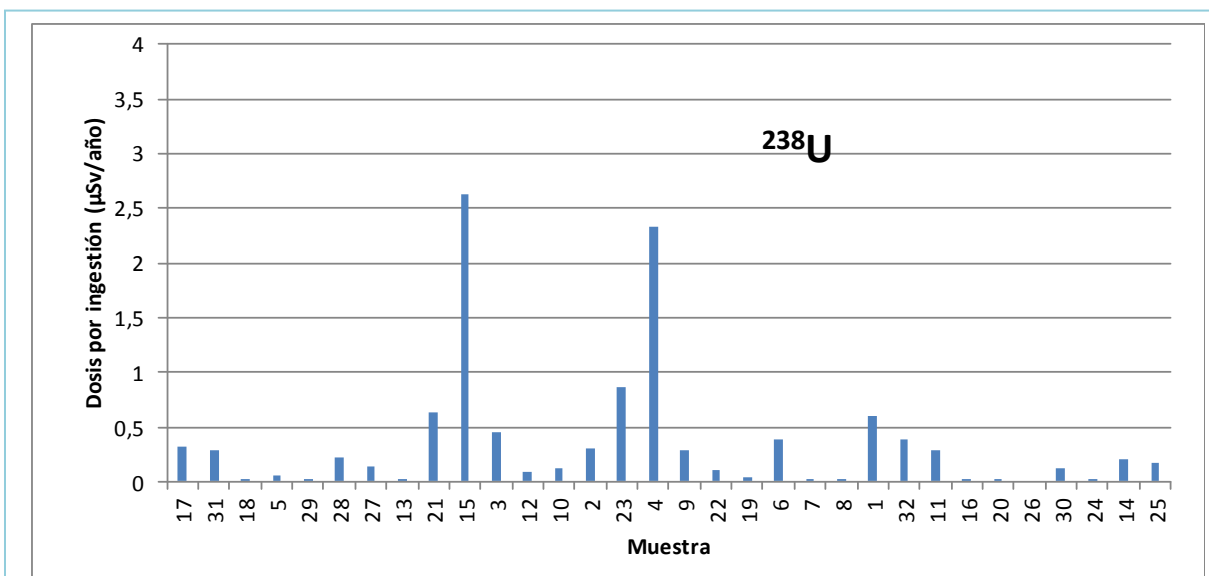


Figura 4.16: Dosis efectiva por ingesta de aguas minerales debida al  $^{238}\text{U}$  ( $\mu\text{Sv/año}$ ) para individuos adultos

Estas dosis efectivas son por otra parte claramente inferiores a las determinadas previamente debidas al contenido de  $^{210}\text{Po}$  y  $^{210}\text{Pb}$  que presentaban estas aguas. Los factores de conversión dosis-concentración de actividad para los isótopos de uranio son claramente inferiores en todos los grupos de edad que los correspondientes al  $^{210}\text{Po}$  y  $^{210}\text{Pb}$ , con lo que se indica la baja radiotoxicidad del uranio. Esto se debe al escaso carácter bioacumulativo del uranio en el cuerpo humano tendiendo, una vez

que ha sido ingerido, a ser eliminado vía excreción en su práctica totalidad. Es bien conocido, en el mundo de la protección radiológica, que la mayor “peligrosidad” del uranio reside en su toxicidad química más que en su radiotoxicidad, es decir es más peligroso por su carácter químico que por sus emisiones radiactivas.

En analogía a lo realizado previamente en el estudio de  $^{210}\text{Po}$ , en la Tabla 4.12 se exponen los resultados de dosis efectivas para el  $^{234}\text{U}$  con resultados obtenidos en distintos países.

	España	Hungría	Austria	Polonia	Italia	Italia2
$^{234}\text{U}$		[Kovács et al. 2003]	[Katzlberger et al. 2000]	[Skwarzec et al. 2002]	[Jia et al. 2007]	[Desideri et al. 2007]
$D_{EM}$	0,71±1,26	0,55±0,84	0,82±1,02	0,03±0,01	0,99±1,27	0,41±0,52

Tabla 4.12: Comparativa de resultados de dosis efectiva por ingestión de  $^{234}\text{U}$  (en  $\mu\text{Sv/año}$ ) en adultos, en distintos estudios realizados

A partir de los resultados mostrados en la Tabla 4.12 se puede enunciar que, a pesar de la variabilidad de concentraciones de actividad de  $^{234}\text{U}$  en aguas de un mismo país pero de distinto origen, o comparadas a su vez con los distintos países, las dosis efectivas medias por la ingestión de este radioisótopo asociado a las aguas minerales, son muy pequeñas, no superando en ningún caso el valor de  $1 \mu\text{Sv/año}$ .

Para culminar los estudios relativos a las aguas minerales que se han presentado en esta memoria, y de nuevo destacar la importancia del radionucleido que nos centra este trabajo ( $^{210}\text{Po}$ ), se ha creído conveniente citar resultados de dosis efectivas por ingestión debido al radionucleido  $^{226}\text{Ra}$ , perteneciente también a la serie radiactiva natural del uranio y con un periodo de semidesintegración del orden de  $10^3$  años. Para ello se tomaron medidas realizadas en el año 1996, por el grupo de Física Nuclear Aplicada de la Universidad de Sevilla, en un conjunto de aguas colectadas en centros de alimentación de la zona y aguas potables de diverso origen [Manjón et al. 1997]. Los resultados obtenidos en ese trabajo se van a emplear en éste para evaluar de una forma cualitativa la contribución del  $^{226}\text{Ra}$  a las dosis efectivas susceptibles de ser recibida debido a la ingesta de aguas minerales. Los resultados se encuentran entre  $<0,7$  y  $11,3 \pm 0,7 \text{ mBq/l}$ , sólo hay una muestra que se escapa de este rango, con un valor de  $267 \pm 3 \text{ mBq/l}$  que no debe ser considerado representativo de la media y que habría que evaluar en un estudio temporal de dicha marca. El promedio se encontraría en  $5 \pm 4 \text{ mBq/l}$ . De la misma forma en la que se procedió al cálculo de dosis efectiva para los anteriores radionucleidos presentados en este estudio, se realizó para el  $^{226}\text{Ra}$ . Para adultos se obtuvo una dosis efectiva media de  $1,1 \pm 0,9 \mu\text{Sv/año}$ . Teniendo en cuenta en el promedio el valor de la muestra que escapaba del rango, la dosis

efectiva alcanzaría  $4\pm 12 \mu\text{Sv/año}$ . A la vista de este resultado, algo superior a los obtenidos para los isótopos de uranio e inferior que para el  $^{210}\text{Po}$  y  $^{210}\text{Pb}$ , de nuevo se pone de manifiesto la importancia del radionucleido de interés en este trabajo, el  $^{210}\text{Po}$ .

Se finalizará esta sección exponiendo de una forma sintetizada las conclusiones sacadas a partir de los resultados mostrados a lo largo del capítulo. Teniendo en cuenta la alta radiotoxicidad del  $^{210}\text{Po}$  y del  $^{210}\text{Pb}$ , como progenitor suyo, una vez que se incorporan al cuerpo humano vía ingestión, se procedió a la determinación de sus concentraciones de actividad en distintas marcas comerciales de agua mineral, para posteriormente realizar una evaluación dosimétrica. Este estudio se complementó con la determinación de dosis debidas a  $^{234}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  y  $^{226}\text{Ra}$ .

Los resultados obtenidos, nos permiten sacar a la luz una controversia existente en la comunidad científica: observando que los valores de las dosis efectivas de todos los radionucleidos estudiados en este trabajo va decreciendo con la edad de la población considerada, superando la DIT en la dosis efectiva de  $^{210}\text{Po}$  en dos marcas comerciales en el grupo de edad comprendida entre 1 a 2 años, se debería de debatir el empleo de aguas minerales para la preparación de alimentos en lactantes.

El agua potable de grifo, presenta unas concentraciones generalmente inferiores a las encontradas en las aguas minerales, pues durante el proceso de potabilización una porción considerable de  $^{210}\text{Po}$  es separado por precipitación, presentando una concentración de actividad inferior a  $1 \text{ mBq/l}$  [Idoeta et al. 2010]. Concretamente el agua potable analizada para el estudio que aquí se presenta, correspondiente a la consumida por la localidad de Sevilla, obtuvo un valor de  $0,83\pm 0,05 \text{ mBq/l}$ . Esto va a inducir una dosis comprometida por ingestión anual del orden de  $0,73\pm 0,04 \mu\text{Sv/año}$  en adultos.

Las características de los sustratos donde se originan estas aguas minerales son las que van a condicionar en gran parte las concentraciones de actividad para estos radionucleidos. Debe existir un seguimiento temporal de los mismos pues se ha comprobado la variabilidad de los resultados en dos marcas comerciales distintas.

Los resultados mostrados en este capítulo reafirman la conclusión de que el  $^{210}\text{Po}$  es uno de los contribuyentes mayoritarios, si no el mayor, a las dosis comprometidas por ingestión debido al consumo de aguas minerales. Por este motivo se piensa imprescindible tener presente a este radionucleido en cualquier control radiológico de este tipo de agua.



## 5. $^{210}\text{Po}$ EN LA DIETA

Los seres vivos, y en concreto los seres humanos requieren, para poder llevar a cabo las funciones vitales, un aporte de energía. El mantenimiento de la temperatura corporal, la actividad física, la síntesis molecular, entre otros, van a depender de un metabolismo que requiera energía para la consecución de múltiples funciones indispensables para la vida. Un sujeto en reposo, va a tener un metabolismo cuyo requerimiento energético va a ser, entre un 60-75% del gasto energético diario, para el mantenimiento de estas funciones fundamentales.

Los alimentos son la única fuente que aporta la energía y nutrientes necesarios para posibilitar la vida al ser humano. La insuficiente ingesta de éstos, así como la sobreingesta, ocasiona problemas de salud. Por ello se debe buscar una alimentación equilibrada y completa en la que se encuentren alimentos de los grupos principales: cereales, tubérculos, leguminosas, verduras, frutas y alimentos de origen animal.

Una dieta equilibrada va a realizar un aporte de energía y nutrientes adecuados que garanticen una calidad de vida, salud y bienestar. Distintos comités de expertos definen la denominada ingesta recomendada (IR). Esta IR hace referencia a las cantidades de energía y nutrientes que son recomendadas para ser ingeridas, en función del sexo, edad y actividad.

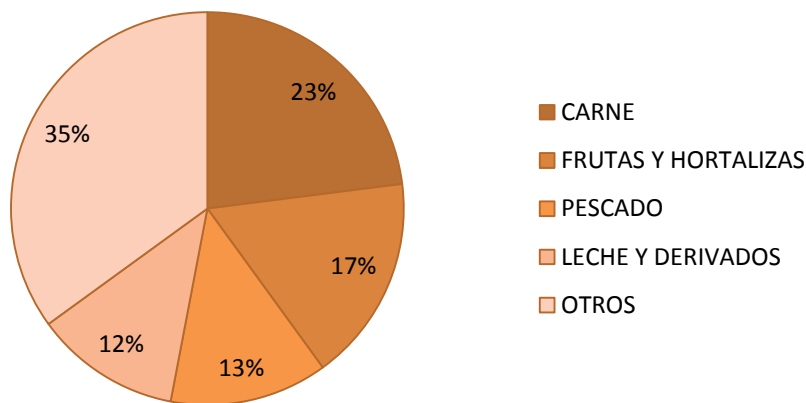
Los hábitos alimenticios adquiridos van a estar determinados por diversos factores. Entre éstos encontramos el clima, las costumbres, la región y la disponibilidad de los distintos alimentos, entre otros.

La tendencia en nuestra cultura de exagerar el consumo de carne, en detrimento del consumo de cereales, frutas y verduras, está favoreciendo la falta de vitaminas y otros elementos importantes en el organismo y a la proliferación de casos de obesidad. A través de datos facilitados por el Ministerio de Agricultura, Alimentación y Medio Ambiente (MAGRAMA), se ha elaborado la figura 5.1, donde se representa la distribución según el tipo de alimento de la dieta media en España.

Es conocido el hecho de que las personas han de gozar de una buena alimentación, requiriendo por ello una ingesta adecuada. Sin bien es cierto que muchas veces se presta sólo atención a la cantidad ingerida dejando a un lado que estos productos deben presentar una calidad y ser seguros.

Para garantizar la inocuidad y calidad de los alimentos nace el Reglamento 178/2002 emitido por la Autoridad Europea de Seguridad Alimentaria, donde se establecen unos requisitos básicos con el fin de buscar una seguridad alimentaria, siendo fundamental en el sector de la alimentación.





*Figura 5.1: Distribución del consumo según tipo de alimentos en la dieta representativa de España[Varela-Moreiras et al. 2010]*

El objetivo de la seguridad alimentaria se rige por la adecuación de los productos y sus procesos de transformación a un marco de referencia que garantice la protección de la salud de los consumidores mediante las mejores pruebas científicas. De este modo la Unión Europea regula el uso de algunas sustancias químicas en la agricultura o en procesos de producción. En esta reglamentación se controlan también los riesgos de contaminación por organismos modificados genéticamente, y se adoptan medidas para limitar la contaminación a causa de la polución del aire y agua o por exposición radiactiva.

La contaminación radiactiva en alimentos es rara. El accidente ocurrido en la Central Nuclear de Chernobyl (1986), como precedente, convocó una reunión de expertos que sellaron las líneas de acción sobre contaminación radiactiva en los alimentos, Reglamento 3954/87. Este Reglamento establece los límites de tolerancias máximas de contaminación radiactivas de los productos alimenticios y piensos tras un accidente nuclear o cualquier otro caso de urgencia radiológica. Este Reglamento se ha ido revisando y ha ido sufriendo modificaciones, siendo el más actual el Reglamento de Ejecución 495/2013 de 29 de mayo de 2013 que modifica el Reglamento de Ejecución 996/2012 por el que se imponen condiciones especiales a la importación de piensos y alimentos originarios o procedentes de Japón a raíz del accidente en la Central Nuclear de Fukushima (2011).

Si bien la contaminación de alimentos por elementos radiactivos puede darse por tres vías principales: por deposición de cenizas o escorias radiactivas, por inducción neutrónica o de forma indirecta a través de las cadenas alimentarias, este tipo de contaminación abiótica, como puede verse en lo referente a las Normativas europeas

desarrolladas, sólo se va a tener en cuenta en el caso de que sea una radiactividad inducida. Para nada a este nivel normativo se contempla la radiactividad natural.

El Consejo de Seguridad Nuclear (CSN), es un Organismo Público, independiente de la Administración General del Estado, con personalidad jurídica y patrimonio propio e independiente de los del Estado, y como único organismo competente en materia de seguridad nuclear y protección radiológica, se encarga de hacer controles y vigilancia radiológica en el medio ambiente del territorio nacional, incluyendo entre los distintos análisis que realiza muestras de productos básicos y de una dieta completa, o como también la denominan y se denominará en este trabajo: dieta tipo (DT).

En la tabla 5.1 se muestran los distintos controles que el CSN realiza en alimentos dentro del Plan de Vigilancia Radiológica Ambiental (PVRA).

Programas de Vigilancia Radiológica Ambiental de las centrales nucleares y de otras instalaciones nucleares y radiactivas (PVRAIN).			Programas de Vigilancia Radiológica Ambiental de ámbito nacional. Red de Estaciones de Muestreo (REM).		
Tipo de alimento	Periodicidad del muestreo	Medidas	Tipo de alimento	Periodicidad del muestreo	Medidas
Leche y Vegetales	Muestreo de leche quincenal en época de pastoreo y mensual el resto del año, y cultivos en época de cosecha	<sup>90</sup> Sr Espectrometría-γ <sup>131</sup> I	Leche	Mensual	<sup>90</sup> Sr Espectrometría-γ <sup>137</sup> Cs
Carnes, Huevos, Peces, Mariscos y Miel	Muestreo semestral	Espectrometría-γ	Dieta tipo	Trimestral	<sup>90</sup> Sr Espectrometría-γ <sup>137</sup> Cs <sup>14</sup> C

Tabla 5.1: Tipo de muestra y análisis realizados por parte del Consejo de Seguridad Nuclear en lo referente a muestras de alimentos y radionucleidos presentes en éstos

## 5.1 Hábitos de consumo alimenticio en España

En la actualidad, la población española está inmersa en un continuo cambio en sus hábitos alimentarios. Este hecho está provocando que la dieta actual sufra un distanciamiento de la dieta tradicional que era calificada como saludable.

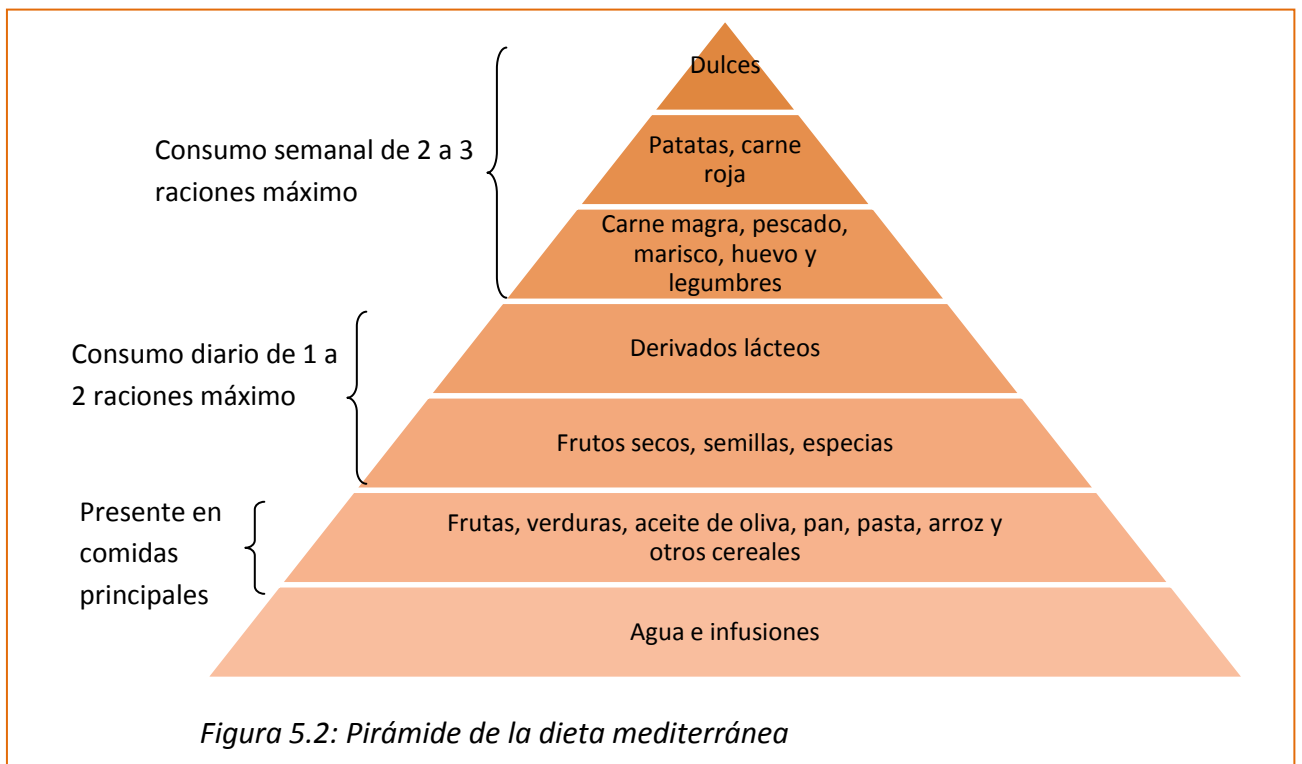
Desde 1987, el Ministerio de Agricultura, Alimentación y Medio Ambiente (MAGRAMA) lleva realizando numerosos estudios en el campo de la alimentación, sobre la producción, distribución y consumo de distintos productos. Los datos aportados por el MAGRAMA se pueden considerar como un excelente referente para el estudio de la evolución y conocimiento de los patrones dietéticos de la población española.

Los hábitos alimenticios van a depender de numerosos factores, tales como: la producción, estilo de vida, el nivel socioeconómico, la cultura, la demografía, o la ocupación laboral, entre otros. Estos datos pueden ser consultados en el Panel de Consumo Alimentario elaborado por el MAGRAMA, y que anteriormente era realizado por el Ministerio de Medio Ambiente y Medio Rural y Marino (MMARM).

Según datos obtenidos del Panel de Consumo Alimentario se observa un detrimento en el consumo de cereales y derivados, así como de legumbres, verduras y hortalizas. Esto supone un empobrecimiento de la dieta teniendo en cuenta lo recomendado desde distintas instituciones como la Sociedad Española de Nutrición. Ese alejamiento de la dieta saludable se ve también reflejado en un mayor aumento en el consumo de productos cárnicos, creándose un excesivo aporte en grasas y un déficit respecto a hidratos de carbono. La conocida “dieta mediterránea”, basada en pescado, verduras y frutas, ha sido abandonada en España en las últimas décadas[Varela-Moreiras et al. 2010]. A pesar de ello, la dieta actual mantiene parte de las características de la “dieta mediterránea” que se puede percibir por el mayor consumo de pan, verduras, pescado y legumbres de los españoles comparados con otros países norte y centroeuropeos.

La “dieta mediterránea” representa un estilo de vida, respondiendo a un patrón alimentario con un demostrado efecto en la prevención de determinadas enfermedades crónicas. La composición de la “dieta mediterránea” está influida fundamentalmente por el clima mediterráneo. Los países que comparten ese clima tienen una producción de alimentos que los diferencia claramente del resto de Europa. Es claro el papel predominante que juegan los distintos productos vegetales, tales como: frutas, verduras, frutos secos, legumbres y cereales. No se debe olvidar el consumo de vino, pescado fresco y aceite de oliva. Por el contrario hay un bajo consumo de embutidos y carnes rojas. Una de las amenazas a las que se enfrenta este tipo de dieta es la crisis económica en la que se ven inmersos los países que eran asiduos a estos hábitos alimenticios. Se observa una disminución en el consumo de frutas, hortalizas, pescado y aceite de oliva. Y un aumento en la ingesta de azúcares. En contraposición a este punto débil anteriormente mencionado, a su favor cuenta con

un mayor conocimiento de la población sobre los efectos beneficiosos sobre la salud que conlleva. En la figura 5.2 se representa gráficamente en forma de pirámide, la composición ideal de la “dieta mediterránea”. En ella los productos con menos consumo deber ser dulces, patatas, huevos y carne roja, que deben consumirse semanalmente entre 1 y 4 raciones en función del alimento. Existe también otro grupo que debe ser consumido a diario, entre los que encontramos los derivados lácteos, frutos secos y especias. Y un tercer grupo que debe incluirse en los platos principales, entre los que encontramos las frutas, verduras, aceite de oliva y pan entre otros. También debe incluirse la ingesta de vino con moderación, una actividad física moderada y un descanso suficiente.



Siguiendo la línea del estudio de hábitos alimenticios en los consumidores y a partir de datos facilitados por el MAGRAMA, y apoyando el seguimiento de la dieta mediterránea, se corrobora, que en España, las frutas, hortalizas y pan son los productos que más se consumen, introduciéndose en la dieta con una frecuencia diaria. Carnes y pescados según los datos encontrados son consumidos de dos a tres veces a la semana.

Como es conocido, España sufre una profunda crisis económica desde 2008. Por ello, los hábitos alimenticios anteriores a 2008 podrían ser diferentes a los hábitos alimenticios que tiene la población española con posterioridad a 2008. Para obtener datos de esa posible evolución en la dieta hemos recurrido a la base de datos de consumo en hogares elaborada por el Ministerio de Agricultura, Alimentación y Medio Ambiente, la cual se puede consultar a través de su página web, y que tiene una

compilación de datos que abarcan desde el año 2004 a 2013. Los años de interés en este trabajo son los comprendidos entre 2008 y 2013. Se ha querido agrupar los años de 2008 a 2010 para evitar la saturación de datos, así como individualizar los comprendidos entre 2011 a 2013 por ser los más cercanos al tiempo actual. Así mismo, también se ha visto conveniente presentar los datos del año 2004, como referencia de hábitos no afectados por la crisis económica. De esta forma se pretende observar posibles cambios en el consumo entre un año alejado a la fecha del inicio de la crisis (2008) y apreciar posibles variaciones. Los datos aportados por el MMARM se presentan en la tabla 5.2. Los valores corresponden al consumo anual per cápita (kg/persona/año), excepto para el consumo de huevos, que también se presenta en unidades al año. Los grupos de alimentos elegidos son los principales en una dieta tipo, pero también se introducen valores de alimentos específicos, porque éstos serán los que vamos a incluir en el estudio presentado en este capítulo y van a ser necesarios para el cálculo de la dosis efectiva. Entre los alimentos que han sufrido una disminución de consumo con la crisis económica están los huevos, los pescados y mariscos, lácteos y cereales.

		2004	2008-2010	2011	2012	2013 <sup>1</sup>
<b>Huevos</b>	unidades	156,0	138,0	131,0	132,0	136,0
	kg	9,9	8,7	8,2	8,3	8,5
<b>Carne</b>	Total	53,1	53,9	52,6	52,8	52,8
	Vacuno	7,8	7,3	6,6	6,4	6,0
	Pollo	13,8	14,4	14,6	14,8	15,0
	Cerdo	11,2	11,5	10,7	10,7	10,6
<b>Pescados y mariscos</b>	Total	28,6	29,1	26,8	26,4	25,8
	Merluza	4,5	1,1	4,1	3,8	4,0
	Sardinas/ Boquerones	2,3	1,9	1,8	1,4	1,4
	Atún	0,6	0,6	0,6	0,7	0,4
	Mariscos	7,9	8,6	7,5	7,4	6,6
<b>Lácteos</b>	Leche	90,4	78,4	74,5	73,9	76,0
	Yogur	10,2	9,5	10,0	9,9	10,2
<b>Cereales</b>	Pan	46,9	40,6	35,6	35,9	37,4
	Arroz	4,8	3,8	3,9	4,0	4,2
	Pasta	3,8	3,7	3,8	3,8	4,2
<b>Legumbres</b>		3,7	3,3	3,2	3,2	3,4
	Lentejas	1,1	1,0	0,9	1,0	1,0
<b>Frutas y Hortalizas</b>	Total	149,8	167,0	164,3	166,1	160,0
	Lechuga	5,7	5,3	4,8	4,7	4,6
	Verdura de hoja	1,7	1,6	1,5	1,4	1,6
	Manzana	11,6	12,5	12,0	11,6	12,2
	Patata	24,6	32,4	29,5	30,2	31,0
<b>Vino</b>		10,9	9,2	8,9	8,9	8,2

Tabla 5.2: Consumo per cápita (kg/persona y año), de los distintos grupos de alimentos.

<sup>1</sup> Los datos presentados para el año 2013 comprenden de los meses de enero a junio dado que en el momento de realizar esta recopilación en la base de datos del MAGRAMA no se disponía del resto de meses, por lo cual se ha procedido a hacer una ponderación de los mismos para poder mostrarlos en las mismas unidades que los anteriores kg/persona/año.

Han mantenido el mismo nivel de consumo las carnes y legumbres y ha aumentado el consumo de frutas y hortalizas.

Atendiendo a estos hábitos de consumo, pretendemos presentar en este capítulo un compendio de resultados experimentales de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en diferentes muestras relacionadas con los alimentos consumidos habitualmente por la población española. De esta forma podremos evaluar, a continuación, la aportación de este radionucléido a la dosis por ingestión de la población.

## 5.2 Muestras analizadas

Las muestras de las cuales se van a presentar resultados de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en este trabajo se van a agrupar en: muestras de dieta tipo y muestras de alimentos varios.

En lo referente a alimentos varios, se han considerado distintos grupos de alimentos hasta alcanzar un total de 25 muestras, siendo éstas: carne, pescado, pan, verduras, lácteos, frutas, arroz, legumbres, pasta, huevos y vino. Se pretende con ello conocer individualmente la aportación de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  a la dieta de los distintos alimentos. Todos fueron adquiridos en comercios locales, a los que asiste habitualmente la población de la zona.

El segundo grupo de muestras, al que se ha denominado muestras de dieta tipo (DT), consta de un total de 24 muestras distintas, adquiridas trimestralmente desde el año 2007 al 2012 (ambos incluidos). Cada una de estas muestras va a representar el consumo de alimentos que realiza una persona de lunes a viernes, es decir, en los cinco días laborables de una semana. La toma de muestras se ha realizado siempre en las mismas condiciones. Todas se recogen en el mismo restaurante y consisten en desayuno, comida y cena diarios de una persona repetidos cinco veces. La masa bruta obtenida en origen es de aproximadamente 7 kg de muestra. En cada muestra se intenta representar los hábitos mayoritarios de consumo en el restaurante, de forma que se incluirá carne, pescado, verdura, fruta, cereales y lácteos, entre otros.

## 5.3 Concentración de actividades de $^{210}\text{Po}$ en muestras de alimentos

### 5.3.1 Resultados

Con el fin de evaluar la contribución a la dosis efectiva por  $^{210}\text{Po}$  debido a la ingesta, y el aporte que haría cada grupo de alimentos a una dieta representativa, se procedió a determinar la concentración de actividad de este radionucleidos en distintos grupos de alimentos. Atendiendo a los usos habituales para su preparación para hacerlos aptos para el consumo, algunos de los alimentos fueron cocinados. No ha sido así el caso de otros alimentos como el pan, la fruta y los lácteos, los cuales se suelen consumir sin cocinar. Siguió un proceso de cocción mediante hervido la pasta, el arroz, las

lentejas, los huevos, las patatas y las gambas. El resto de los alimentos fueron asados. Por otra parte los procesos de cocción y asado, nos permite hacer una estimación lo más realista posible al tener en cuenta posibles pérdidas acaecidas durante esta acción. De forma aclaratoria decir que sólo se analizaron las partes comestibles de los alimentos. En la tabla 5.3 quedan expuestos los distintos resultados que comentaremos a continuación.

Muestras	Pérdida de peso por evaporación (%)	<sup>210</sup> Po (mBq/kg)
Huevos	77	268 ± 14
Carne	Vacuno	58
	Pollo	64
	Cerdo	57
Pescado	Merluza	(2.4 ± 0.2) 10 <sup>3</sup>
	Boquerones	(140.1 ± 4.1) 10 <sup>3</sup>
	Sardinas	(39.9 ± 1.3) 10 <sup>3</sup>
	Atún	(3.4 ± 0.1) 10 <sup>3</sup>
	Gambas	(21.0 ± 0.5) 10 <sup>3</sup>
	Mejillones	(84.5 ± 2.3) 10 <sup>3</sup>
Lácteos	Leche	6,2 ± 0,6
	Yogur	87
Cereales	Pan	130 ± 20
	Arroz	65
	Pasta	61
Legumbres	Lentejas	68
Frutas y Hortalizas	Manzana	81
	Patata	83
	Endibia	97
	Espinacas	95
	Acelgas	95
	Lechuga	96
	Escarola	94
	Canónigos	94
	Brócoli	90
Cogollos	95	
Vino		39 ± 2

Tabla 5.3: Concentraciones de actividad de <sup>210</sup>Po (mBq/kg) en peso húmedo, en las muestras de distintos productos alimenticios



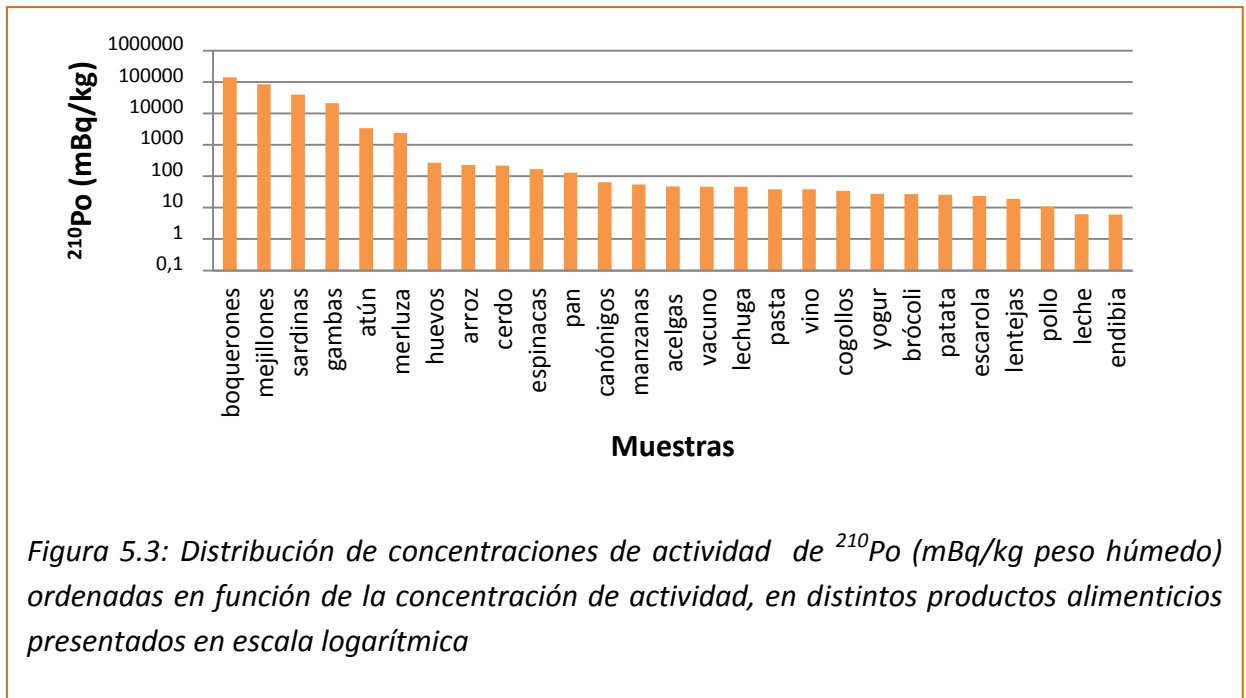


Figura 5.3: Distribución de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  (mBq/kg peso húmedo) ordenadas en función de la concentración de actividad, en distintos productos alimenticios presentados en escala logarítmica

En la figura 5.3 representamos los valores de concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en los alimentos analizados, ordenados de mayor a menor, en escala logarítmica. Cabe destacar que las diferencias entre los valores más bajos y los valores más altos alcanzan cinco órdenes de magnitud. Los alimentos que tienen mayores concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  (por encima de 10 Bq/kg) son pescados y mariscos, en valores intermedios tenemos carnes, huevos y cereales, mientras que los valores más bajos (por debajo de 100 mBq/kg) corresponden a frutas, hortalizas y lácteos.

Teniendo en cuenta los hábitos alimenticios de la población española, el hecho de que las concentraciones más elevadas de  $^{210}\text{Po}$  se encuentren en pescados y mariscos, siendo estos alimentos abundantes en la dieta, van a tener como consecuencia que la dosis por ingestión sea relativamente mayor en nuestro país, si la comparamos con países del norte de Europa, que tienen un menor consumo de pescado.

### 5.3.2 Dosis

En la tabla 5.4 se muestran los valores de dosis efectiva asociada al  $^{210}\text{Po}$  debido a la ingesta de los distintos productos alimenticios que se han analizado en este trabajo. Para el cálculo de la dosis anual se han considerado las cantidades de consumo anual por persona que se han obtenido de la base de datos del Panel de Consumo Alimentario. Para calcular el consumo medio anual hemos tomado el valor promedio del consumo de cada alimento de los tres últimos años (2011-2013).

	1-2 años	2-7 años	7-12 años	12-17 años	Adultos
<b>huevos</b>	20 ± 1	9,8 ± 0,5	5,8 ± 0,3	3,6 ± 0,2	2,7 ± 0,1
<b>vacuno</b>	2,6 ± 0,5	1,3 ± 0,2	0,8 ± 0,1	0,47 ± 0,09	0,35 ± 0,06
<b>pollo</b>	1,4 ± 0,5	0,7 ± 0,2	0,4 ± 0,1	0,25 ± 0,09	0,19 ± 0,06
<b>cerdo</b>	20 ± 2	10 ± 1	6,0 ± 0,7	3,7 ± 0,4	2,8 ± 0,3
<b>merluza</b>	84 ± 8	42 ± 4	25 ± 2	15 ± 1	11 ± 1
<b>boquerones</b>	1886 ± 56	943 ± 28	557 ± 17	343 ± 10	257 ± 8
<b>sardinas</b>	538 ± 18	269 ± 9	159 ± 5	98 ± 3	73 ± 2
<b>atún</b>	17,2 ± 0,6	8,6 ± 0,3	5,1 ± 0,2	3,1 ± 0,1	2,34 ± 0,09
<b>gambas</b>	1333 ± 33	667 ± 16	394 ± 10	242 ± 6	182 ± 4
<b>mejillones</b>	5352 ± 143	2676 ± 71	1581 ± 42	973 ± 26	730 ± 19
<b>leche</b>	4,1 ± 0,4	2,0 ± 0,2	1,2 ± 0,1	0,74 ± 0,07	0,56 ± 0,05
<b>yogur</b>	2,4 ± 0,3	1,2 ± 0,2	0,7 ± 0,1	0,45 ± 0,06	0,33 ± 0,05
<b>pan</b>	41 ± 6	21 ± 3	12 ± 2	8 ± 1	5,7 ± 0,9
<b>arroz</b>	8 ± 1	4,0 ± 0,5	2,4 ± 0,3	1,5 ± 0,2	1,1 ± 0,1
<b>pasta</b>	1,3 ± 0,3	0,7 ± 0,1	0,40 ± 0,08	0,24 ± 0,05	0,18 ± 0,04
<b>lentejas</b>	0,16 ± 0,03	0,08 ± 0,01	0,05 ± 0,01	0,03 ± 0,01	0,02 ± 0,01
<b>manzanas</b>	5,7 ± 0,8	2,9 ± 0,4	1,7 ± 0,2	1,0 ± 0,1	0,8 ± 0,1
<b>patata</b>	6,9 ± 0,9	3,4 ± 0,4	2,0 ± 0,3	1,3 ± 0,2	0,9 ± 0,1
<b>endibia</b>	0,08 ± 0,01	0,04 ± 0,01	0,02 ± 0,01	0,01 ± 0,01	0,01 ± 0,01
<b>espinacas</b>	2,24 ± 0,08	1,12 ± 0,04	0,66 ± 0,02	0,41 ± 0,01	0,31 ± 0,01
<b>acelgas</b>	0,63 ± 0,03	0,32 ± 0,02	0,19 ± 0,01	0,11 ± 0,01	0,09 ± 0,01
<b>lechuga</b>	1,91 ± 0,08	0,95 ± 0,04	0,56 ± 0,02	0,35 ± 0,02	0,26 ± 0,01
<b>escarola</b>	0,31 ± 0,03	0,15 ± 0,01	0,09 ± 0,01	0,06 ± 0,01	0,04 ± 0,01
<b>canónigos</b>	0,85 ± 0,04	0,43 ± 0,02	0,25 ± 0,01	0,16 ± 0,01	0,12 ± 0,01
<b>brócoli</b>	0,35 ± 0,03	0,18 ± 0,01	0,10 ± 0,01	0,06 ± 0,01	0,05 ± 0,01
<b>cogollos</b>	0,46 ± 0,03	0,23 ± 0,01	0,13 ± 0,01	0,08 ± 0,01	0,06 ± 0,01
<b>vino</b>	3,0 ± 0,1	1,49 ± 0,05	0,88 ± 0,03	0,54 ± 0,02	0,41 ± 0,01

Tabla 5.4: Contribución a la dosis efectiva por ingestión de <sup>210</sup>Po (en  $\mu\text{Sv/año}$ ) para los distintos grupos de edades en los distintos productos alimenticios

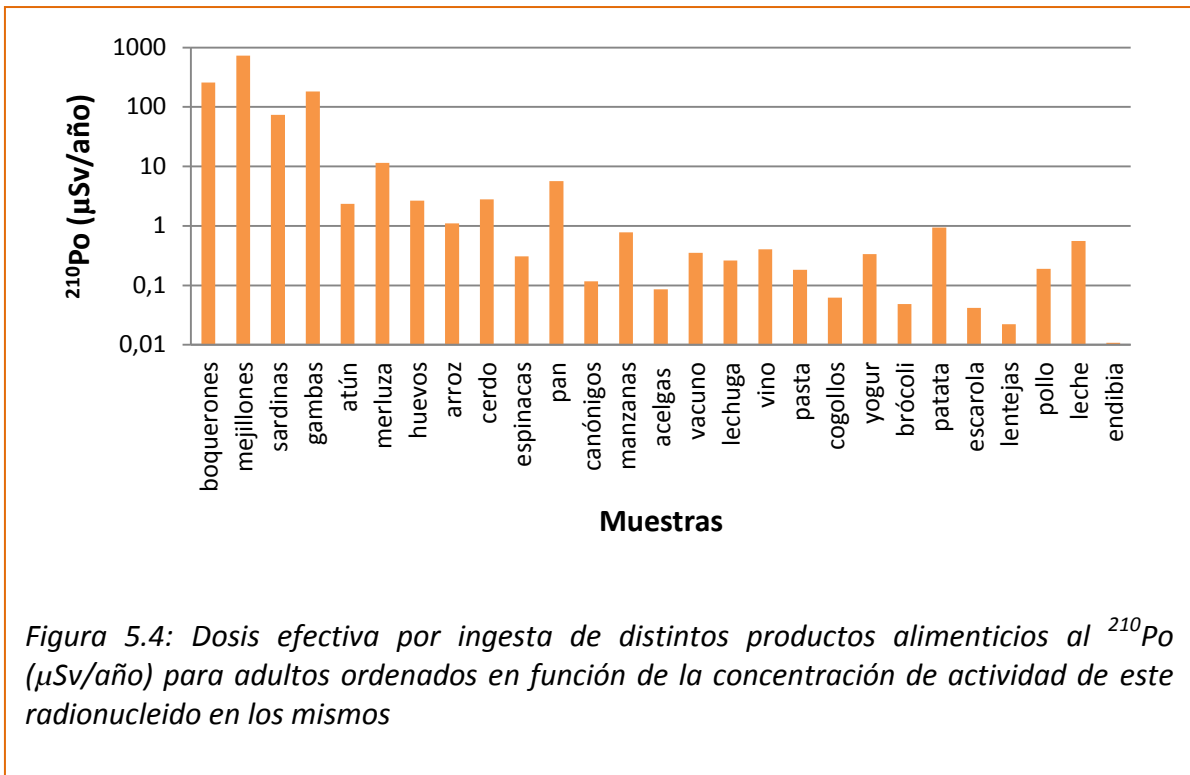


Figura 5.4: Dosis efectiva por ingesta de distintos productos alimenticios al  $^{210}\text{Po}$  ( $\mu\text{Sv/año}$ ) para adultos ordenados en función de la concentración de actividad de este radionucleido en los mismos

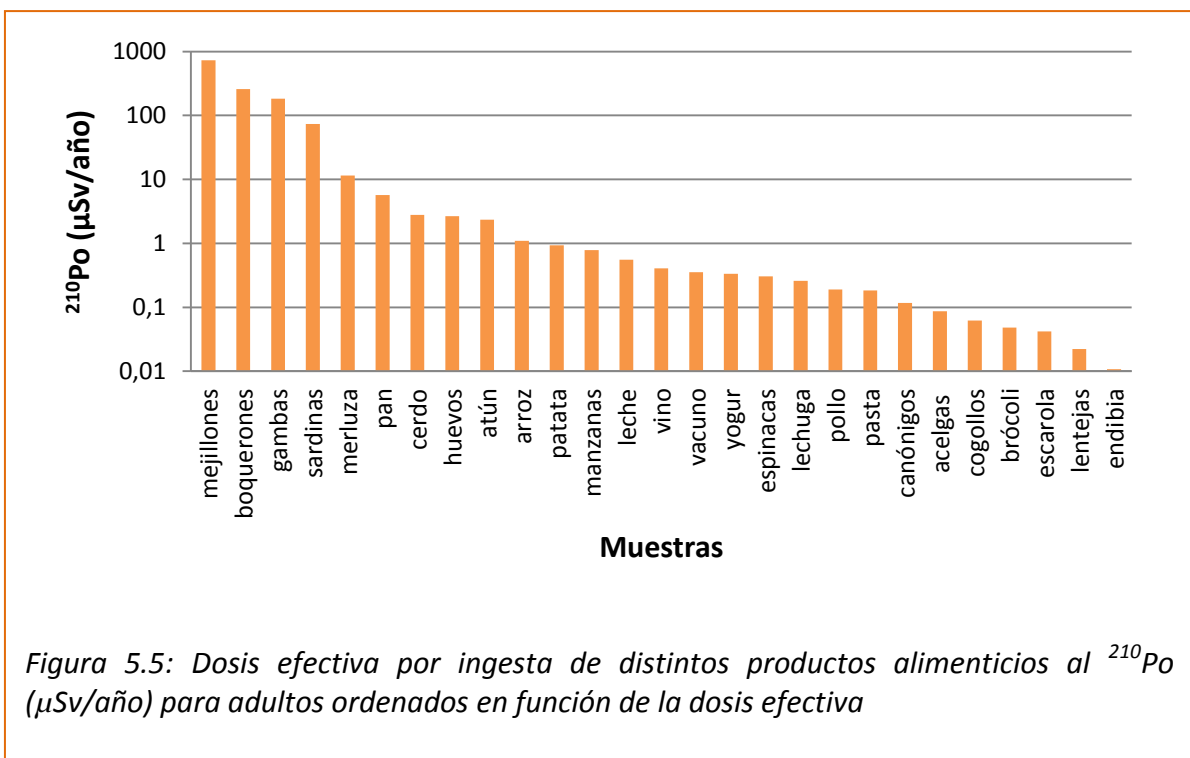


Figura 5.5: Dosis efectiva por ingesta de distintos productos alimenticios al  $^{210}\text{Po}$  ( $\mu\text{Sv/año}$ ) para adultos ordenados en función de la dosis efectiva

Comparando la figura 5.3 (concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  ordenadas de mayor a menor) con la figura 5.4 (dosis por ingestión en el mismo orden que la figura 5.3), a

priori puede llamar la atención que no presenten la misma distribución. Hecho que no debe sorprender dado que cada producto tiene su propia tendencia de consumo. Productos que puedan presentar altas concentraciones de actividad, al consumirse habitualmente poca cantidad de los mismos llevarán asociados en algunas ocasiones dosis más bajas que productos que presentaban una menor concentración de actividad pero que al contrario suelen consumirse mayores cantidades de los mismos. Véase por ejemplo el caso de la leche, la cual presentaba una concentración de actividad de  $6,2 \pm 0,6$  mBq/kg frente a los  $46 \pm 9$  mBq/kg que encontrábamos en la carne de vacuno, sin embargo a pesar de esa diferencia de concentraciones de actividad, las dosis efectivas asociadas a la ingesta de  $^{210}\text{Po}$  presente en estos productos son de  $0,56 \pm 0,05$   $\mu\text{Sv/año}$  para la leche, frente a  $0,35 \pm 0,06$   $\mu\text{Sv/año}$  que se estima para el consumo de carne de vacuno.

Haciendo la suma de todas las contribuciones a la dosis de los distintos productos analizados en este trabajo, se alcanza un valor de 1,3 mSv/año, simplemente debido al  $^{210}\text{Po}$  y a este reducido número de productos alimenticios. Según datos publicados en 2010 por el Consejo de Seguridad Nuclear, la dosis debido a la presencia de radiactividad natural de la dieta es de 0,29 mSv/año en promedio, presentando un rango entre 0,2 y 0,8 mSv/año. Destaca que de los 1,3 mSv/año, más de la mitad son debidos a los boquerones y los mejillones, que pequeños cambios en las dietas puede hacer muy variable las dosis. Si realizamos una estimación de la dosis suponiendo que un individuo no ingiere boquerones ni mejillones, y asumiendo esa cantidad consumida en otros productos como la carne de vacuno o merluza, la contribución del  $^{210}\text{Po}$  a la dosis es de 0,4 mSv/año. Un individuo que no incluyese productos marinos en su dieta presentaría una dosis efectiva para el radionucleido de interés que rondaría los 0,2mSv/año.

### **5.3.3 Productos cárnicos**

Siguiendo la publicación del UNSCEAR (Comité de las Naciones Unidas para la Investigación de los Efectos de la Radiación Atómica) de 2000, el nivel de referencia representativo en el ámbito mundial de la concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en carnes y derivados, se estima en 60 mBq/kg. Se especifica en la misma publicación que dicho valor se obtuvo realizando medidas en el músculo. Del mismo modo, en nuestro estudio se ha procedido a la medida de distintas carnes que se consumen con asiduidad en la zona.

Carne	Concentración de actividad de $^{210}\text{Po}$ (mBq/kg)		Dosis Efectiva ( $\mu\text{Sv/año}$ )
	Resultados del estudio	India [Al-Masri et al. 2004]	
<b>Producto</b>			Resultados del estudio
Vacuno	$47 \pm 8$		$0,35 \pm 0,06$
Pollo	$11 \pm 4$	50-100	$0,19 \pm 0,06$
Cerdo	$218 \pm 26$		$2,8 \pm 0,3$
Huevos	$268 \pm 14$		$2,7 \pm 0,1$

Tabla 5.5: Comparativa de resultados de  $^{210}\text{Po}$  (mBq/kg) en peso húmedo para muestras de distintos productos cárnicos en distintos estudios

Para establecer comparaciones con otros estudios, y comprobar que los resultados obtenidos en este estudio son concordantes, se presenta la tabla 5.5 con valores de concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en los productos a los que nos estamos refiriendo en este apartado.

El  $^{210}\text{Po}$  al ser ingerido por los animales, presenta tendencia a acumularse en el hígado y los riñones. En el capítulo 7 se explicará con más detalle el metabolismo en el cuerpo de este radionucleido. Este hecho es importante si tenemos en cuenta que los valores de productos cárnicos presentados, como anteriormente se mencionó, sólo se refieren a medidas de músculo, aunque si bien es cierto que algunos órganos internos de algunos animales se incluyen como productos comestibles. Sea el caso del hígado de ternera [McDonald et al. 1999] en el que las concentraciones de actividad se encuentran en un rango de entre 200-3000 mBq/kg. En comparación con la actividad determinada en el músculo, hay una variación de un orden de magnitud, con lo que queda de manifiesto la afinidad del  $^{210}\text{Po}$  a asociarse en los tejidos de estos órganos.

Es reseñable el caso de la carne de reno, donde las concentraciones de actividad para el radionucleido de estudio son de 20.000 mBq/kg, en el músculo, y 600.000 mBq/kg [Skuterud et al. 2005], en el hígado. Estos valores se justifican por los hábitos alimenticios de esta especie, cuyo componente esencial de su dieta incluye setas, champiñones, líquenes y musgos, estando estos dos últimos enriquecidos en  $^{210}\text{Po}$ . Los líquenes presentan una concentración de actividad en un rango de 70 a 200 Bq/kg, según un estudio realizado en Noruega [Skuterud et al. 2005], y para el musgo se reportan valores que se encuentran entre 180 y 700 Bq/kg [Persson et al. 2011].

Haciendo referencia a las dosis efectivas asociadas al  $^{210}\text{Po}$ , encontramos que el valor más alto se obtiene para la carne de cerdo  $2,8 \pm 0,3 \mu\text{Sv/año}$ , siendo el pollo el que presenta el valor más bajo  $0,19 \pm 0,06 \mu\text{Sv/año}$ . Aunque las concentraciones de actividad en estos productos nos podían orientar al respecto, no podemos olvidar que la cantidad anual ingerida también va a jugar un papel importante al respecto. Así,

como veremos más adelante, el arroz presenta una concentración de actividad similar a la de la carne de cerdo, sin embargo la dosis efectiva que se estima es de la mitad dado que se considera que la cantidad ingerida es menor. En los productos que hemos analizado nos movemos en un rango de dosis que se encuentran entre  $2,8 \pm 0,3$  y  $0,19 \pm 0,06$   $\mu\text{Sv/año}$ . Si tenemos en cuenta el valor de referencia dado por la publicación del UNSCEAR (2000), en el que el consumo de <sup>210</sup>Po asociado a la ingesta de carne es de 60 mBq/kg, y estimándose un consumo anual de 50 kg de estos productos, se obtiene una dosis efectiva asociada al radioisótopo de interés de  $3,6 \mu\text{Sv/año}$ . Si sumamos las contribuciones a la dosis por <sup>210</sup>Po que hemos obtenido en nuestros productos, dejando fuera el resultado hallado para los huevos, tendríamos una dosis efectiva de  $3,33 \mu\text{Sv/año}$ , un valor muy cercano al estimado por el UNSCEAR, pero en el que tenemos que tener presente que la cantidad considerada en nuestro estudio no llega a los 50 kg, sino a 31,8 kg. Sin embargo si en este grupo de productos metemos el resultado calculado para los huevos, la dosis efectiva alcanza un valor de  $6 \mu\text{Sv/año}$ , y aun sigue considerando una cantidad ingerida más baja que la que se consideró para el cálculo de la dosis de el UNSCEAR, siendo para este caso de 40,1 kg.

### 5.3.4 Productos marinos

Los resultados obtenidos en este grupo alimenticio, son de gran interés, por ese motivo se presenta un capítulo único para ellos, hecho por el cual no se presentan detalles de los mismos en este apartado. Si bien es cierto que se ha decidido presentar los resultados de algunos, para que quede constancia de la relevancia de los mismos. En pescados, moluscos y mariscos, las concentraciones de actividad de <sup>210</sup>Po se diferencian en varios órdenes de magnitud respecto a los otros alimentos analizados, hecho que también se manifiesta en los cálculos de dosis.

### 5.3.5 Lácteos

Los valores de concentración de actividad y dosis correspondientes a las muestras de lácteos analizadas se presentan en la tabla 5.6. Para este grupo, en la publicación del UNSCEAR a la que llevamos haciendo referencia en todo este capítulo, el valor de referencia que se da, para la concentración de actividad de <sup>210</sup>Po, es de 60 mBq/kg.

Lácteos	Concentración de actividad de <sup>210</sup> Po (mBq/kg)				Dosis Efectiva ( $\mu\text{Sv/año}$ )
	Resultados del estudio	Resultados del estudio	Polonia[Pietrzak et al. 1997]	Siria[Al-Masri et al. 2004]	Resultados del estudio
Leche	$6,2 \pm 0,6$	8-12	19	5-10	$0,56 \pm 0,05$
Yogur	$28 \pm 34$				$0,33 \pm 0,05$

Tabla 5.6: Comparativa de resultados de <sup>210</sup>Po (mBq/kg) en peso húmedo para muestras de distintos productos lácteos en distintos estudios

Se observa en la tabla 5.6, que los valores obtenidos en nuestro estudio, 6,2 mBq/kg en leche, concuerdan con los datos que se han obtenido en otros estudios similares, entre 5 y 19 mBq/kg, aunque son inferiores al dado por el UNSCEAR, 60 mBq/kg. Si bien es cierto que la concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  es mayor en yogures que en leche, si se tiene en cuenta el consumo per cápita, encontramos una actividad anual de  $464 \pm 45$  mBq/año y  $279 \pm 38$  mBq/año, con lo que la leche aporta una mayor actividad en la dieta anual. En este caso consideramos la media de los últimos tres años (2011-2013).

Teniendo en cuenta el valor asignado por el UNSCEAR de actividad de  $^{210}\text{Po}$  ingerida, y asumiendo un consumo de 100 litros de leche anuales (103,2 kg/año para el caso de la leche entera), se obtendría una dosis de 7,2  $\mu\text{Sv/año}$ . Además del menor consumo que se hace de estos productos en nuestro país, que entre leche y yogures llegan a unos 85 kg, la menor concentración de actividad encontrada en los productos analizados, hacen que la dosis efectiva no alcance 1  $\mu\text{Sv/año}$ .

### 5.3.6 Cereales y legumbres

En este grupo de alimentos, considerados como una componente importante en la dieta, vamos a incluir: pan, pasta, arroz y lentejas. Los datos obtenidos, tal y como se hizo anteriormente se van a comparar, en la tabla 5.7, con otros encontrados en estudios que consideran estos alimentos.

Cereales y legumbres	Concentración de actividad de $^{210}\text{Po}$ (mBq/kg)				Dosis Efectiva ( $\mu\text{Sv/año}$ )
	Resultados del estudio	Brasil [Turtiainen et al. 2001]	Alemania [Turtiainen et al. 2001]	India [Kannan et al. 2001]	Resultados del estudio
Pan	$130 \pm 20$		40-200		$5,7 \pm 0,9$
Arroz	$227 \pm 28$			230	$1,1 \pm 0,1$
Pasta	$39 \pm 8$	14-200			$0,18 \pm 0,04$
Lentejas	$19 \pm 3$				$0,02 \pm 0,01$

Tabla 5.7: Comparativa de resultados de  $^{210}\text{Po}$  (mBq/kg) en peso húmedo para muestras de cereales y legumbres en distintos estudios

Se pueden encontrar distintos estudios donde se presentan valores de concentraciones de  $^{210}\text{Po}$  en diversos cereales y productos derivados de éstos. El trigo, presenta una actividad de 290 mBq/kg [Turtiainen et al. 2011]. Valores más elevados pueden obtenerse de forma puntual en algunas localizaciones que se ven afectadas por actividades antropogénicas [Louw et al. 2009], como es el caso de zonas cercanas a actividades mineras, dado que se pueden producir en esos puntos liberación de aerosoles enriquecidos en radionucleidos naturales.

Los resultados obtenidos en nuestro estudio, son comparables con los presentados en otros. Si bien es cierto, que todos sobrepasan el valor de referencia publicado por el UNSCEAR (2000), siendo éste de 60 mBq/kg.

A pesar de que tanto legumbres como arroz son un componente importante en la dieta de muchas regiones, son pocos los estudios que presentan resultados de concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en estos productos.

Los resultados de dosis calculados en los productos de nuestro estudio, se encuentran entre  $0,02 \pm 0,01$  y  $5,7 \pm 0,9$   $\mu\text{Sv/año}$ , obteniendo una dosis efectiva por el consumo de todos ellos de unos 7  $\mu\text{Sv/año}$ . Un valor similar que para el encontrado para la suma de los productos cárnicos analizados.

### 5.3.7 Verduras y frutas

Los resultados obtenidos en nuestro estudio, quedan plasmados en la tabla 5.8 en la que se observan resultados de vegetales de hoja ancha, que se caracterizan por presentar valores más altos que otros vegetales de raíz. Esto es debido a la forma en la que el  $^{210}\text{Po}$  llega a estos vegetales, que se produce fundamentalmente por la deposición de  $^{210}\text{Po}$  o su progenitor, el  $^{210}\text{Pb}$ , a través de aerosoles. Cuanto mayor es la superficie expuesta, es decir, la superficie cubierta por las hojas, mayor va a ser la deposición de  $^{210}\text{Po}$  y  $^{210}\text{Pb}$  sobre este vegetal.

Frutas y verduras	Concentración de actividad de $^{210}\text{Po}$ (mBq/kg)			Dosis Efectiva ( $\mu\text{Sv/año}$ )
	Resultados del estudio	India [Kannan et al. 2001]	Polonia [Pietrzak et al. 1997]	Resultados del estudio
Manzana	$54 \pm 8$		55	$0,8 \pm 0,1$
Patata	$26 \pm 3$	5-80		$0,9 \pm 0,1$
Endibia	$6,0 \pm 0,7$			$0,01 \pm 0,01$
Espinacas	$170 \pm 6$	200-400		$0,31 \pm 0,01$
Acelgas	$48 \pm 3$			$0,09 \pm 0,01$
Lechuga	$46 \pm 2$	70-300		$0,26 \pm 0,01$
Escarola	$23 \pm 2$			$0,04 \pm 0,01$
Canónigos	$65 \pm 3$			$0,12 \pm 0,01$
Brócoli	$27 \pm 2$			$0,05 \pm 0,01$
Cogollos	$34 \pm 2$			$0,06 \pm 0,01$

Tabla 5.8: Dosis efectiva debido a la ingesta de  $^{210}\text{Po}$  en las distintas regiones ordenados en función de un mayor consumo de pescados y mariscos

Los valores obtenidos en nuestro estudio se encuentran dentro de los rangos esperados y son comparables a los que se presentan en otros estudios. Si bien es cierto que los vegetales de hoja ancha justifican sus resultados por la captación del  $^{210}\text{Po}$  por



deposición directa de éste o su progenitor en las hojas, los vegetales de raíz, como es el caso de la patata lo incorpora por absorción de este radionucleido desde el suelo.

Por otro lado, podemos comentar que las concentraciones de actividad en frutas suelen ser moderadas. En nuestro estudio nos hemos limitado sólo al análisis de manzanas, cuyo resultado coincide con el dado por un estudio realizado en Polonia[Pietrzak et al. 1997], en el que además también se muestra un valor de 50 mBq/kg para las fresas. Estos valores, concuerdan con el valor de referencia publicado por el UNSCEAR, 30 - 40 mBq/kg. Es cierto que estos valores son superados por otras frutas, cuyos resultados han sido obtenidos de otros estudios, en los que las moras[Vaaramaa et al. 2009] y frambuesas[McDonald et al. 1999] silvestres presentan valores entre 1.000-3.000 mBq/kg y 1.000-2.000 mBq/kg respectivamente. Estos resultados pueden justificarse además de por una mayor deposición seca/húmeda de estos radionucleidos en estos arbustos que forman una capa dominante en las zonas donde se cultivan, sino porque el Polonio presenta un mayor rango de tasa de transferencia suelo-baya que otros radionucleidos, por lo cual la absorción de este elemento desde el suelo se presenta como una vía de entrada y probablemente después de su absorción se distribuye a distintas partes del arbusto, entre ellas al fruto.

Haciendo referencias a las dosis obtenidas, podemos ver que comparativamente respecto a otros grupos de alimentos nos encontramos con valores muy bajos, cuya media se encuentra en  $0,3 \pm 0,3$   $\mu\text{Sv/año}$  y dentro del rango 0,01 - 0,94  $\mu\text{Sv/año}$ , porque a pesar de que en algunos alimentos de este grupo las concentraciones de actividad eran mayores que para productos de otros grupos, la cantidad ingerida de los mismos en comparación con otros es muy baja, como es el caso de las espinacas.

#### 5.4 Resultados de concentración de actividades de $^{210}\text{Po}$ en muestras de dieta tipo

	Peso Bruto (g)	Peso Neto (g)	PERDIDA DE PESO POR EVAPORACIÓN (%)
1TRIM2007	4978	771	84,51
2TRIM2007	4606	808	82,46
3TRIM2007	5069	664	86,9
4TRIM2007	4900	776	84,16
1TRIM2008	4973	959	80,71
2TRIM2008	4865	1099	77,4
3TRIM2008	4806	970	79,81
4TRIM2008	4699	842	82,08
1TRIM2009	4954	893	81,97
2TRIM2009	4746	1034	78,21
3TRIM2009	6837	1161	83,01
4TRIM2009	4387	938	78,61
1TRIM2010	4619	1022	77,87
2TRIM2010	4191	918	78,10
3TRIM2010	4243	941	77,82
4TRIM2010	4417	1065	75,89
1TRIM2011	4849	1077	77,79
2TRIM2011	4341	756	82,58
3TRIM2011	4851	890	81,65
4TRIM2011	4400	761	82,70
1TRIM2012	4867	915	81,20
2TRIM2012	4616	983	78,70
3TRIM2012	4693	1046	77,71
4TRIM2012	4748	867	81,74

Tabla 5.9: Peso original de la porción de la muestra que fue evaporada, de donde se tomaron las distintas alícuotas, y porcentaje de pérdida de peso por evaporación

En la tabla 5.9 se muestran las pérdidas de peso por evaporación experimentadas por las muestras de DT analizadas, al ser llevadas a sequedad. Se observa que la proporción de pérdida es bastante considerable, rondando un 80%. Esto se debe a que parte de esta dieta puede estar formada por productos lácteos, sopas, frutas y otros alimentos con alto contenido en agua.

En la tabla 5.10 se muestran los resultados obtenidos en la determinación de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en las muestras de dieta tipo analizadas en peso húmedo. Cada muestra viene identificada por el trimestre y año en que fue recogida. El número de muestras analizadas ha sido un total de 24, recogidas desde 2007 hasta 2012. El hecho que las incertidumbres sean en la mayoría de las determinaciones en torno al 10% se debe a las bajas concentraciones obtenidas y a que los procedimientos

desarrollados nos limitan a tratar una cantidad muy pequeña de muestra (hemos analizado alrededor de 4 g de muestra).

Para todas las muestras se han podido obtener medidas de  $^{210}\text{Po}$  por encima del límite de detección de la técnica que ha sido aplicada. Las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  se encuentran en un rango que abarca desde  $74 \pm 23$  hasta  $5113 \pm 31$  mBq/kg en peso húmedo, aunque este último dato no parece representativo. El valor medio calculado es 754 mBq/kg, con una desviación estándar de 1058 mBq/kg, lo que induce a pensar que no es representativo de todas las muestras de dieta. De hecho en la mayoría de las muestras se puede observar que los resultados de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  se encuentran muy por debajo de este valor.

Para valorar la representatividad del valor medio calculado, representamos los resultados obtenidos en la figura 5.6. A simple vista podemos apreciar, separados por el segundo cuatrimestre de 2009, ignorando el resultado anómalo de  $5113 \pm 31$  mBq/kg en peso húmedo, que parece haber dos grupos de datos, uno de baja concentración de actividad, con un valor medio de  $203 \pm 122$  mBq/kg, y otro de alto valor de concentración de actividad, con un valor medio de  $796 \pm 544$  mBq/kg. Para comprobar la existencia de dos grupos de resultados diferentes calculamos la t de Student, que resulta valer 6,45. El valor límite para considerar que ambos grupos pertenecen a la misma distribución normal es 1,721, lo que supone que ambos grupos pertenecen a distribuciones diferentes. Además, como se puede observar en la figura 5.7, cada uno de los dos grupos de valores se pueden ajustar a una distribución normal, lo que confirma la existencia de dos valores de referencia diferentes en cada periodo de tiempo.

La variabilidad de las concentraciones de actividad puede estar fundamentada en la distinta composición de las muestras. Así, como se verá en los resultados correspondientes al análisis de pescados, este tipo de alimento aporta una relativamente mayor cantidad de  $^{210}\text{Po}$  a la dieta alimenticia. De esta forma, los valores de concentración mayores de 700 mBq/kg podrían explicarse por una anómala proporción de pescado en la muestra.

Muestra	$^{210}\text{Po}$ (mBq/kg)	Muestra	$^{210}\text{Po}$ (mBq/kg)
1TRIM2007	94 ± 11	1TRIM2010	893 ± 48
2TRIM2007	120 ± 13	2TRIM2010	759 ± 44
3TRIM2007	129 ± 18	3TRIM2010	2039 ± 98
4TRIM2007	372 ± 21	4TRIM2010	1813 ± 80
1TRIM2008	5113 ± 31	1TRIM2011	545 ± 44
2TRIM2008	180 ± 37	2TRIM2011	413 ± 34
3TRIM2008	203 ± 38	3TRIM2011	465 ± 43
4TRIM2008	421 ± 46	4TRIM2011	1193 ± 74
1TRIM2009	235 ± 22	1TRIM2012	336 ± 44
2TRIM2009	74 ± 23	2TRIM2012	457 ± 57
3TRIM2009	891 ± 74	3TRIM2012	218 ± 17
4TRIM2009	616 ± 51	4TRIM2012	506 ± 25

Tabla 5.10: Concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  (mBq/kg) en peso húmedo, en las muestras de dieta tipo analizadas

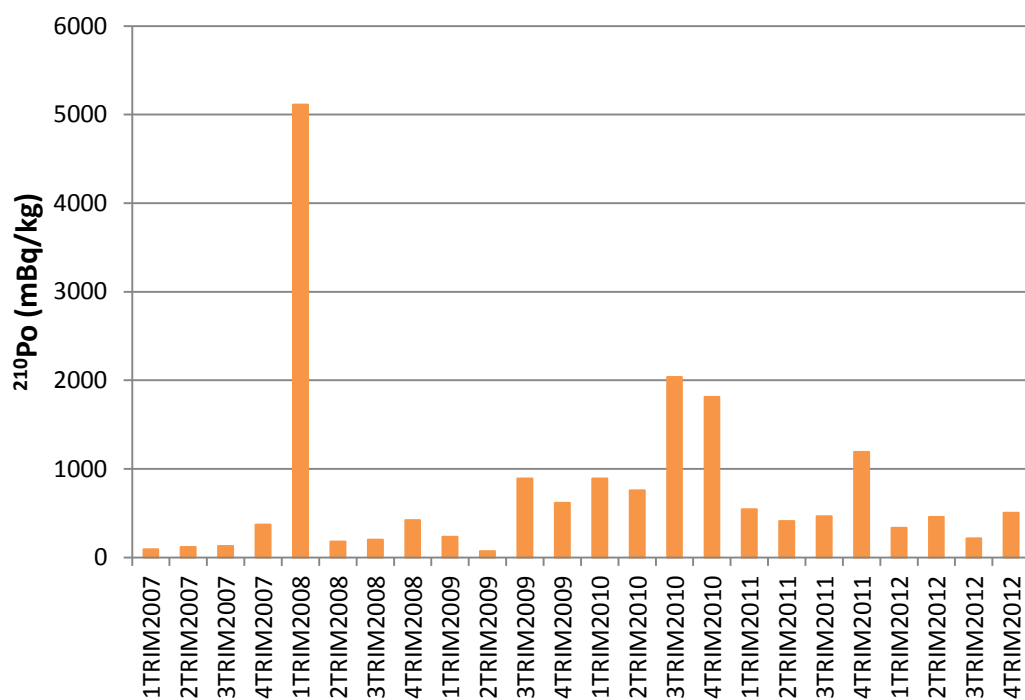
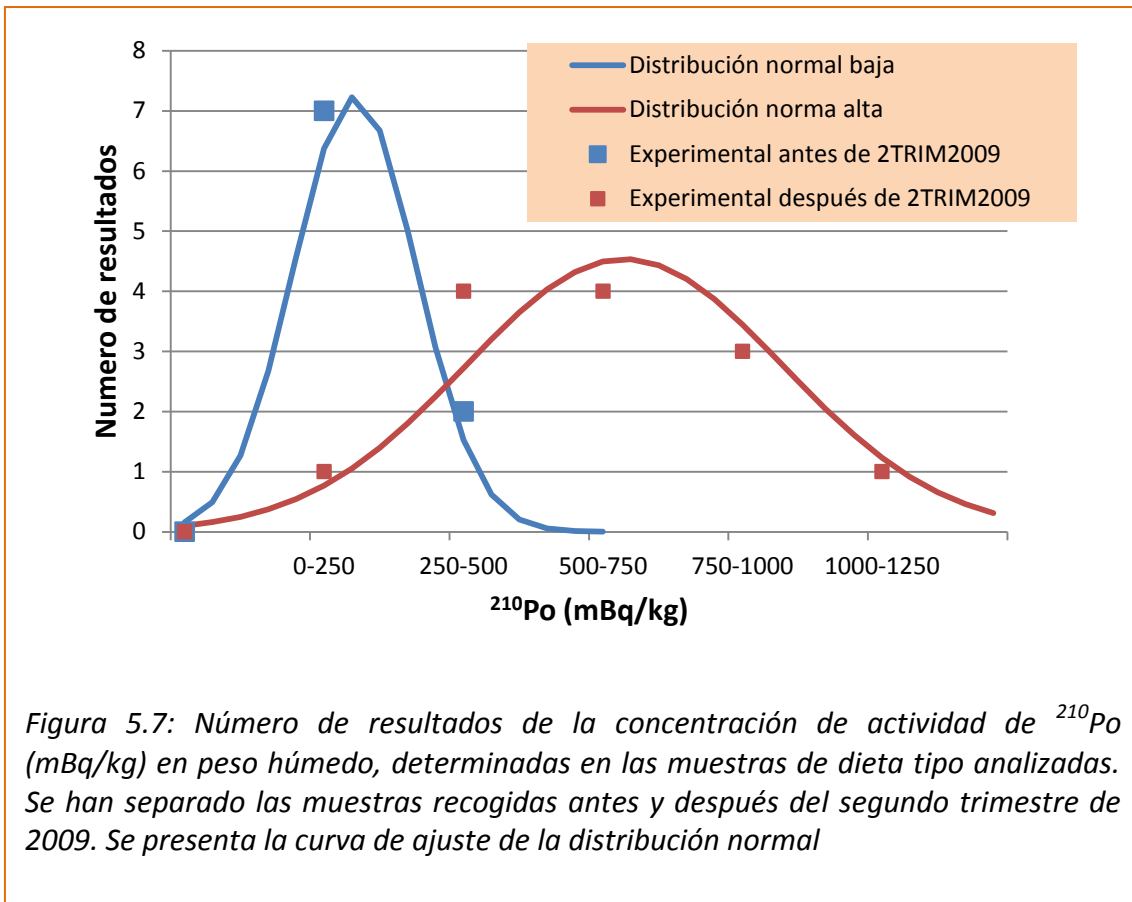


Figura 5.6: Concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  (mBq/kg) en peso húmedo, determinadas en las muestras de dieta tipo analizadas, ordenadas en función del momento de su recogida



En la literatura se encuentran escasos estudios similares de cálculos de actividad media diaria de  $^{210}\text{Po}$  por ingestión de dieta tipo, en la tabla 5.11 se presentan, junto a nuestro estudio, algunos de ellos.

$^{210}\text{Po}$	España	Polonia [Pietrzak et al. 1997]	Japón [Sugiyama et al. 2009]	Siria [Al-Masri et al. 2004]	Gran Bretaña [Smith-Briggs et al. 1986]	Islas Marshall (USA) [Noshkin et al. 1994]
$A_{\min}$	$74 \pm 23$	51,9	80,0	-	-	-
$A_{\max}$	$5113 \pm 31$	286,0	1840,0	-	-	-
$A_{m/día}$	$754 \pm 1058$	$117 \pm 51$	$664 \pm 534$	$949,7^2$	95,9	4566
$A_{m/año}$	275,1	42,8	242,5	346,6	35	1666

Tabla 5.11: Comparativa de resultados de  $^{210}\text{Po}$  para muestras de dieta de distintos países donde  $A_{\min}$ =Actividad Mínima (mBq/kg en peso húmedo),  $A_{\max}$ =Actividad máxima (mBq/kg en peso húmedo),  $A_{m/día}$ =Actividad Media Diaria (mBq/día),  $A_{m/año}$ =Actividad Media Anual (Bq/año)

<sup>2</sup> Este dato se ha estimado a partir de resultado de dosis que se mostraba en el artículo. Asumiendo una ingesta diaria de 1kg de comida

La ingestión anual media de  $^{210}\text{Po}$ ,  $A_m/\text{año}$ , va a depender de la composición de la dieta de cada zona, explicándose con este hecho la variabilidad existente entre los resultados. Para nuestro estudio se ha obtenido un valor medio de ingesta de  $^{210}\text{Po}$  de 275,1 Bq/año. Dicho valor medio coincide con los valores medios registrados en dietas de Japón y Siria, 242,5 y 346,6 Bq/año, respectivamente. Los tres países se caracterizan por tener costa y, por tanto, porque los productos marinos son una parte importante de la dieta anual. Este factor, probablemente, se acentúa en el caso de las Islas Marshall, para cuya dieta se considera una ingestión anual de 1666,7 Bq/año. En el caso de países que tienen un menor contenido de alimentos marinos en su dieta los valores medios son menores.

Existe un valor de referencia a nivel mundial para la ingestión anual de  $^{210}\text{Po}$  asociado a la dieta. Este valor es de 58 Bq/año[UNSCEAR. 2000], y fue publicado por el UNSCEAR en el año 2000. En la misma publicación se da como dato, que la ingestión anual de  $^{210}\text{Po}$  en Europa es inferior a 40 Bq/año, fundamentando este dato en estudios realizados en Italia, Rusia, Rumanía, Polonia y Gran Bretaña.

Si comparamos estos valores de referencia, dados por el UNSCEAR en el año 2000, con los obtenidos en los distintos estudios que se presentan en la tabla 5.11, podemos anunciar que los valores de referencia dados por el UNSCEAR son más bajos que los obtenidos por nosotros en España, probablemente porque las dietas que ha utilizado son menos ricas en productos marinos y donde prima el consumo de cereales, vegetales y productos cárnicos.

Por otra parte, para la estimación realizada en Gran Bretaña[Smith-Briggs et al. 1986], que se indica en la tabla 5.11, se ha considerado el consumo de de los siguientes productos considerados como fundamentales: pan, cereales, huevos, lácteos, vegetales, conservas, carnes y patatas. En ese estudio, la ingesta anual de  $^{210}\text{Po}$  para la población de Gran Bretaña es de 35 Bq/año. Ese valor es menor que el obtenido en España ya que, en la estimación realizada el pescado se encuentra englobado en las conservas, hecho que puede conducir a que la cantidad de  $^{210}\text{Po}$  ingerida por la población británica se encuentre subestimada, dado que aunque el consumo de productos marinos sea bajo en esta población, un mínimo consumo contribuye en una proporción apreciable a la ingesta anual de  $^{210}\text{Po}$ , tal y como hemos visto con anterioridad en este capítulo y veremos en el capítulo 6 en el que sólo se hablará de este grupo alimenticio.

Si vemos ahora el estudio realizado en Polonia[Pietrzak et al. 1997], en el que el valor medio anual es de 42,8 Bq/año, en dicho estudio se indica que se han considerado productos marinos en la dieta, aunque lo hacen en muy baja proporción, asumiendo un consumo anual de los mismos de 4 kg/año y en especies que como se verá en el

siguiente capítulo se caracterizan por presentar las más bajas concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  dentro de este grupo alimenticio.

En el caso del estudio llevado a cabo en Siria [Al-Masri et al. 2004] los resultados obtenidos quedan ligados a una mayor proporción en el consumo de productos marinos en su dieta, así como, unas altas concentraciones de  $^{210}\text{Po}$  presentes en el trigo incluido como componente en su dieta.

Para el caso del valor de actividad media en dietas pertenecientes a las Islas Marshall Islands, en el cual nos encontramos con un caso extremo, hay que considerar que los productos marinos son la base de su dieta, ya que el consumo de la isla se basa en un 97% en productos locales, es decir, en productos marinos.

Los resultados obtenidos en los distintos estudios, ponen de manifiesto, que el  $^{210}\text{Po}$  no se presenta de forma uniforme en todas las dietas, dependiendo de distintos factores y variables. Es por ello, que la decisión del UNSCEAR de fijar un valor, puede llevar, en algunos casos, a subestimar la concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  ingerida en las distintas dietas.

En la tabla 5.11 también se presentan los rangos de las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en dieta en varios países. El rango de valores más amplio se ha obtenido en nuestro estudio de la dieta española (74 – 5113 mBq/kg). En el caso de Japón, donde el consumo de productos marinos es importante, el rango va desde 80 a 1840 mBq/kg en peso húmedo. En el caso de Polonia también se tiene el rango de la concentración de  $^{210}\text{Po}$  en dieta: 51,9 – 286.

### 5.5 Resultados de concentración de actividades de isótopos de uranio en muestras de dieta tipo

De forma secuencial y simultánea a las determinaciones de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$ , se determinaron en las distintas muestras de dieta tipo las concentraciones de actividad de  $^{238}\text{U}$  y  $^{234}\text{U}$ . Los resultados obtenidos, concentraciones de actividad de los isótopos de uranio ( $^{238}\text{U}$  y  $^{234}\text{U}$ ) y razones de actividad  $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$ , se recopilan en la tabla 5.12.

Las concentraciones de actividad de ambos isótopos de uranio presentan grandes variaciones para las muestras analizadas. Así, las concentraciones de actividad de  $^{238}\text{U}$  (exceptuando medidas por debajo del límite de detección) se encuentran entre 3 y 38 mBq/kg y las de  $^{234}\text{U}$  entre 4 y 46 mBq/kg. La media de los valores detectados es 17 mBq/kg para el  $^{238}\text{U}$  al igual que en el caso del  $^{234}\text{U}$ , en peso húmedo. Las razones de actividad  $^{238}\text{U} / ^{234}\text{U}$  también pueden ser muy diferentes. Se han obtenidos razones de actividad cercanas a la unidad, pero también muy por debajo de la unidad y por

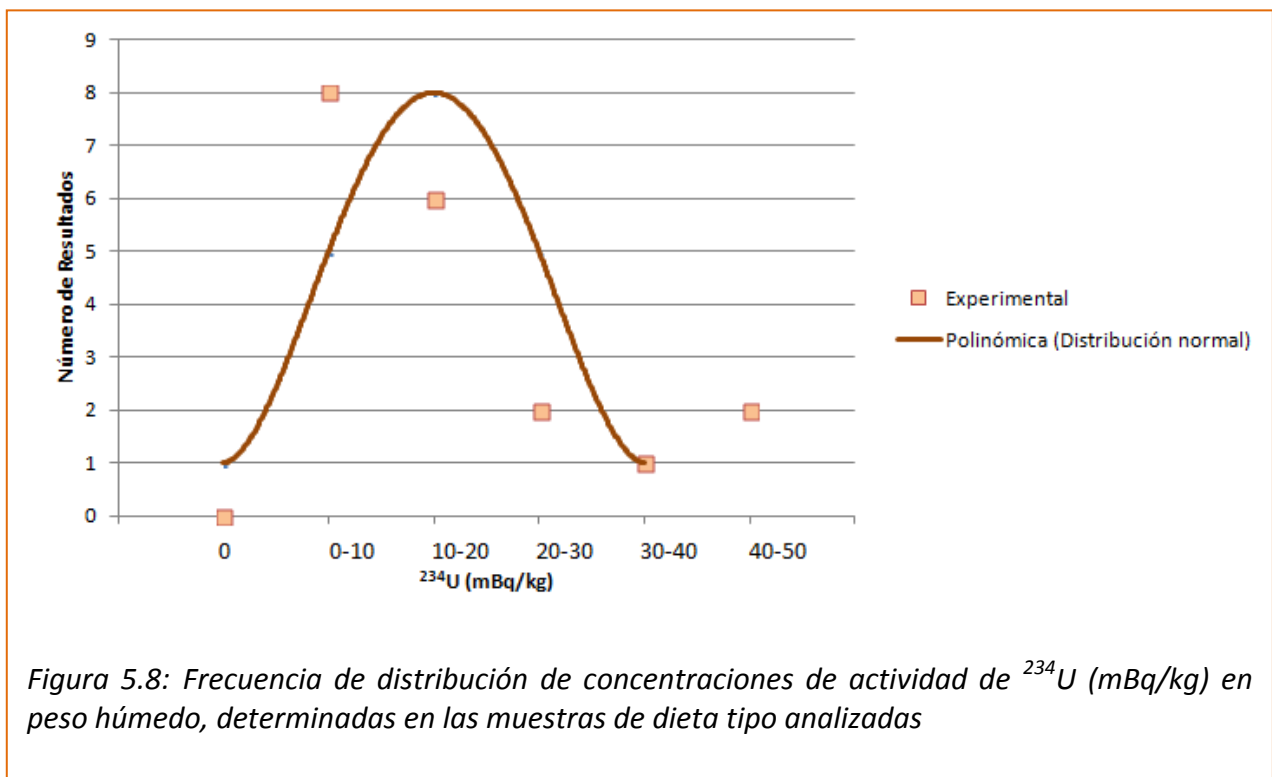
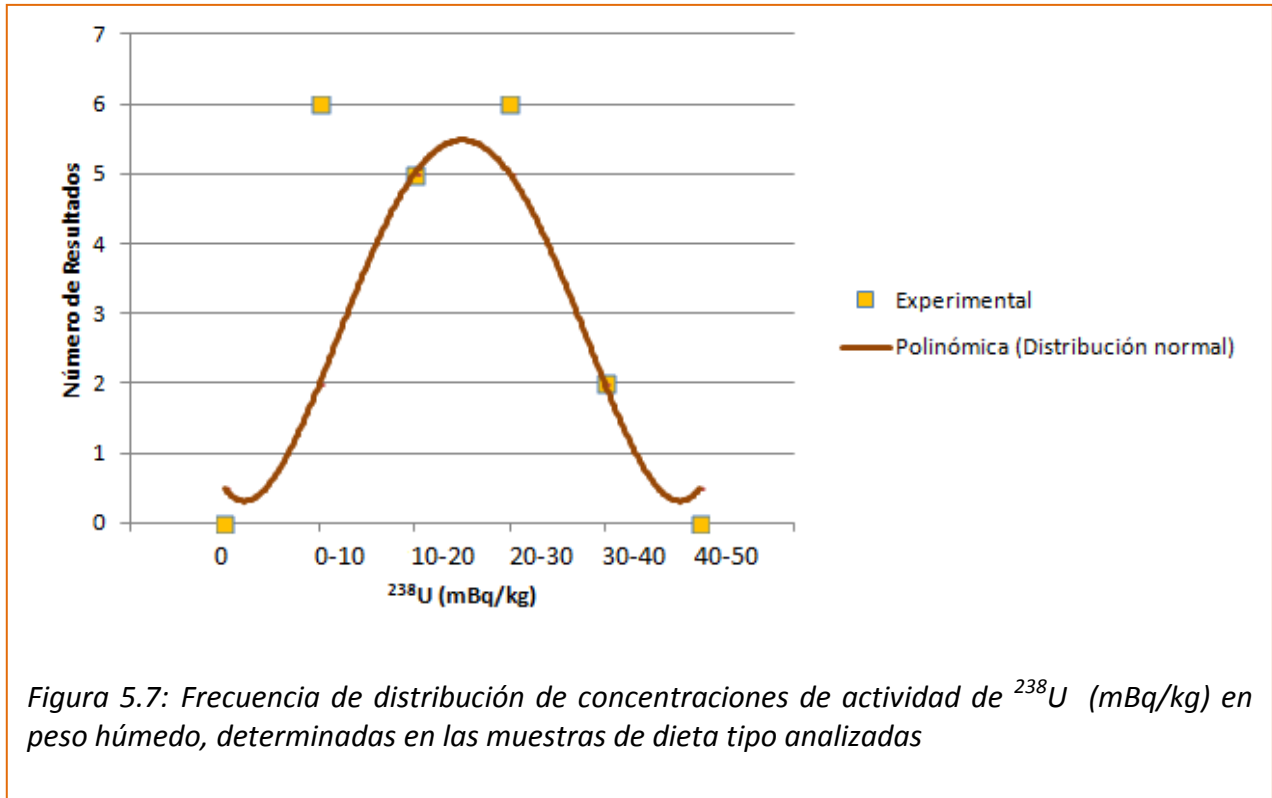
encima de la unidad. Las incertidumbres han resultado ser desde el 100 % , para los valores más bajos, hasta el 5 %, para el valor más alto.

Muestra	<sup>238</sup> U (mBq/kg)	<sup>234</sup> U (mBq/kg)	<sup>234</sup> U/ <sup>238</sup> U
1TRIM2007	NM	NM	-
2TRIM2007	NM	NM	-
3TRIM2007	NM	NM	-
4TRIM2007	NM	NM	-
1TRIM2008	23 ± 6	42 ± 9	1,8 ± 0,5
2TRIM2008	25 ± 14	9 ± 5	0,4 ± 0,1
3TRIM2008	24 ± 8	38 ± 12	1,6 ± 0,6
4TRIM2008	NM	NM	
1TRIM2009	29 ± 13	20 ± 11	0,7 ± 1,0
2TRIM2009	29 ± 18	46 ± 18	1,6 ± 1,0
3TRIM2009	3 ± 3	7 ± 6	2,1 ± 1,6
4TRIM2009	15 ± 6	8 ± 7	0,5 ± 1,3
1TRIM2010	18 ± 7	10 ± 3	0,5 ± 0,7
2TRIM2010	35 ± 18	7 ± 2	0,2 ± 0,8
3TRIM2010	38 ± 12	16 ± 4	0,4 ± 0,6
4TRIM2010	16 ± 8	18 ± 5	1,1 ± 0,7
1TRIM2011	22 ± 5	15 ± 2	0,7 ± 0,4
2TRIM2011	5 ± 2	17 ± 5	3,4 ± 0,7
3TRIM2011	7 ± 5	29 ± 6	3,9 ± 0,9
4TRIM2011	<1,4	4 ± 2	
1TRIM2012	11 ± 4	14 ± 8	1,4 ± 1,0
2TRIM2012	<1,7	5 ± 3	
3TRIM2012	12 ± 6	8 ± 7	0,6 ± 1,4
4TRIM2012	3 ± 1	8 ± 3	2,8 ± 0,4

Tabla 5.12: Concentraciones de actividad de <sup>234</sup>U y <sup>238</sup>U (mBq/kg) en peso húmedo, en las muestras de dieta tipo analizadas. NM significa no medido

Seleccionando grupos de datos, por año de recogida o por trimestre de recogida, no parece encontrarse ninguna correlación.





La frecuencia de distribución de los distintos resultados se muestran en las figuras 5.7 (para  $^{238}\text{U}$ ) y 5.8 (para  $^{234}\text{U}$ ) que se corresponde con la concentración de actividad de los isótopos de uranio de un total de 19 muestras. En el caso del  $^{238}\text{U}$ , los resultados

verifican la distribución de frecuencias de una distribución normal, con un valor medio de 17 mBq/kg. La mayor parte de los valores se encuentran entre 10 y 30 mBq/kg que, ignorando los valores extremos, sería para nosotros el rango típico de la dieta en España. Sin embargo, se puede ver que los resultados de  $^{234}\text{U}$  son más dispersos, encontrando un total de 14 muestras en los primeros intervalos, correspondientes entre 0 y 20 llegando a ser un 74% de las mismas. Además, los resultados no se ajustan a una distribución normal. Por tanto, no podemos considerar, para este último radionucleido, un rango estrecho que represente los valores típicos de la dieta en España.

Muestra	$^{210}\text{Po}/^{238}\text{U}$
<b>1TRIM2007</b>	-
<b>2TRIM2007</b>	-
<b>3TRIM2007</b>	-
<b>4TRIM2007</b>	-
<b>1TRIM2008</b>	222,3 ± 0,3
<b>2TRIM2008</b>	7,2 ± 0,8
<b>3TRIM2008</b>	8,5 ± 0,5
<b>4TRIM2008</b>	-
<b>1TRIM2009</b>	8,1 ± 0,5
<b>2TRIM2009</b>	2,6 ± 0,9
<b>3TRIM2009</b>	297,0 ± 1,1
<b>4TRIM2009</b>	41,1 ± 0,5
<b>1TRIM2010</b>	49,6 ± 0,4
<b>2TRIM2010</b>	21,7 ± 0,6
<b>3TRIM2010</b>	53,7 ± 0,4
<b>4TRIM2010</b>	113,3 ± 0,5
<b>1TRIM2011</b>	24,8 ± 0,3
<b>2TRIM2011</b>	82,6 ± 0,5
<b>3TRIM2011</b>	66,4 ± 0,8
<b>4TRIM2011</b>	-
<b>1TRIM2012</b>	30,5 ± 0,5
<b>2TRIM2012</b>	-
<b>3TRIM2012</b>	18,2 ± 0,6
<b>4TRIM2012</b>	168,7 ± 0,4

Tabla 5.13: Razones de actividad de  $^{210}\text{Po}/^{238}\text{U}$  en las muestras de dieta tipo analizadas

Pasamos ahora a comparar las concentraciones de actividad de  $^{238}\text{U}$  con las que antes mostramos para el  $^{210}\text{Po}$  en las mismas muestras de dieta tipo. Las razones de actividad  $^{210}\text{Po}/^{238}\text{U}$  se presentan en la tabla 5.13. Las razones de actividad son siempre superiores a la unidad, lo que indica que los niveles de isótopos de uranio no superan,

en ninguna de las muestras, las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$ , siendo éstas hasta de dos órdenes de magnitud superiores. Este hecho se debe fundamentalmente al carácter no bioacumulativo del uranio a lo largo de la cadena trófica, hecho que sí se observa para el polonio. Estas bajas concentraciones van a explicar también las altas incertidumbres, sobre todo si recordamos que sólo se analizan unos pocos gramos representativos de la muestra de estudio.

### 5.6 Resultados de dosis efectivas de $^{210}\text{Po}$ en muestras de dieta tipo

Con el fin de evaluar la aportación que hace el  $^{210}\text{Po}$  a la dieta, hemos procedido al cálculo de las dosis efectivas debido a la ingesta de esta radionucleido en las distintas muestras analizadas.

Teniendo en cuenta las características de la muestra tipo analizada, sólo se puede calcular de forma realista la dosis en la población adulta. En la tabla 5.14 se presenta la dosis efectiva de  $^{210}\text{Po}$  (en mSv/año), para las distintas muestras de dieta tipo colectadas trimestralmente desde el año 2007. Para los cálculos se ha considerado que la cantidad de dieta ingerida al día es de 1 kg/día en peso húmedo.

Los valores que hemos obtenido en nuestro estudio se encuentran en un rango comprendido 0,03 mSv/año y 2,24 mSv/año para adultos. A partir de los valores de referencia que considera el UNSCEAR de ingestión de  $^{210}\text{Po}$  asociado a la dieta, se obtiene una dosis efectiva asociada al mismo radionucleido de 0,07 mSv/año en adultos. En el caso de los valores medios obtenidos para nuestro grupo de muestras, nos encontramos que éste supera el valor dado por el UNSCEAR. Así, el valor medio de dosis efectiva en adultos es de  $0,3 \pm 0,5$  mSv/año, lo que supone multiplicar por cinco el valor de referencia del UNSCEAR.

En este caso, no estamos hablando de DIT tal y como hicimos en el capítulo de aguas minerales, en el que la DIT englobaba la aportación de todos los radionucleidos presentes en el agua, pues es de recordar que el UNSCEAR hace la estimación únicamente para el  $^{210}\text{Po}$  presente en la dieta. En nuestro caso a la hora de comparar hemos tomado el valor de 58Bq que es el que indica como valor de referencia a nivel mundial para la ingestión de este radionucleido asociado a la dieta completa. Si hubiéramos considerado el valor de referencia asociado a la dieta europea, las diferencias habrían sido aun mayores, ya que estiman una ingesta asociada de 40Bq, con lo que la dosis efectiva sería aun menor.

Contribución del $^{210}\text{Po}$ a la dosis comprometida por ingestión en adultos	
Muestra	mSv/año
1TRIM2007	0,04±0,01
2TRIM2007	0,05±0,01
3TRIM2007	0,06±0,01
4TRIM2007	0,16±0,01
1TRIM2008	2,24±0,01
2TRIM2008	0,08±0,02
3TRIM2008	0,09±0,02
4TRIM2008	0,18±0,02
1TRIM2009	0,10±0,01
2TRIM2009	0,03±0,01
3TRIM2009	0,39±0,03
4TRIM2009	0,27±0,02
1TRIM2010	0,39±0,02
2TRIM2010	0,33±0,02
3TRIM2010	0,89±0,04
4TRIM2010	0,79±0,03
1TRIM2011	0,24±0,02
2TRIM2011	0,18±0,02
3TRIM2011	0,20±0,02
4TRIM2011	0,52±0,03
1TRIM2012	0,15±0,02
2TRIM2012	0,20±0,03
3TRIM2012	0,10±0,01
4TRIM2012	0,22±0,01

Tabla 5.14: Contribución a la dosis efectiva por ingestión de  $^{210}\text{Po}$  (en mSv/año)

De forma análoga a como se viene haciendo a lo largo de este trabajo, se presentan resultados obtenidos a partir de estudios realizados por otros grupos. En la tabla 5.14 se exponen los valores de Dosis Efectiva Media calculadas para adultos y expresadas en mSv/año.

$^{210}\text{Po}$	España	Polonia [Pietrzak et al 1997]	Japón [Sugiyama et al. 2009]	Siria [Al- Masri et al. 2004]	Gran Bretaña [Smith- Briggs et al. 1994]	Islas Marshall (USA) [Noshkin et al. 1994]	India [Kannan et al. 2001]
$D_{EM}$	$0,3 \pm 0,5$	0,06	0,29	0,42	0,04	2,0	0,12-0,7

Tabla 5.15 Comparativa de resultados de dosis efectiva por ingestión de  $^{210}\text{Po}$  (en mSv/año) en adultos, en distintos estudios realizados

Los resultados obtenidos de dosis efectiva por ingestión de  $^{210}\text{Po}$  (en mSv/año) en adultos en los distintos estudios llevados a cabo por varios grupos de investigación, se encuentran entre 0,04 y 0,7 mSv/año siendo un caso excepcional el de las Islas Marshall dada su particular dieta esencialmente marina. La media de éstos, tomando del rango dado en el estudio realizado en la India [Kannan et al. 2001], el valor superior, es de  $0,31 \pm 0,24$  mSv/año, superándose de nuevo el valor obtenido a partir de datos facilitados por el UNSCEAR, que recordemos era de 0,07 mSv/año para adultos. Además cabe señalar que también supera el valor de referencia de dosis debido a la ingesta de todos los radionucleidos que el UNSCEAR cifra en 0,29 mSv/año. Esto da una idea de la importancia del  $^{210}\text{Po}$  como contribuyente a esa dosis, y de la precaución que se debe tomar al manejar estos valores de referencia.

Haciendo referencia a los distintos hábitos alimenticios que puede seguir una misma población, hemos querido estimar posibles variaciones en la dosis efectiva de la población española en función a los hábitos de consumo de las distintas regiones. Para dicha estimación, nos hemos basado en datos de consumo de la población española publicados por el MAGRAMA para el año 2013. A pesar de que España se caracteriza por el seguimiento de una dieta mediterránea, podemos ver variaciones de consumo en los distintos productos y cómo esto va a afectar a la dosis recibida por la población de las distintas regiones. Hemos considerado los siguientes grupos alimenticios: pescado, mariscos, carne, verdura, fruta, pan, arroz, pasta y otros. Para cada grupo se ha realizado una media de las concentraciones de actividad halladas en cada tipo de alimento. En el grupo de otros se engloban el resto de alimentos, tales como lácteos, huevos, etc. Teniendo en cuenta las distintas cantidades consumidas en cada región, así como la media española, se ha procedido a realizar el cálculo de dosis efectiva debido a la ingesta de  $^{210}\text{Po}$ . A modo gráfico se presenta en la figura 5.9 los distintos datos de consumo para las distintas regiones, que aunque a simple vista puedan parecer variaciones insignificantes, tal y como veremos a continuación, van a influir en la cantidad de  $^{210}\text{Po}$  incorporada por ingestión.

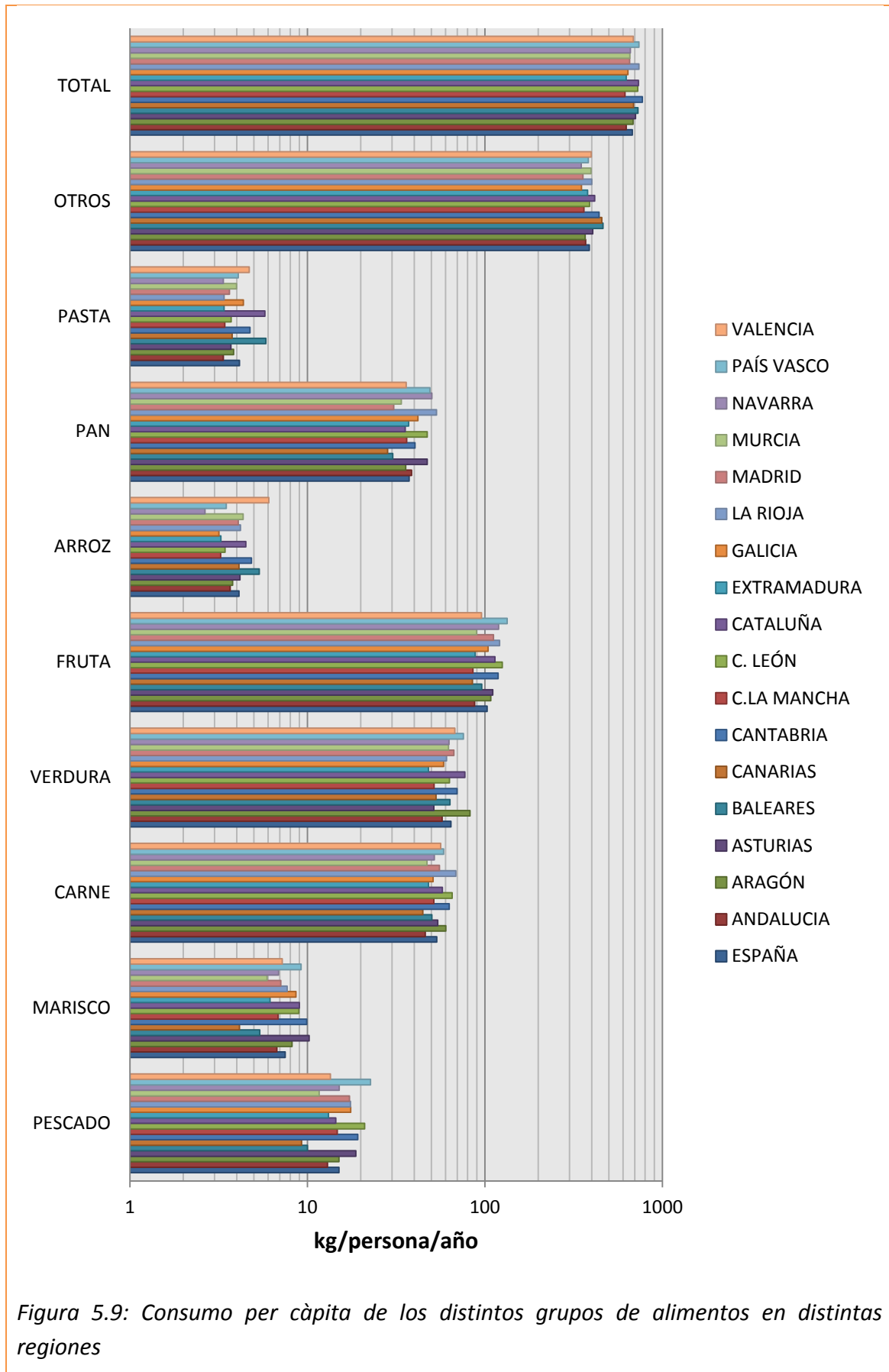


Figura 5.9: Consumo per càpita de los distintos grupos de alimentos en distintas regiones

En la siguiente figura se van a presentar las dosis efectivas debido a la ingesta del radionucleido de interés en función de la ingesta total de alimentos.

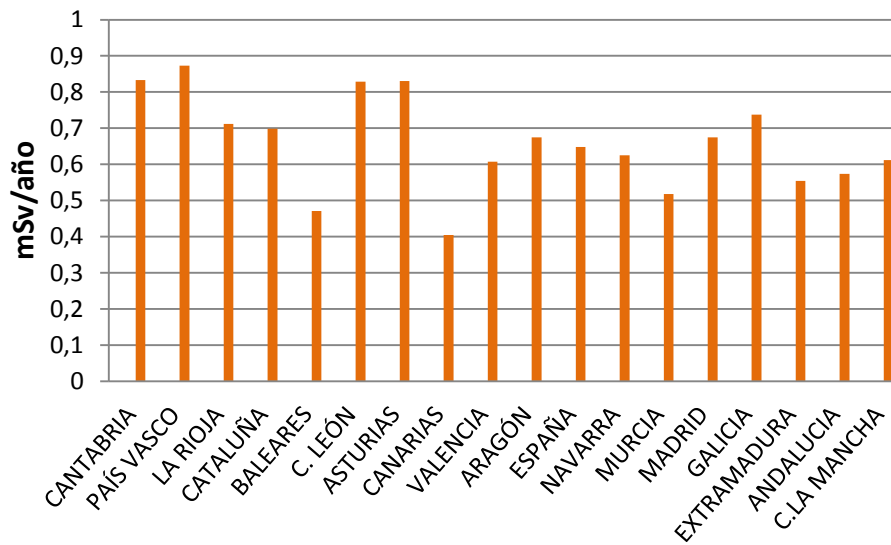


Figura 5.10: Dosis efectiva debido a la ingesta de  $^{210}\text{Po}$  en las distintas regiones ordenados en función de un mayor consumo de alimentos

Si analizamos la figura con los resultados obtenidos podemos enunciar que la cantidad total de alimentos ingeridos no es un factor condicionante de una mayor dosis efectiva para el radionucleido de estudio, pues como se ve por ejemplo para la comunidad de Baleares, la dosis efectiva presentada es menor que para Galicia.

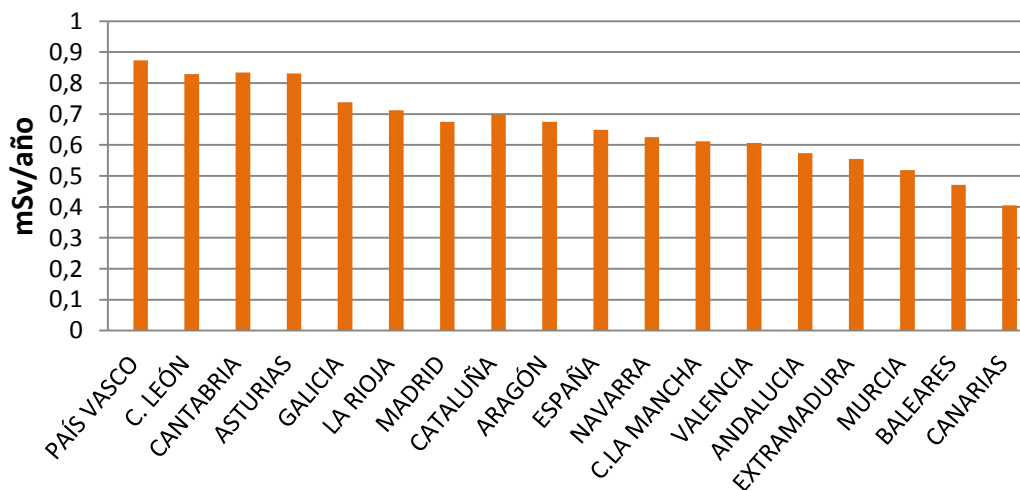
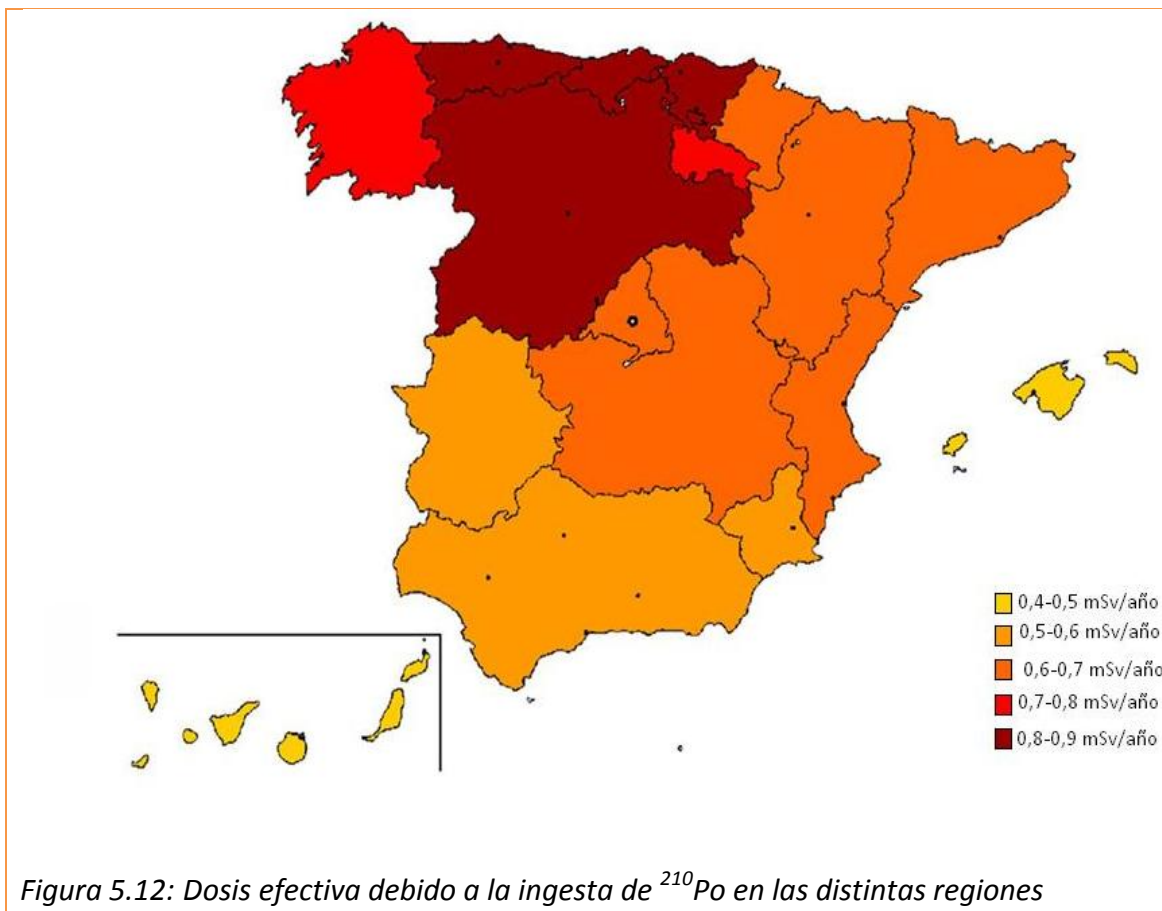


Figura 5.11: Dosis efectiva debido a la ingesta de  $^{210}\text{Po}$  en las distintas regiones ordenados en función de un mayor consumo de pescados y mariscos

En el caso de que presentemos los datos en función del consumo de pescado y mariscos, vemos una mayor correlación con la dosis efectiva. Regiones con un mayor consumo de productos marinos van a presentar una mayor dosis efectiva para este elemento.

Los resultados obtenidos para el cálculo de las distintas dietas se encuentran entre  $0,40 \pm 0,65$  mSv/año en las Islas Canarias, y  $0,87 \pm 1,43$  mSv/año en el País Vasco, con una media en España de  $0,65 \pm 1,0$  mSv/año. En la siguiente figura se presenta el mapa de España coloreado por regiones según el rango de dosis efectiva debida al  $^{210}\text{Po}$  susceptible a ser recibido por la población en función del consumo de la zona.



Con esto se vuelve a demostrar de la importancia de la composición de la dieta, y que dietas con una mayor proporción de productos marinos presentarán dosis efectivas distintas a dietas compuestas en una mayor proporción por otros productos.

### 5.7 Resultados de dosis efectivas de $^{234}\text{U}$ y $^{238}\text{U}$ en muestras de dieta tipo

La contribución a la dosis efectiva por ingestión de las distintas dietas se ha realizado también para el  $^{234}\text{U}$  y  $^{238}\text{U}$ , presentando los datos obtenidos en las tablas que se muestran a continuación.



Muestra	$^{234}\text{U}$	$^{238}\text{U}$
<b>1TRIM2008</b>	$7,4 \pm 1,5$	$3,8 \pm 1,0$
<b>2TRIM2008</b>	$1,6 \pm 0,8$	$4,0 \pm 2,3$
<b>3TRIM2008</b>	$6,8 \pm 2,1$	$3,9 \pm 1,3$
<b>4TRIM2008</b>	NM	NM
<b>1TRIM2009</b>	$3,5 \pm 1,9$	$4,8 \pm 2,1$
<b>2TRIM2009</b>	$8,3 \pm 3,1$	$4,8 \pm 3,0$
<b>3TRIM2009</b>	$1,3 \pm 1,1$	$0,6 \pm 0,4$
<b>4TRIM2009</b>	$1,5 \pm 1,3$	$2,5 \pm 1,1$
<b>1TRIM2010</b>	$1,8 \pm 0,5$	$3,0 \pm 1,1$
<b>2TRIM2010</b>	$1,3 \pm 0,4$	$5,7 \pm 3,0$
<b>3TRIM2010</b>	$2,9 \pm 0,7$	$6,3 \pm 2,1$
<b>4TRIM2010</b>	$3,2 \pm 0,9$	$2,7 \pm 1,3$
<b>1TRIM2011</b>	$2,7 \pm 0,4$	$3,6 \pm 0,9$
<b>2TRIM2011</b>	$3,0 \pm 0,9$	$0,8 \pm 0,3$
<b>3TRIM2011</b>	$5,2 \pm 1,1$	$1,2 \pm 0,8$
<b>4TRIM2011</b>	$0,7 \pm 0,4$	$<0,2$
<b>1TRIM2012</b>	$2,6 \pm 1,5$	$1,8 \pm 0,7$
<b>2TRIM2012</b>	$0,9 \pm 0,5$	$<0,3$
<b>3TRIM2012</b>	$1,4 \pm 1,2$	$2,0 \pm 1,1$
<b>4TRIM2012</b>	$1,4 \pm 0,5$	$0,4 \pm 0,2$

Tabla 5.16 : Contribución del  $^{234}\text{U}$  y  $^{238}\text{U}$  a la dosis comprometida por ingestión en adultos ( $\mu\text{Sv/año}$ )

Las dosis efectivas debidas a los isótopos de uranio, presentan valores muy pequeños. Encontramos estos valores para el  $^{234}\text{U}$  valores entre  $0,7 \pm 0,4$  y  $8,3 \pm 3,1$   $\mu\text{Sv/año}$  en adultos. Y para el  $^{238}\text{U}$  entre  $<0,2$  y  $6,3 \pm 2,1$   $\mu\text{Sv/año}$  también en adultos. Siendo las medias de dosis efectivas debidas a la ingesta de  $^{234}\text{U}$  de  $3,0 \pm 2,3$   $\mu\text{Sv/año}$  y para  $^{238}\text{U}$  de  $2,8 \pm 1,9$   $\mu\text{Sv/año}$  en adultos. Encontrándonos valores más altos para el  $^{234}\text{U}$  que para las dosis de  $^{238}\text{U}$ , no solo por que los coeficientes de dosis de este primero sean algo superiores, sino por las mayores concentraciones halladas en las distintas muestras de este radionucleido.

En las figuras 5.13 y 5.14 se presentan la distribución de la dosis por ingesta debida a estos dos radioisótopos siguiendo el mismo orden que el empleado para representar la dosis debida al  $^{210}\text{Po}$ . Dada la diferente distribución de las concentraciones de actividad de los isótopos de uranio, los diagramas van a ser distintos entre sí.

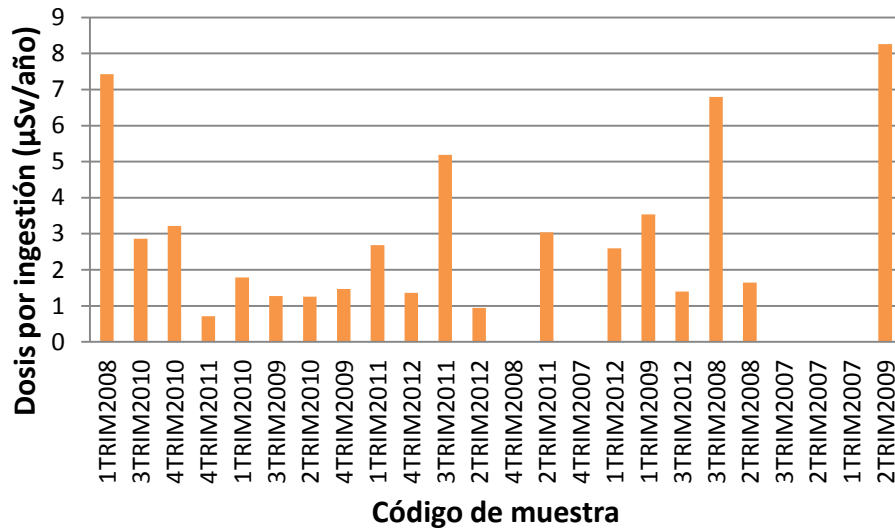


Figura 5.13: Dosis efectiva por ingesta de dieta tipo debida al  $^{234}\text{U}$  ( $\mu\text{Sv/año}$ ) para adultos

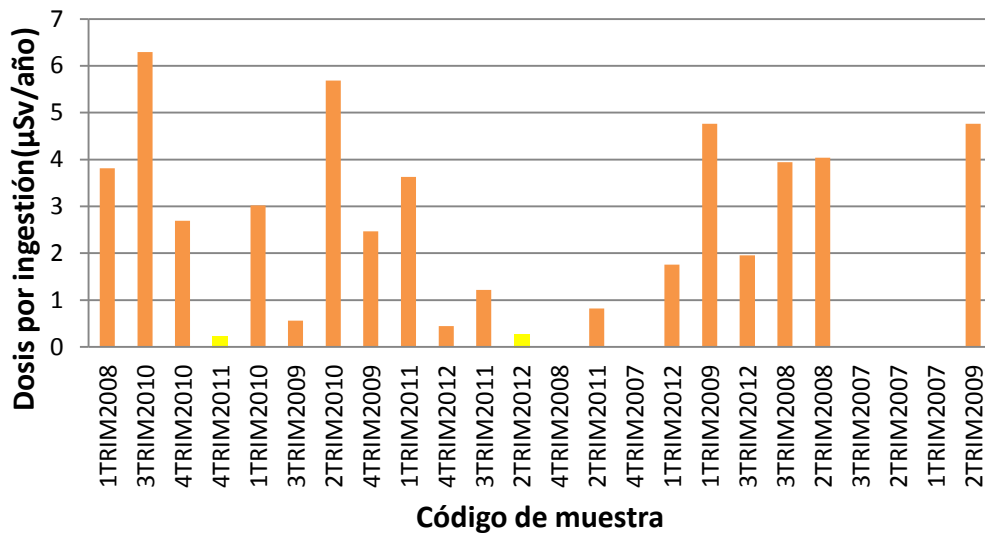


Figura 5.14: Dosis efectiva por ingesta de dieta tipo debida al  $^{238}\text{U}$  ( $\mu\text{Sv/año}$ ) para adultos (en amarillo se representan los resultados calculados a partir de valores de actividad mínima detectable)

Estas dosis difieren hasta en dos órdenes de magnitud a las determinadas por  $^{210}\text{Po}$  (nótese el hecho que en este caso para mayor comodidad se han presentado los resultados en  $\mu\text{Sv/año}$ , cuando para el caso del  $^{210}\text{Po}$  se expresaron en  $\text{mSv/año}$ ). Esto

no se debe solo que los coeficientes de dosis para los isótopos de uranio sean inferiores, sino también debido a que las concentraciones de actividad de los mismos son claramente más bajas que para el  $^{210}\text{Po}$ . Lo que vuelve a poner de manifiesto que en estudios dosimétricos por ingestión el  $^{210}\text{Po}$  juega un papel clave al ser uno de los mayores contribuyentes a las citadas dosis, ya que tal y como se ha mencionado anteriormente este radioisótopo tiene un mayor carácter bioacumulativo frente al uranio que tiende a excretarse la mayor parte del mismo.

## 6. <sup>210</sup>Po EN ALIMENTOS DE ORIGEN MARINO

El consumo de pescado juega un papel importante en la dieta mediterránea. Desde hace mucho tiempo se le considera de especial interés, dado que gracias a él se obtienen proteínas, vitaminas y otros elementos como el fósforo y el calcio, siendo todo ello esencial para tener una buena salud. Es bien conocido, por la difusión de los múltiples beneficios que se le atribuyen, que el consumo de pescado previene en el organismo humano múltiples enfermedades.

Desde un punto de vista nutricional, el pescado aporta a la dieta entre un 15 y un 23% de las proteínas esenciales[Luchini. 2010], dependiendo estos valores de diferencias inter-específicas y temporales, ya que tanto la zona de captura como el tiempo de vida del animal va a influir en las características del mismo, afectando a su contenido proteico y graso, como consecuencia de los elementos que éstos hayan ingerido durante su vida.

El aporte calórico de estos productos es relativamente bajo si se compara con otros elementos de la dieta. La grasa del pescado contiene ácidos grasos de largas cadenas, tales como los ácidos grasos omega-3 y omega-6, siendo ambos beneficiosos para el ser humano ya que tienden a formar parte de funciones importantes dentro de su organismo: manteniendo el equilibrio metabólico, reparando estructuras celulares, previniendo enfermedades coronarias, interviniendo en el desarrollo y mantenimiento del sistema nervioso, entre otras funciones.

Estas características hacen que los productos marinos sean apreciados hoy día. La calidad, la variedad en cuanto a la oferta (congelados, precocinados, refrigerados, etc.), permite ser un producto accesible y muy consumido en la actualidad. Sin embargo, la tendencia del consumo de los mismos no ha sido siempre creciente. La fluctuación de los precios, la recomendación hecha en los distintos medios, así como la disponibilidad de los mismos ha hecho que se haya pasado de un mayor consumo de pescado “azul” a un consumo mayoritario de pescado “blanco” en los últimos años. Si bien hace unas décadas se recomendaba el consumo de pescado unas cuatro veces a la semana, actualmente se suele incluir en la dieta unas dos veces semanales.

### 6.1 Productos marinos en la dieta mediterránea

Tal y como se comentó en el capítulo anterior, productos como legumbres, verduras, frutas y pescado juegan un papel destacado en la misma. Los beneficios que nos aporta la dieta mediterránea son múltiples. Aunque gran parte de la población desconoce el fundamento de esta dieta, la accesibilidad de los distintos alimentos que

la componen, ha hecho que vayan ganando un papel más destacado en la dieta habitual.

La proporción de los alimentos de origen marino en la dieta ha crecido desde el principio de los tiempos. Las técnicas básicas sobre métodos de pesca, preparación y conservación de estos productos son halladas en civilizaciones muy antiguas, para las cuales en muchos casos llegó a considerarse como la primera fuente de aporte proteico, por ser un elemento económico y fácil de conseguir. Éste fue el caso de la civilización egipcia que, en documentos de la época, dejó testimonio del consumo habitual del pescado. El consumo de pescado ha dependido siempre de su conservación en el tiempo de traslado desde los lugares de pesca hasta los mercados. Para evitar el deterioro del pescado ha tenido lugar el desarrollo de distintas técnicas de conservación, como era el salazón.

Si bien es cierto que estos productos han sufrido variaciones en su consumo a través de los siglos, hoy día forman parte de un plato bien considerado. El sistema de pesca, los métodos de conservación y el desarrollo comercial, ha hecho que su consumo se extienda a zonas alejadas a su lugar de captura, favoreciendo la difusión de sus ventajas nutricionales.

## 6.2 Tipos de productos marinos

El medio donde se desarrollan las distintas especies acuáticas que se consumen, va a influir en las propiedades que éstas presenten. Podemos clasificarlos, en primera instancia, en dos grandes grupos: de agua dulce y de agua salada.

Los productos de agua dulce, proceden de ríos o lagos. Normalmente el medio en el que se desarrollan son aguas ricas en magnesio, potasio y fósforo, y el porcentaje de consumo frente al otro grupo representa una minoría. En el otro grupo, de agua salada, encontramos un mayor consumo. Son productos procedentes del mar, cuyas aguas se caracterizan por presentar mayores niveles de yodo y cloro.

Es cierto que con esta clasificación quedan fuera especies que dependiendo del estado en el que se encuentren, desarrollan su vida en una u otra superficie acuática, o las especies criadas en piscifactorias o granjas marinas.

Dentro de esta primera clasificación dada, habría que hacer otra clasificación ecológica atendiendo a la profundidad donde desarrollan su vida. Encontramos pues tres grupos: bentónicos, nectónicos y planctónicos.

Los organismos bentónicos son los que habitan en el fondo acuático, nutriéndose muchos de ellos de organismos muertos que caen al fondo. Los nectónicos, son unos organismos dotados de un sistema de locomoción que les permite desplazarse activamente incluso contrarrestando los movimientos del agua. Finalmente

encontramos un tercer grupo denominado planctónicos, cuyo movimiento destaca por ser errante, siendo la base de la cadena trófica del medio acuático.

Una misma especie, puede alimentarse de distintos organismos. En el medio acuático, los productores primarios van a ser algas y bacterias fotosintéticas (plancton). La cadena trófica puede comenzar con productores primarios, o por restos de materia orgánica. Todo esto hace que debamos hablar de redes tróficas, pudiendo éstas llegar a ser bastante complejas.

El  $^{210}\text{Po}$  entra en el medio acuático por distintas vías, la mayoría de este  $^{210}\text{Po}$  proviene de su antecesor el  $^{210}\text{Pb}$  que se deposita desde la atmósfera a partir del  $^{222}\text{Rn}$ . Una vez en el agua, este  $^{210}\text{Po}$  en forma catiónica, tiende a unirse al material particulado, y a ser absorbido por la biomasa de plancton de los primeros metros de la columna de agua. Este plancton recordemos que forma parte de la base de la red trófica acuática, y llega a alcanzar elevadas concentraciones de este radionucleido[Fowler. 2011]. Análisis realizados en el fitoplancton, en distintas masas de agua oceánica, indican la presencia de  $^{210}\text{Po}$  en concentraciones de actividad que se encuentran en un rango de 30 a 300 Bq/kg de masa seca. En muestras de zooplancton esos valores ascienden a un rango de 30 a 700 Bq/kg en masa seca. Tanto el fitoplancton como el zooplancton son el alimento de muchas especies marinas, ya que éstos son la base de la cadena alimenticia, lo cual va a producir que en dichos organismos consumidores y en consumidores secundarios las concentraciones de  $^{210}\text{Po}$  sean bastante elevadas, ya que hay una transferencia de este radioisótopo desde el plancton a los siguientes niveles tróficos[Carvalho. 2011].

La bioconcentración es un proceso muy dado en los organismos acuáticos, caracterizada por absorber y concentrar distintas sustancias a través de la piel, la superficie respiratoria o del tracto digestivo, siendo en este último caso denominado bioacumulación. Este hecho puede producir efectos tóxicos incluso cuando la concentración de esa sustancia en el agua sea baja. Este hecho es el que nos mueve a estudiar el  $^{210}\text{Po}$  en distintos alimentos de origen acuático consumidos por el hombre.

### 6.3 Consumo de productos marinos en España

El consumo de pescados y mariscos en España es importante a nivel mundial, ya que se presenta como uno de los mayores consumidores junto con otros países como Japón. En términos generales, dada la situación económica en la que nos encontramos inmersos, el consumo de pescado ha tendido a disminuir en los últimos años, aun así sigue formando parte de un importante porcentaje en nuestra dieta presentando un 13% entre todos los productos de la dieta, tal y como veíamos en el capítulo anterior.

De forma similar al capítulo de  $^{210}\text{Po}$  en la dieta, se han presentado, en la Tabla 6.1, los datos de consumo desde enero de 2008 hasta junio de 2013. Con el fin de evitar de

nuevo una saturación de datos, los años comprendidos entre 2008 y 2010 han sido agrupados, dejando individuales los años comprendidos entre el 2011 y 2013 por ser los más cercanos en el tiempo. Es conocido que España desde 2008 inicia una crisis económica que puede haber afectado a los hábitos alimenticios, por ello también se presentan datos de 2004 tal y, como hicimos en el capítulo anterior, para ver si la evolución de la economía ha afectado a los hábitos de consumo en este tipo de productos.

GRUPOS	Consumo per cápita (kg por persona y año)				
	2004	2008-2010	2011	2012	2013 <sup>1</sup>
TOTAL PRODUCTOS MARINOS	28,6	29,1	26,8	26,4	25,7
PESCADO	16,8	16,4	15,2	14,9	15,0
MARISCO (MOLUSCOS Y CRUSTÁCEOS)	7,9	8,6	7,5	7,4	6,6
CONSERVAS	3,9	4,1	4,2	4,1	4,1

Tabla 6.1: Consumo per cápita (kg/persona y año), en los distintos grupos de productos Marinos

GRUPO	ESPECIE	Consumo per cápita (kg/persona y año)				
		2004	2008-2010	2011	2012	2013 <sup>1</sup>
PESCADO	merluza	4,5	4,2	3,2	3,8	3,9
	sardina	2,3	1,9	2,1	1,5	1,4
	boquerones	2,3	1,9	2,1	1,5	1,4
	atún	0,6	0,6	0,5	0,7	0,4
	caballa	0,4	0,4	0,4	0,4	0,5
	dorada	0,6	0,8	0,6	0,6	0,6
	lenguado/acedia	1,1	1,2	0,6	0,6	0,9
	trucha	0,5	0,4	0,2	0,3	0,3
	rape	0,5	0,5	0,3	0,4	0,4
MARISCOS	almeja chirla	0,7	0,7	0,8	0,7	0,6
	mejillones	1,3	1,4	0,9	1,2	0,9
	sepia	1,5	1,8	1,3	1,5	1,8
	gambas	2,3	2,5	2,5	2,2	1,6
	langostinos	2,3	2,5	2,5	2,2	1,6
CONSERVAS	berberechos	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1
	anchoas	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1
	almeja chirla	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1
	trucha ahumada	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1

Tabla 6.2: Consumo per cápita (kg/persona y año), en los distintos grupos de productos marinos

<sup>1</sup> Los datos presentados para el año 2013 comprenden de los meses de enero a junio dado que en el momento de realizar esta recopilación en la base de datos del MAGRAMA no se disponía del resto de meses, por lo cual se ha procedido a hacer una ponderación de los mismos para poder mostrarlo en las mismas unidades que los anteriores kg/persona y año

El consumo de productos marinos en el hogar depende de distintas variables tales como: la condición económica, la edad, tamaño de la unidad familiar y hábitos alimenticios entre otras. Estos factores van a influir no sólo en la cantidad ingerida, sino en las especies y productos dentro de este grupo. Vamos a hacer una clasificación en cuanto a los productos marinos, quedando divididos en los siguientes grupos: pescado, crustáceos y moluscos, y conservas (Tabla 6.1).

Atendiendo a esta división y ciñéndonos a datos facilitados por el MAGRAMA para el consumo en 2013, vemos que porcentualmente el grupo de los pescados es consumido en un 58,2%, crustáceos y moluscos en un 25,7% y por último las conservas con un 15,9% dentro de los productos marinos. Como se observa en la Tabla 6.1 el consumo de los distintos productos tiene una tendencia a disminuir, hecho que asociamos a la crisis económica en la que se encuentra el país y al encarecimiento de alguno de los productos.

Se presentan en la Tabla 6.2 los consumos de algunas de las especies, presentadas con el nombre por el cual comúnmente son conocidas, y que han sido estudiadas en este trabajo, de las cuales se han obtenido datos gracias al MAGRAMA.

En la Tabla 6.2 se puede observar una ligera tendencia a la baja en algunos productos, si bien es cierto que esta bajada se observa a partir del año 2011. También puede verse como algunos productos como son la merluza o el lenguado están volviendo a remontar en el último año. El producto marino más consumido entre los años 2008 y 2012 es la merluza con un consumo medio per cápita al año de 4,1 kg, siendo este producto dentro del grupo de los pescados el más consumido también este último año, con un valor de 3,9 kg. Dentro del grupo de moluscos y crustáceos entre 2008 y 2012, lo más consumido fueron gambas y langostinos con una media anual de 2,4 kg por persona, sin embargo en este mismo grupo en el año 2013 lo más consumido fue la sepia cuyo valor es de 1,8 kg. Metiéndonos en el grupo de las conservas, tanto en el periodo 2008-2012, como en 2013 lo más consumido fue el atún, 2,2 kg/persona y año en ambos casos. En cuanto a valores mínimos de consumo, en el caso del pescado nos encontramos con el rodaballo, el cual presenta un consumo para el periodo 2008-2012 de 0,1 kg/persona y año al igual que en 2013. Dentro del grupo de crustáceos y moluscos el que se encuentra en inferioridad son las almejas con un consumo de 0,6 kg/persona y año para el periodo 2008-2012 y 0,5 kg/persona y año para 2013. Hablando de conservas las almejas como producto perteneciente a este grupo se encuentran al final con valores de 0,01 kg/persona y año para ambos periodos, siendo además el producto marino menos consumido de todos.

#### **6.4 Muestras analizadas**

Para este trabajo se han analizado un total de 61 muestras, de las cuales 33 son pescados, 25 mariscos frescos (moluscos y crustáceos), y 3 productos en conserva. En esas 61 muestras encontramos un total de 26 especies distintas, 14 se corresponden a



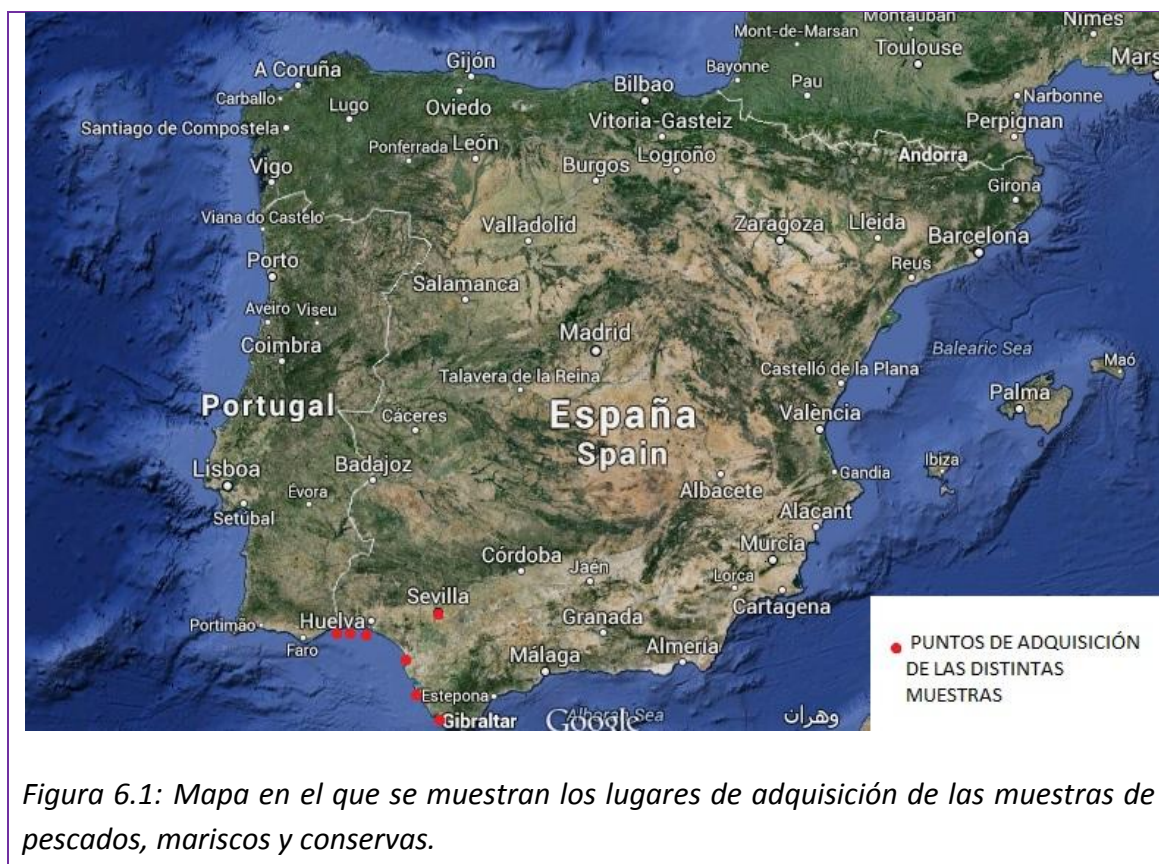
pescados, 10 a moluscos y crustáceos y 2 a conservas. Se encuentran referencias a tres conservas: berberechos, almejas chirlas, y anchoas.

Se han analizado las partes comestibles de estos productos, en la mayoría la parte muscular (únicamente en una de las muestras se han analizado las gónadas, es el caso de las huevas de merluza). Salvo las conservas, y un grupo de siete muestras, el resto ha sufrido un proceso de cocción, ya que estos productos normalmente tienen un proceso previo de preparación bien a la plancha o cocidos antes de su consumo

Grupo	Nombre científico	Nombre común	
<b>PESCADOS</b>	Thunnus alalunga	atún	
	Scomber scombrus	caballa	
	Engraulis encrasicolus	boquerones	
	Galeorhinus galeo	cazón	
	Sparus aurata	dorada	
	Trachurus trachurus	jurel	
	Dicologlossa hexophthalma	lenguado/acedía	
	Auxisrocheiauxis thazard	melva	
	Merluccius merluccius	merluza	
	Merluccius merluccius (gónadas)	merluza (huevas)	
	Xiphias gladius	pez espada	
	Lophius piscatorius	rape	
	Salmo salar	salmón	
	Mullus surmuletus	salmonete	
	Sardina pilchardus	sardina	
Salmotrutta fario	trucha		
<b>MARISCOS</b>	Chamelea gallina	almeja chirla	
<b>Moluscos</b>	Littorina littorea	bígaro	
	Loligo spp.	calamar (puntillitas)	
	Murex brandaris	cañaila	
	Sepia officinalis	choco	
	Donax trunculus	coquina	
	Mytilus edulis	mejillón	
	Ensis ensis	navaja	
	<b>Crustáceos</b>	Parapenaeus longirostris	gambas
		Panaeus kerathurus	langostinos
		Cerastoderma edulis	berberechos
<b>CONSERVAS</b>	Engraulis encrasicolus	anchoas	
	Chamelea gallina	almeja chirla	

Tabla 6.3: Nombres científicos y comunes de las especies analizadas

Las muestras se han adquirido en distintos puntos de venta, un grupo de 26 muestras provienen de mercados situados en la costa. En la figura 6.1 se presentan dichos puntos.



Hasta ahora se han presentado datos de especies marinas con el nombre que normalmente se le conocen. Ese nombre común puede variar en función de la zona donde nos movamos, es por ello que en la Tabla 6.3 se presentan con el nombre científico de cada una de las distintas especies que han sido analizadas.

### 6.5 Resultados de concentraciones de actividad de $^{210}\text{Po}$ en organismos marinos habituales en la dieta

Los resultados de las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  que se han obtenido se muestran en la Tabla 6.4. Para todas las muestras se han podido obtener medidas de  $^{210}\text{Po}$  por encima del límite de detección de la técnica que ha sido aplicada. Las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en peso húmedo se encuentran en un rango que abarca desde  $0,09 \pm 0,01$  Bq/kg en el caso de los chocos hasta  $140 \pm 4$  Bq/kg valor encontrado en los boquerones.

Las incertidumbres en las determinaciones de la concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  han estado en el rango 2 – 20 %, siendo las incertidumbres mayores, por encima del

10%, correspondientes a las más bajas concentraciones obtenidas. Hay que tener en cuenta que los procedimientos desarrollados limitan la cantidad de muestra analizada a alrededor de 4 g.

Grupo	Especie	Pérdida de peso por evaporación (%)	$^{210}\text{Po}$ (Bq/kg)	
<b>PESCADO</b>	Atún	62	3,4 ± 0,1	
	Boquerón	73	140 ± 4	
	Caballa	60	16,9 ± 0,7	
	Cazón	65	0,10 ± 0,01	
	Dorada	75	0,15 ± 0,03	
	Jurel	75	2,17 ± 0,09	
	Acedía	74	28 ± 7	
	Melva	65	4,8 ± 0,1	
	Merluza (Filete)	71	2,4 ± 0,2	
	Merluza (Huevas)	69	11,0 ± 0,4	
	Pez espada	66	1,5 ± 0,1	
	Rape	69	0,44 ± 0,05	
	Salmonete	69	2,2 ± 0,1	
	Sardina	68	40 ± 1	
	Trucha	69	0,17 ± 0,02	
<b>MARISCOS</b>	<b>Moluscos</b>	Almeja chirla	71	43 ± 1
		Bígaro	77	5,1 ± 0,2
		Calamar (puntillita)	75	15,2 ± 0,4
		Cañaila	73	15,8 ± 0,5
		Choco	78	0,09 ± 0,01
		Coquina	75	64 ± 2
		Mejillón	72	84 ± 2
	<b>Crustáceos</b>	Mejillón 2	72	94 ± 2
		Navaja	70	7,0 ± 0,9
		Gamba	75	21,0 ± 0,5
<b>CONSERVAS</b>	Langostino	75	0,39 ± 0,03	
	Almeja chirla	70	10,0 ± 0,3	
	Berberechos	79	26,7 ± 0,6	
	Anchoas	71	1,35 ± 0,06	

Tabla 6.4: Concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  (Bq/kg) en peso húmedo, en las muestras de distintos organismos marinos consumidos asiduamente por la población.

Tal como aparece en la Tabla 6.4, entre los distintos productos marinos analizados se distinguen los frescos o congelados y las conservas. Entre los productos frescos y congelados tenemos pescados y mariscos. En el caso de los mariscos, distinguimos entre moluscos y crustáceos. Todas las muestras que se presentan en la tabla son productos adquiridos en Sevilla. Todas las muestras analizadas han experimentado previamente un proceso de cocción característico de la zona, con el fin de realizar posteriormente una evaluación dosimétrica lo más realista posible al tener en cuenta una posible pérdida de  $^{210}\text{Po}$  en el proceso de preparación para su consumo (parrillada de pescado, cocción de mariscos, etc.). En el caso de las conservas y boquerones no se ha hecho ningún proceso de preparación previo, ya que su consumo es directo desde la lata.

Comenzando con los pescados, observamos que se han obtenido concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  dentro de un amplio rango que abarca cuatro órdenes de magnitud (0,17 – 140 Bq/kg). Aunque los factores de transferencia y las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en sus respectivos nutrientes pueden variar de una especie a otra, se podría considerar el tiempo transcurrido entre su captura en el mar y el momento del análisis como un factor determinante que explica tan diferentes valores de las concentraciones de actividad. Así, los valores de concentración más altos, en torno a 100 Bq/kg los tenemos en boquerones y sardinas, que se pescan en la costa e inmediatamente se trasladan a los puestos de mercado.

En el otro extremo tenemos pescados capturados en caladeros situados a grandes distancias de los mercados, como el atún, la merluza o el pez espada. En estas especies la concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  se sitúa alrededor de 1 Bq/kg. En otros casos la concentración de actividad disminuye hasta 0,1 Bq/kg, como en el caso del rape y el cazón que se alimentan de otros peces. Un comentario particular se puede hacer en el caso de la trucha y la dorada (0,15 Bq/kg) cuyo resultado está relacionado con la alimentación recibida en las piscifactorías, pues se nutren de cereales y harinas vegetales con bajas concentraciones de este radionucleido.

En conjunto de mariscos tenemos, en primer lugar, los moluscos. Destacan los relativamente altos valores de concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  que se han determinado en almejas, coquinas y mejillones ( $94 \pm 2$  Bq/kg), todos ellos bivalvos y filtradores. Sin embargo los valores disminuyen hasta  $0,09 \pm 0,01$  Bq/kg en los cefalópodos (calamar, sepia) que son carnívoros. Por último llama la atención la diferencia entre la concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  entre los dos crustáceos analizados: gambas ( $21,0 \pm 0,05$  Bq/kg) y langostinos ( $0,39 \pm 0,03$  Bq/kg). Esta diferencia se podría explicar por la diferencia de tiempo que pasa entre su captura y su llegada al puesto de venta, que es mucho mayor en el caso de los langostinos.

El efecto del tiempo que pasa desde la captura hasta su consumo se observa con gran claridad en el caso de la almeja chirla, que presenta una concentración de actividad de

$^{210}\text{Po}$  de  $(43 \pm 1 \text{ Bq/kg})$  cuando se consume fresca y de  $(10,0 \pm 0,3 \text{ Bq/kg})$  en el mismo producto en conserva.

Hablando de las conservas, el valor más bajo se encuentra en las muestras de anchoas con una concentración de actividad para el radionucleido de interés de  $1,35 \pm 0,06 \text{ Bq/kg}$  y el valor más alto lo obtenemos en los berberechos con una concentración de actividad de  $26,7 \pm 0,6 \text{ Bq/kg}$ .

La concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  de la mayoría de las muestras analizadas es hasta tres órdenes de magnitud superior a las determinadas para otros grupos de alimentos como carnes, verduras y cereales, tal y como vimos en el anterior capítulo. La mayoría de los moluscos, dado su forma de alimentarse mediante filtración, presentan elevadas concentraciones de este radionucleido.

En resumen, podemos indicar que la gran variabilidad de los resultados obtenidos en las distintas especies, deben correlacionarse con los hábitos alimenticios de los distintos organismos analizados y con el tiempo que transcurre entre la captura y el consumo del animal. Especies cercanas en la cadena trófica a la base de la pirámide alimenticia marina, es decir, que se alimentan de fitoplancton y zooplancton, suelen presentar concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  elevadas.

Sin embargo, especies situadas en niveles más altos de la cadena alimenticia, como son los consumidores secundarios (carnívoros), suelen presentar concentraciones de actividad de este radionucleido inferiores. La importancia que va a tener la alimentación en las distintas especies respecto a los niveles de  $^{210}\text{Po}$  que vayan a presentar también puede quedar reflejada en los valores que se han obtenido para la trucha y la dorada. Dos especies que normalmente son criadas en piscifactorías, y que son alimentadas con cereales y harinas vegetales con bajas concentraciones de este radionucleido.

La determinación de una misma especie en conserva frente al mismo producto fresco también refleja una diferencia en cuanto a concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$ .

Los resultados mostrados anteriormente se refieren a la parte comestible de estas especies, sin bien es cierto que existen estudios que avalan que la distribución de  $^{210}\text{Po}$  no es uniforme en todas las partes del organismo. Tenemos el caso de las muestras de merluza, que tiene una concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  de 2,4 y 11 Bq/kg en filetes y gónadas, respectivamente. Se conoce que el  $^{210}\text{Po}$  tiene una tendencia a asociarse a proteínas de gran peso molecular, lo cual va a explicar la tendencia de este radionucleido a concentrarse en determinados órganos, como son el hígado, el hematopáncreas y el sistema digestivo, lo que puede provocar que en dichas zonas las concentraciones del mismo sean varios órdenes de magnitud superior [Carvalho, 2011]. Esto va a hacer que un consumo completo del pescado, sobre todo especies pequeñas que se encuentran en escalas más bajas de la cadena trófica, como podrían ser

puntillitas, boquerones, chanquetes, entre otros, va a presentar una ingesta mayor de  $^{210}\text{Po}$  a la que se puede producir si solamente se consume la parte muscular de una especie.

Grupo	Especie	$^{210}\text{Pb}$ (Bq/kg)	$^{210}\text{Po}$ (Bq/kg)	$^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$	
				En este trabajo	En la bibliografía
Pescado	Boquerones	12±3	140±4	12	-
	Caballa	< 6	16,9±0,7	>3	20
	Sardinas	<10	40±1	>4	66
Molusco	Mejillones	13±2	94±2	7	51

Tabla 6.5: Cociente  $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$  en algunas muestras de este trabajo

En un conjunto reducido, pero representativo de muestras se ha determinado la concentración de actividad de  $^{210}\text{Pb}$  mediante la aplicación de la técnica de espectrometría gamma de alta resolución con un detector de germanio de baja energía (REGe). Los resultados se muestran en la Tabla 6.5. Las concentraciones de  $^{210}\text{Pb}$  difieren al menos en un orden de magnitud respecto a las concentraciones de  $^{210}\text{Po}$  que son mayores. Los resultados obtenidos ponen de manifiesto la existencia de un elevado fraccionamiento radiactivo entre el  $^{210}\text{Po}$  y su progenitor el  $^{210}\text{Pb}$ . De esta forma se confirma que, una vez capturado el organismo marino, la concentración de actividad del  $^{210}\text{Po}$  va disminuir por simple desintegración radiactiva hasta alcanzar el valor del  $^{210}\text{Pb}$  presente en él.

Grupo	Especie	$^{210}\text{Po}$ (Bq/kg)		Referencia
		En este trabajo	En la bibliografía	
PESCADOS	Atún	3,4±0,1	3,0±0,1	[Carvalho. 2011]
			10-70	[Fowler. 2011]
	Boquerón	140±4	158 y 203	[Cherry et al. 1994]
	Caballa	16,93±0,02	3,5±0,2 y 19±1	[Carvalho. 2011]
	Dorada	0,15±0,04	3,1±0,6	[Connan et al. 2007]
	Merluza	2,4±0,2	6,4±0,3	[Carvalho. 2011]
			5-25	[Fowler. 2011]
	Merluza (huevas)	11,0±0,4	52±2	[Carvalho. 2011]
Sardina	40±1	66±2	[Carvalho. 2011]	
		35-280	[Fowler. 2011]	
MARISCOS	Almeja chirla	43±1	152±19	<b>¡Error! Marcador no definido.</b>
Moluscos	Bígaro	5,1±0,2	13,1 hasta 399	[McDonall et al. 1991]
	Choco	0,09±0,02	0,08	[Heyraud et al. 1979]
	Mejillón	84±2	80 hasta 220	[Dahlgaard. 1996]
			112	[Carvalho. 2011].
			126	[McDonall et al. 1991]
Gamba	21,0±0,5	17 hasta 810	[Cherry et al. 1981]	
Crustáceos	Langostino	0,39±0,03	107±8	[Cherry et al. 1981]
CONSERVAS	Berberecho	26,7±0,6	89±9 y 125±3	[Alonso-Hernandez et al. 2002]
			5,8±0,3	[Carvalho. 2011]

Tabla 6.6: Comparativa de resultados de  $^{210}\text{Po}$  para muestras de organismos marinos consumidos habitualmente por la población en (Bq/kg) en peso húmedo

El comportamiento observado  $^{210}\text{Po} > ^{210}\text{Pb}$ , ya era el descrito en la bibliografía [Fowler. 2011], [Carvalho. 2011]. De nuevo pone de manifiesto la importancia de la influencia de los hábitos alimenticios de estos organismos y de la dependencia de la biomasa enriquecida en  $^{210}\text{Po}$  presente en el hábitat de los mismos.

En la literatura se encuentran estudios similares en los que se determina la concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en distintas especies. Con ello podemos ver la concordancia de los resultados obtenidos, presentados en la tabla 6.6.

### 6.5.1 Resultados de concentración de actividades de isótopos de uranio en organismos marinos habituales en la dieta.

En algunas de las muestras analizadas de pescados y mariscos (moluscos y crustáceos) se ha procedido a determinar paralelamente las concentraciones de actividad de  $^{234}\text{U}$  y  $^{238}\text{U}$ . Los resultados se presentan en la Tabla 6.7.

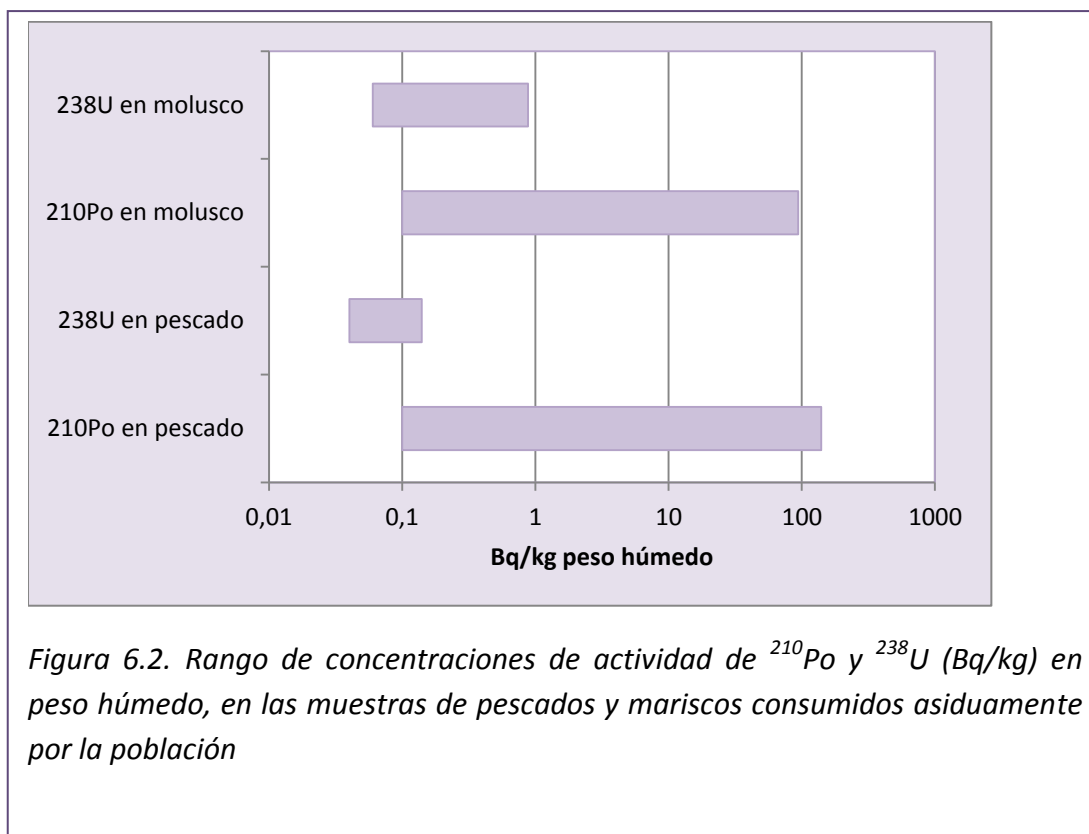
Al contrario de lo que sucedía en las medidas de  $^{210}\text{Po}$ , en muchas especies las concentraciones de actividad de los isótopos de uranio ( $^{234}\text{U}$  y  $^{238}\text{U}$ ) están por debajo del límite de detección de la técnica de medida. Concentraciones de actividad por debajo del límite de detección se encuentran fundamentalmente en pescados (atún, boquerón, cazón, melva, merluza y sardina). Las concentraciones de actividad de  $^{238}\text{U}$  por encima del límite de detección en los pescados están entre 0,03 y 0,04 Bq/kg (caballa, jurel y lenguado). También se ha podido medir la concentración de actividad de  $^{238}\text{U}$  en huevos de merluza ( $0,04 \pm 0,01$  Bq/kg en peso húmedo). En el caso de los moluscos, se ha podido medir la concentración de actividad en casi todas las especies (con la excepción del choco), resultando ser un orden de magnitud mayor que la obtenida para el pescado. El rango de valores se encuentra entre 0,36 Bq/kg (mejillón) y 0,72 Bq/kg (bígaro). Las concentraciones de actividad están por debajo del límite de detección para los crustáceos analizados (gambas y langostinos), independientemente del tiempo que ha pasado entre su captura y su venta. Finalmente no se han observado diferencias de concentración de actividad entre el producto fresco y en conserva (almejas chirlas).

Respecto a la concentración de actividad de  $^{234}\text{U}$ , la razón de concentraciones de actividad  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  que aparecen en la Tabla 6.7 está alrededor de la unidad en todos los productos, lo que indica que el uranio es asimilado por los organismos prácticamente en equilibrio secular. Recordemos que tanto el  $^{234}\text{U}$  como el  $^{238}\text{U}$  tienen la misma solubilidad en agua. Aunque la solubilidad en el medio acuático es la misma, el  $^{234}\text{U}$  lixivia más fácilmente principalmente de las rocas. Esto puede producir que la relación  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  sea mayor que 1, hecho que suele mostrarse con mayor asiduidad en acuíferos. En el agua marina esta relación no se ve tan alterada, aunque zonas donde haya más afluencias de agua dulce continental suelen presentar valores algo superiores a 1.



Grupo	Especie	$^{234}\text{U}$ (Bq/kg)	$^{238}\text{U}$ (Bq/kg)	Razón de actividad $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
PESCADO	Atún	<0,03	<0,03	
	Boquerón	<0,17	<0,19	
	Caballa	0,04 ± 0,01	0,03 ± 0,01	2 ± 1
	Cazón	<0,03	<0,03	
	Dorada	NM	NM	
	Jurel	0,05 ± 0,02	0,04 ± 0,01	1,2 ± 0,8
	Acedía	0,10 ± 0,02	0,03 ± 0,01	3 ± 2
	Melva	<0,04	<0,04	
	Filete de merluza	<0,03	<0,04	
	Huevas de merluza	0,05 ± 0,02	0,04 ± 0,01	1 ± 1
	Pez espada	NM	NM	
	Rape	NM	NM	
	Salmonete	NM	NM	
	Sardina	<0,07	<0,07	
	Trucha	NM	NM	
MARISCOS Moluscos	Almeja chirla	0,77 ± 0,03	0,70 ± 0,03	1,10 ± 0,09
	Bígaro	0,82 ± 0,03	0,72 ± 0,02	1,14 ± 0,07
	Calamar (puntillita)	0,57 ± 0,03	0,52 ± 0,03	1,1 ± 0,1
	Cañaila	0,54 ± 0,03	0,43 ± 0,03	1,3 ± 0,2
	Choco	0,06 ± 0,02	<0,02	
	Coquina	0,51 ± 0,03	0,43 ± 0,02	1,2 ± 0,1
	Mejillón	NM	NM	
	Mejillón 2	0,40 ± 0,03	0,36 ± 0,03	1,1 ± 0,2
	Navaja	0,59 ± 0,04	0,61 ± 0,04	1,0 ± 0,1
	Crustáceos	Gamba	<0,04	<0,04
Langostino		<0,02	<0,02	
CONSERVAS	Almeja chirla	0,60 ± 0,02	0,59 ± 0,02	1,02 ± 0,07
	Berberechos	0,80 ± 0,04	0,71 ± 0,04	1,1 ± 0,1
	Anchoas	0,11 ± 0,04	0,07 ± 0,03	2 ± 1

Tabla 6.7: Concentraciones de actividad de  $^{234}\text{U}$  y  $^{238}\text{U}$  (Bq/kg) en peso húmedo, en las muestras de distintos organismos marinos consumidos asiduamente por la población



Para comparar los rangos de las concentraciones del  $^{210}\text{Po}$ , por una parte, y los isótopos de uranio, por otra, presentamos la Figura 6.2 (cuya gráfica se presenta en escala logarítmica), donde se aprecia claramente los diferentes órdenes de magnitud.

La conclusión obtenida tras la obtención de dichos resultados, es que los isótopos de uranio se encuentran en los organismos citados en concentraciones claramente inferiores, siendo incluso varios órdenes de magnitud más bajas a las de  $^{210}\text{Po}$ .

Este hecho de nuevo apoya la importancia del análisis centrado en  $^{210}\text{Po}$  que se está llevando a cabo en este trabajo, ya no solo por la mayor radiotoxicidad del mismo frente a otros isótopos radiactivos naturales, sino por la mayor concentración de actividad que éste presenta en los distintos grupos alimenticios, lo que lo convierte en el radionucleido natural que contribuye en mayor proporción a la dosis por ingestión recibida por la población debido al consumo de estos productos.

En la Tabla 6.8 se muestran las razones de actividad  $^{210}\text{Po}/^{238}\text{U}$  utilizando los resultados mostrados en el apartado anterior para concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en las muestras de organismos marinos consumidos con asiduidad. Las razones son siempre superiores a la unidad, lo que indica que los niveles de isótopos de uranio no superan, en ninguna de las muestras, las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$ , siendo éstas hasta dos órdenes de magnitud superiores. Este hecho se debe

fundamentalmente al carácter no bioacumulativo del uranio a lo largo de la cadena trófica, hecho que sí se observa para el polonio.

Grupo	Especie	Razón de actividad $^{210}\text{Po}/^{238}\text{U}$		
PESCADO	Atún			
	Boquerón			
	Caballa	563 ± 189		
	Cazón			
	Dorada			
	Jurel	54 ± 14		
	Acedía	933 ± 389		
	Melva			
	Filete de merluza			
	Huevas de merluza	275 ± 69		
	Pez espada			
	Rape			
	Salmonete			
	Sardina			
	Trucha			
MARISCOS	Almeja chirla	61 ± 3		
	Moluscos	Bígaro	7,1 ± 0,3	
		Calamar (puntillita)	29 ± 2	
		Cañaila	37 ± 3	
		Choco		
		Coquina	149 ± 8	
		Mejillón		
		Mejillón 2	261 ± 22	
		Navaja	11 ± 2	
	Crustáceos	Gamba		
		Langostino		
		Almeja chirla	17 ± 1	
		CONSERVAS	Berberechos	37 ± 3
			Anchoas	20 ± 9

Tabla 6.8: Razones de actividad de  $^{210}\text{Po}/^{238}\text{U}$  en las muestras de distintos organismos marinos consumidos asiduamente por la población

### 6.5.2 Evaluación regional de $^{210}\text{Po}$ en organismos marinos habituales en la dieta

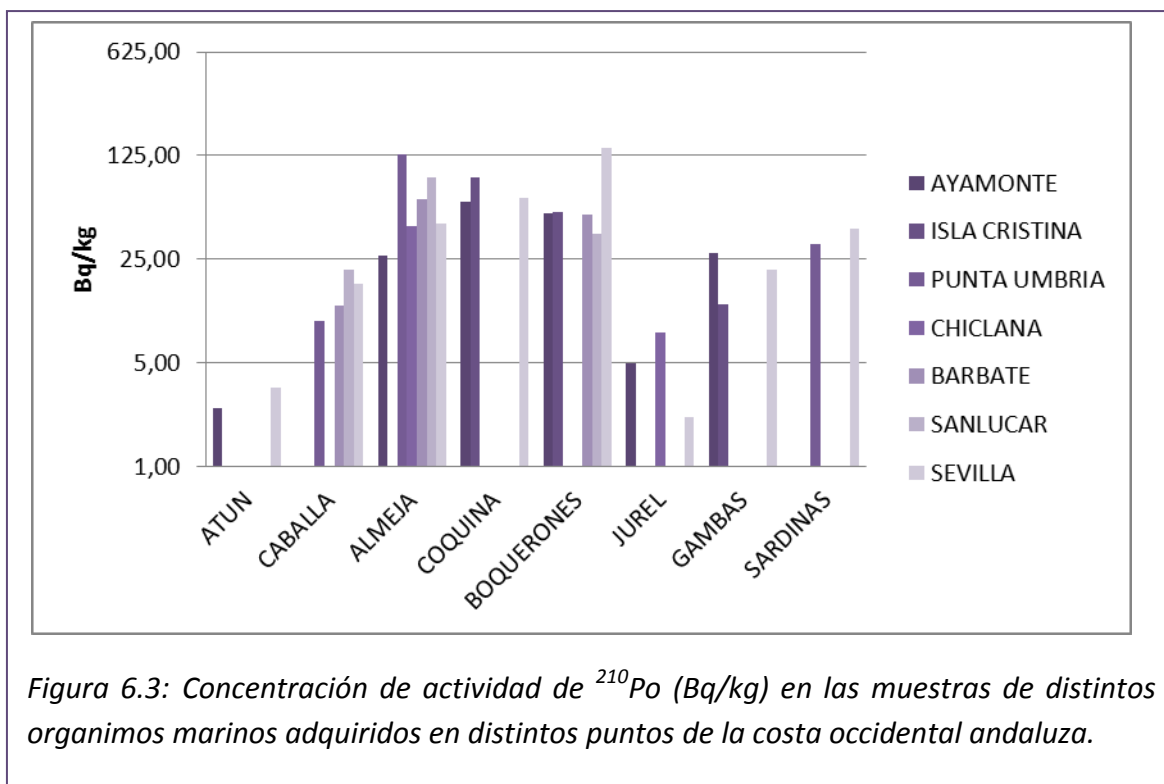
Para este estudio se han analizado 28 muestras adquiridas en distintos puntos. Además de las 8 muestras adquiridas en la localidad de Sevilla, presentamos resultados de otras 20 que han sido colectadas en mercados de la costa occidental de Andalucía.

A través de evaluaciones regionales de las concentraciones de  $^{210}\text{Po}$  en distintas especies se confirma que los niveles de este radionucleido no varían mucho de un ambiente a otro, tal y como podemos observar en la Tabla 6.9.

ESPECIE	$^{210}\text{Po}$ (Bq/kg peso húmedo)					
ATUN	2,5±0,1 (1)	3,4±0,1 (7)				
BOQUERONES	51±1 (1)	52±2 (2)	50±1 (5)	37±1 (6)	140±4 (7)	
CABALLA	9,5±0,3 (3)	12,1±0,3 (5)	21,4±0,7 (6)	16,9±0,7 (7)		
JUREL	5,0±0,2 (1)	8,0±0,4 (4)	2,17±0,09 (7)			
SARDINAS	32±1 (3)	40±1 (7)				
ALMEJA	26,5±0,6 (1)	126±3 (3)	42±1 (4)	64±1 (5)	89±2 (6)	43±1 (7)
COQUINA	61±2 (1)	89±2 (2)	64±2 (7)			
GAMBAS	27,4±0,7 (1)	12,4±0,3 (2)	21,0±0,5 (7)			

Tabla 6.9: Concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  Bq/kg en las muestras de distintos organismos marinos adquiridos en distintos puntos de la costa occidental andaluza. Lugares de adquisición del alimento: (1) Ayamonte, (2) Isla Cristina, (3) Punta Umbría, (4) Chiclana, (5) Barbate, (6) Sanlúcar de Barrameda, (7) Sevilla

Se observa que las diferencias regionales en los niveles de  $^{210}\text{Po}$  se encuentran dentro de la variabilidad natural entre las especies. Para que se vea más claro el conjunto de datos se presenta en la Figura 6.3.



En el conjunto de datos que se han presentado en la figura 6.3 podemos ver claramente como crece la concentración de  $^{210}\text{Po}$  en función de las relaciones establecidas entre las distintas especies. Así pues, especies que se encuentran en los primeros eslabones de la cadena trófica, tales como sardinas o boquerones, van a presentar mayores concentraciones para este radionucleido que especies que se encuentran en un eslabón encima de ellas, como la caballa y el jurel. Finalmente especies que se encuentran como consumidores secundarios y en los niveles superiores de este sistema presentarán una menor concentración.

### 6.5.3 Resultados de concentración de actividades de $^{210}\text{Po}$ en organismos marinos habituales en la dieta, cocinados y sin cocinar

Desde un principio tuvimos como objetivo la determinación de la dosis por ingestión del  $^{210}\text{Po}$  asociado a alimentos de origen marino. Para que los resultados fueran directamente utilizables con esa finalidad hemos procedido a introducir un proceso previo de cocción de los alimentos. A continuación nos preguntamos si podrían existir pérdidas o concentración de polonio en el proceso de cocción.

Para este estudio se adquirieron distintos lotes, los cuales se dividieron en dos partes, una se analizó tras su cocción y otro no fue sometido a este proceso y fue medido tal cual (crudo).

Grupo	ESPECIE	$^{210}\text{Po}$ (Bq/kg peso húmedo)			
		CRUDA	CRUDA	COCINADA	COCINADA
Pescados	CABALLA	1,7±0,2	1,7±0,1	1,8±0,2	1,8±0,1
	SALMÓN	0,09±0,02	0,06±0,01	☐0,05	☐0,05
	SARDINA	17,8±0,8	18,4±0,7	13,6±0,6	15,7±0,8
Moluscos	ALMEJA	42±2		26±1	
	MEJILLÓN	121±4		59±1	

Tabla 6.10: Concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  (Bq/kg) en distintos grupos de muestras cocinadas y sin cocinar

Los resultados obtenidos se presentan en la Tabla 6.10 que se expone a continuación. De algunas de las muestras se han realizado duplicados para comprobar la bondad del método que estamos llevando a cabo.

No se han observado variaciones en la concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  tras la cocción de caballa y sardina. En el caso del salmón no hay resultados concluyentes al quedar algunos resultados por debajo del límite de detección. En el caso de los bivalvos como los mejillones o almejas, sí se presenta una clara diferencia que se puede interpretar como pérdidas por cocción.

#### 6.5.4 Resultados de dosis efectivas de $^{210}\text{Po}$ en organismos marinos habituales en la dieta

Con el fin de evaluar la aportación que hace el  $^{210}\text{Po}$  debido al consumo de productos marinos, hemos procedido a la estimación de la dosis efectiva debido a la ingesta de este isótopo radiactivo en las distintas muestras analizadas.

Para los cálculos realizados, las cantidades de las distintas especies ingeridas han sido las que el MAGRAMA daba en sus últimos informes de consumo, si bien en estos estudios algunas de las especies no aparecían por lo que para dichas especies se consideró de forma conservadora que la cantidad per cápita ingerida era de 0,5 kg/persona y año en peso húmedo.

El UNSCEAR señala unos valores orientativos o de referencia de las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  (Bq/kg) en diferentes grupos de especies marinas, siendo estos valores los mostrados en la Tabla 6.11, para los cuales hemos hecho una estimación de la dosis en función a que se consuman de ellos 1 kg/persona y año, ya que salvo los mejillones, los demás son grupos en los que al existir una amplia gama de especies, el consumo es muy variado.

PRODUCTO	$^{210}\text{Po}$ (Bq/kg)	Dosis estimada ( $\mu\text{Sv/año}$ )
Pescados no carnívoros	3-200	4 – 240
Pescados carnívoros	<3	<4
Mejillones	75-650	90 - 780
Otros moluscos bivalvos	10-100	10 - 120
Crustáceos	10-500	10 - 600

*Tabla 6.11: Valores orientativos o de referencia de las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  (Bq/kg) en distintos grupos de organismos marinos típicos de la dieta, y su dosis estimada anual en adultos ( $\text{mSv/año}$ ) a partir de asumir el consumo de 1kg anual de los mismos (UNSCEAR)*

La dosis absorbida depende, además de la concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$ , de la cantidad consumida anualmente por una persona.

A continuación en la Tabla 6.12 se presentan los resultados de dosis en las distintas muestras analizadas para los distintos grupos de edades.

GRUPO	ESPECIE	Contribución a la dosis efectiva por ingestión de $^{210}\text{Po}$ (en $\mu\text{Sv/año}$ )				
		1-2 años	2-7 años	7-12 años	12-17 años	Adulto
PESCADOS	acedias	218±56	109±28	64±17	40±10	30±8
	atún	13,3±0,5	6,6±0,3	3,9±0,2	2,41±0,09	1,81±0,07
	boquerones	1750±52	875±26	517±15	318±9	239±7
	caballa	77±3	39±2	22,9±0,9	14,1±0,6	10,6±0,4
	cazón	0,44±0,04	0,22±0,02	0,13±0,01	0,08±0,01	0,06±0,01
	dorada	0,8±0,1	0,41±0,07	0,24±0,04	0,15±0,03	0,11±0,02
	jurel	9,6±0,4	4,8±0,2	2,8±0,1	1,74±0,07	1,30±0,05
	melva	21,2±0,5	10,6±0,3	6,3±0,2	3,9±0,1	2,89±0,07
	filete de merluza	82±6	41±3	24±2	15±1	11,2±0,8
	huevas de merluza	48±2	24±1	14,3±0,6	8,8±0,3	6,6±0,3
	pez espada	6,5±0,6	3,2±0,3	1,9±0,2	1,2±0,1	0,88±0,08
	rape	1,6±0,2	0,81±0,09	0,48±0,05	0,30±0,03	0,22±0,03
	salmonete	9,9±0,5	4,9±0,2	2,91±0,14	1,79±0,09	1,34±0,07
	sardina	499±16	249±8	147±5	91±3	68±2
	trucha	0,51±0,06	0,25±0,03	0,15±0,02	0,09±0,01	0,07±0,01
MARISCOS	almeja chirla	237±6	119±3	70±2	43±1	32,4±0,8
Moluscos	bígaros	22,3±0,7	11,2±0,4	6,6±0,2	4,1±0,1	3,0±0,1
	calamares (puntillitas)	67±2	33,5±0,8	19,8±0,5	12,2±0,3	9,1±0,2
	cañailas	69±2	35±1	20,5±0,6	12,6±0,4	9,5±0,3
	chocos	1,0±0,1	0,50±0,05	0,29±0,03	0,18±0,02	0,14±0,01
	coquinas	283±9	142±4	84±3	52±2	39±1
	mejillones	699±19	350±9	206±6	127±3	95±2
	mejillones2	774±17	387±9	229±5	141±3	106±2
Crustáceos	navajas	31±4	15±2	9±1	5,6±0,7	4,2±0,6
	gambas	300±7	150±4	89±2	54±1	42±1
	langostinos	5,6±0,4	2,8±0,2	1,7±0,1	1,01±0,08	0,76±0,06
CONSERVAS	almeja chirla	0,88±0,02	0,44±0,01	0,26±0,01	0,16±0,01	0,12±0,01
	berberechos	18,8±0,4	9,4±0,2	5,6±0,1	3,42±0,08	2,56±0,06
	anchoas	1,42±0,06	0,71±0,03	0,42±0,02	0,26±0,01	0,19±0,01
	anchoas	1,42±0,06	0,71±0,03	0,42±0,02	0,26±0,01	0,19±0,01

Tabla 6.12: Contribución a la dosis efectiva por ingestión de  $^{210}\text{Po}$  (en  $\mu\text{Sv/año}$ ) para los distintos grupos de edades en los distintos productos marinos

Los valores se encuentran en un rango de  $0,06 \pm 0,01$  y  $239 \pm 7 \mu\text{Sv/año}$ . Estos valores extremos se corresponden a las dosis efectivas de  $^{210}\text{Po}$  debido a la ingesta de cazón y boquerones en adultos, siendo dichas dosis superiores para grupos de edades inferiores. Tanto cazón, como los chocos tienen una concentración de actividad de



$^{210}\text{Po}$  similar, pero el mayor consumo de chocos hace que su contribución a la dosis supere al cazón.

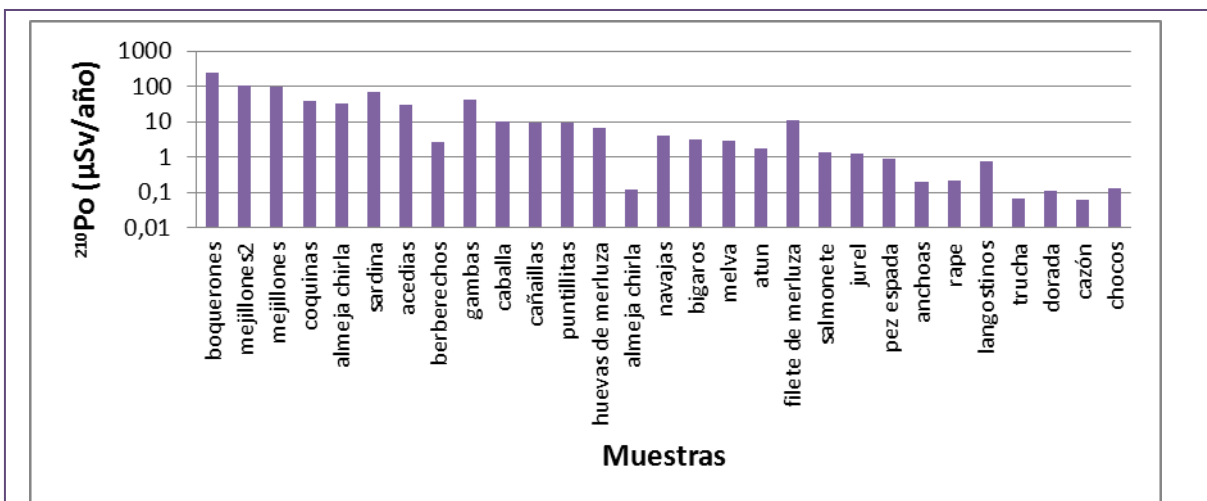


Figura 6.4: Contribución a la dosis efectiva por ingestión de  $^{210}\text{Po}$  (en  $\mu\text{Sv/año}$ ) para adultos en los distintos productos marinos ordenados en función de la concentración de actividad de este radionucleido en los mismos

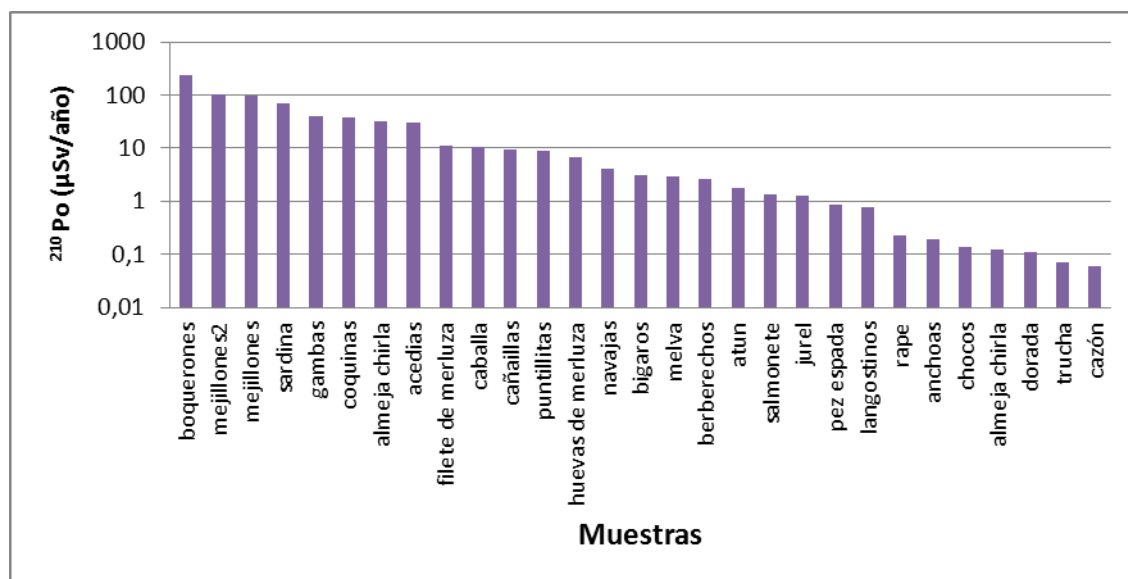


Figura 6.5: Contribución a la dosis efectiva por ingestión de  $^{210}\text{Po}$  (en  $\mu\text{Sv/año}$ ) para adultos en los distintos productos marinos ordenados en función de la dosis efectiva

Los diferentes ordenamientos de mayor a menor que se obtienen, si se hace en función de la concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  o si se hace en función de la dosis absorbida, se pueden ver en las Figuras 6.4 y 6.5, respectivamente.

La media de esta contribución a la dosis debido a la ingesta de  $^{210}\text{Po}$  es de  $25 \pm 50 \mu\text{Sv/año}$ , aunque el amplio rango de dosis absorbida impide que sea un valor representativo. Podríamos preguntar cuál sería la dosis anual recibida por un individuo

teniendo en cuenta la ingesta de los productos más consumidos. Teniendo en cuenta una dieta en la que se consume con asiduidad pescados como boquerones, merluza, mejillones y gambas, sólo teniendo en cuenta estas especies, un individuo adulto puede alcanzar cerca de los 400  $\mu\text{Sv}$ /persona y año. Podemos así afirmar que seguramente la dosis individual por  $^{210}\text{Po}$  podría alcanzar, con el consumo de especies marinas, 0,5 mSv/año. Estos resultados son concordantes con lo que se enunciaba en el capítulo anterior y explica la variabilidad de resultados que pueden encontrarse en las distintas muestras de dietas en función de la composición de las mismas

### 6.5.5 Resultados de dosis efectivas de isótopos de uranio en organismos marinos habituales en la dieta

A continuación, del mismo modo que se ha hecho para el  $^{210}\text{Po}$  se ha procedido a estimar la contribución a la dosis debido a la ingesta de uranio ( $^{238}\text{U}$  y  $^{234}\text{U}$ ), tal y como se muestran en las *tablas 6.13* y *6.14*. Se han estimado las dosis para un total de 23 muestras, de las cuales del 35% (pescados y crustáceos) tienen una concentración de actividad por debajo del límite de detección.

GRUPO	ESPECIE	Contribución a la dosis efectiva por ingestión de $^{234}\text{U}$ (en nSv/año)					
		1-2	2-7	7-12	12-17	Adulto	
PESCADOS	acedias	12±2	8±2	7±1	7±1	4,4±0,9	
	atun	<1,72	<1,16	<0,98	<0,98	<0,65	
	boquerones	<31,38	<21,24	<17,86	<17,86	<11,83	
	caballa	2,7±0,7	1,8±0,5	1,5±0,4	1,5±0,4	1,0±0,3	
	cazón	<1,95	<1,32	<1,11	<1,11	<0,74	
	jurel	3±1	2,2±0,9	1,9±0,7	1,9±0,7	1,2±0,5	
	merluza (huevas)	3±1	2,2±0,9	1,9±0,7	1,9±0,7	1,2±0,5	
	merluza (filete)	<15,21	<10,30	<8,66	<8,66	<5,73	
	melva	<2,60	<1,76	<1,48	<1,48	<0,98	
	sardina	<12,92	<8,75	<7,36	<7,36	<4,87	
MARISCOS	almeja chirla	62±2	42±2	35±1	35±1	23,4±0,9	
	Moluscos	bigaros	53±2	36±1	30±1	30±1	20,1±0,7
		calamar (puntillitas)	37±2	25±1	21±1	21±1	14,0±0,7
		cañailas	35±2	24±1	20±1	20±1	13,2±0,7
		chocos	10±3	6±2	5±2	5±2	4±1
		coquinas	33±2	22±1	19±1	19±1	12,5±0,7
	Crustáceos	mejillones	49±4	33±2	28±2	28±2	18±1
		navajas	38±3	26±2	22±1	22±1	14±1
		gambas	<8,42	<5,70	<4,80	<4,80	<3,18
		langostinos	<4,21	<2,85	<2,40	<2,40	<1,59
almeja chirla		0,78±0,03	0,53±0,02	0,44±0,01	0,44±0,01	0,29±0,01	
CONSERVAS	anchoas	1,7±0,6	1,2±0,4	1,0±0,4	1,0±0,4	0,7±0,2	
	berberechos	8,3±0,4	5,6±0,3	4,7±0,2	4,7±0,2	3,1±0,2	

Tabla 6.13: Contribución a la dosis efectiva por ingestión de  $^{234}\text{U}$  (en nSv/año) para los distintos grupos de edades en los distintos productos marinos

Los valores se encuentran entre  $0,29 \pm 0,01$  y  $23,4 \pm 0,9$  nSv/año que presentan las conservas de almeja chirla y la almeja chirla natural en adultos respectivamente, siendo éstos mayores para grupos de edades inferiores.

También se ha llevado a cabo la determinación de las dosis para el <sup>238</sup>U, valores que se muestran en la Tabla 6.14.

GRUPO	ESPECIE	Contribución a la dosis efectiva por ingestión de <sup>238</sup> U (en nSv/año)				
		1-2	2-7	7-12	12-17	Adulto
PESCADOS	acedias	3,2±0,8	2,1±0,6	1,8±0,5	1,8±0,5	1,2±0,3
	huevas de merluza	2,2±0,7	1,5±0,5	1,3±0,4	1,2±0,4	0,8±0,3
	jurel	2,4±0,6	1,6±0,4	1,4±0,3	1,3±0,3	0,9±0,2
	caballa	1,6±0,6	1,0±0,4	0,9±0,4	0,9±0,3	0,6±0,2
	filete de merluza	<18,72	<12,48	<10,61	<10,45	<7,02
	sardina	<11,93	<7,95	<6,76	<6,66	<4,47
	boquerones	<32,38	<21,58	<18,35	<18,08	<12,14
	atún	<1,58	<1,06	<0,90	<0,88	<0,59
	melva	<2,40	<1,60	<1,36	<1,34	<0,90
	cazón	<1,80	<1,20	<1,02	<1,01	<0,68
MARISCOS	almeja chirla	52±2	35±1	29±1	29±1	19,5±0,8
Moluscos	bigaros	43±1	28,8±0,8	24,5±0,7	24,1±0,7	16,2±0,4
	calamar (puntillitas)	31±2	21±1	18±1	17±1	11,7±0,7
	cañailas	25±2	17±1	14±1	14±1	9,6±0,7
	chocos	<2,93	<1,95	<1,66	<1,63	<1,10
	coquinas	26±1	17,2±0,8	15±0,7	14±0,7	9,7±0,4
	mejillones	41±3	27±2	23±2	23±2	15±1
	navajas	37±2	24±2	21±1	20±1	13,7±0,9
Crustáceos	gambas	<7,78	<5,18	<4,41	<4,34	<2,92
	langostinos	<3,89	<2,59	<2,20	<2,17	<1,46
	almeja chirla	0,71±0,02	0,47±0,02	0,40±0,01	0,40±0,01	0,30±0,1
CONSERVAS	anchoas	1,0±0,4	0,6±0,2	0,5±0,2	0,5±0,2	0,4±0,1
	berberechos	6,8±0,4	4,6±0,3	3,9±0,2	3,8±0,2	2,6±0,1

Tabla 6.14: Contribución a la dosis efectiva por ingestión de <sup>238</sup>U (en nSv/año) para los distintos grupos de edades en los distintos productos marinos

Los valores se encuentran entre  $0,27 \pm 0,01$  y  $19,5 \pm 0,8$  nSv/año que presentan las conservas de almeja chirla y la almeja chirla natural en adultos respectivamente, siendo éstos mayores para grupos de edades inferiores.

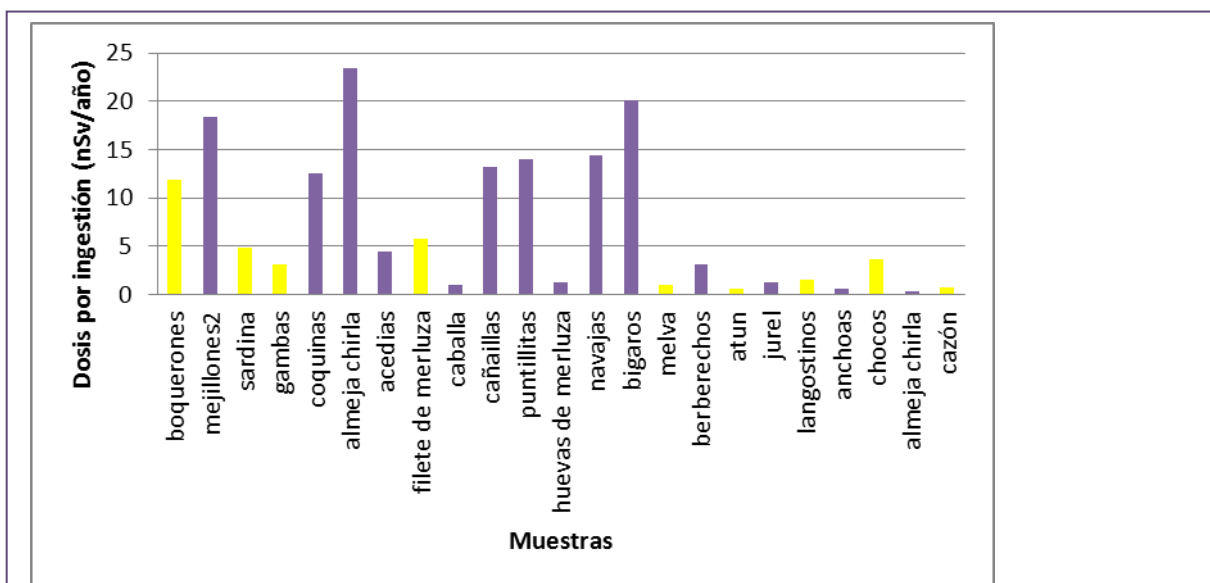


Figura 6.6: Contribución a la dosis efectiva por ingestión de  $^{234}\text{U}$  (en nSv/año) en adultos para los distintos productos marinos ordenados en función de la dosis de  $^{210}\text{Po}$ .

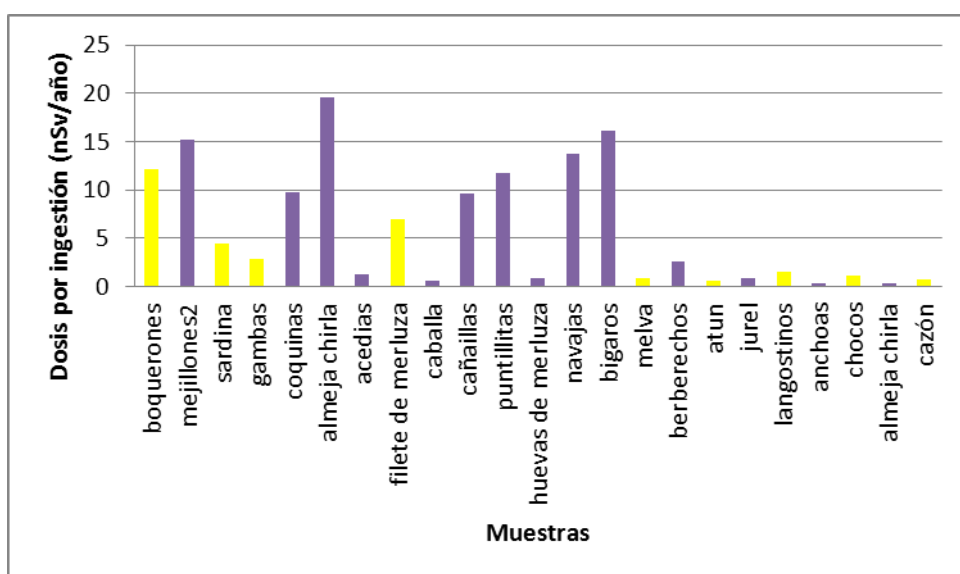
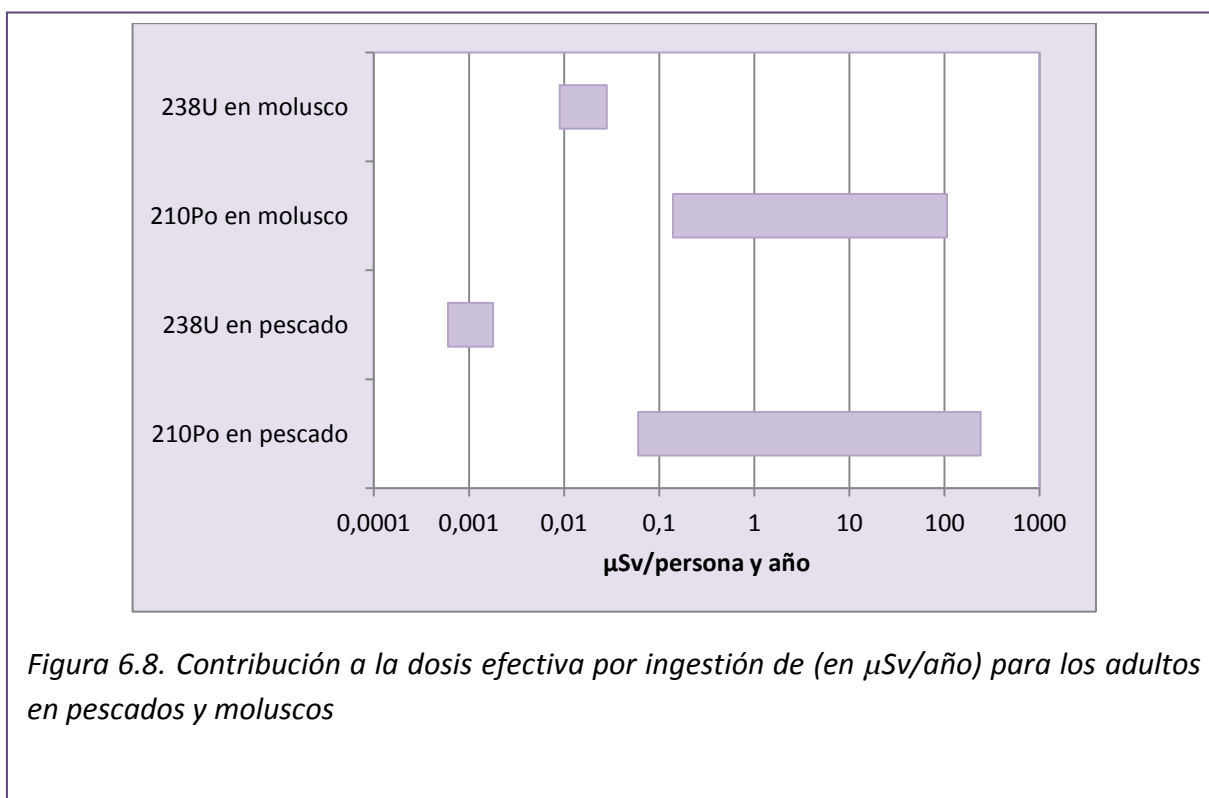


Figura 6.7: Contribución a la dosis efectiva por ingestión de  $^{238}\text{U}$  (en nSv/año) en adultos para los distintos productos marinos ordenados en función de la dosis de  $^{210}\text{Po}$ .

Las gráficas presentadas anteriormente (figura 6.6 y 6.7) se presentan en dos colores. El azul se corresponde a la dosis efectiva obtenida en función a los valores de concentración de actividad obtenidos, en amarillo los resultados de dosis efectiva calculados a partir de la actividad mínima detectada para la muestra.

Como se observa en las figuras 6.6 y 6.7, las muestras que presentan mayores dosis para el  $^{210}\text{Po}$ , no son las que mayor contribución a la dosis hacen con respecto a los isótopos de uranio. Ello puede verse claramente en los boquerones, que en este caso ya en la concentración de actividad solo pudo determinarse el AMD, o los mejillones y la almeja chirla natural, los primeros presentaban una mayor dosis para el  $^{210}\text{Po}$  que la almeja chirla, pero en el caso de los isótopos de uranio es al contrario, ya que esta muestra presenta una mayor concentración de  $^{234}\text{U}$  y  $^{238}\text{U}$  que la muestra de mejillones.



Las dosis que se han calculado para la ingestión de  $^{238}\text{U}$  tienen una diferencia de hasta tres órdenes de magnitud respecto a las dosis correspondientes al  $^{210}\text{Po}$ , ya no sólo por las más bajas concentraciones de actividad de estos radionucleidos, sino también por la menor radiotoxicidad que presentan, que queda reflejado en un coeficiente de dosis más pequeño (Figura 6.8).

Todo lo mencionado en este capítulo vuelve a ratificar el papel tan importante que juega el  $^{210}\text{Po}$  en la dosis, ya que es el que más contribuye a la misma, y queda patente el carácter bioacumulativo del mismo en organismos marinos. El valor de la dosis asociada a la ingesta varía mucho como hemos podido ver. La población española tiene los productos marinos como una componente importante en su dieta. Son esperadas por tanto dosis efectivas, debidas a la ingestión, superiores en la población española

en relación con otros grupos europeos donde la cultura de incluir pescado en su dieta es inferior.



## 7. $^{210}\text{Po}$ EN EL CUERPO HUMANO

El  $^{210}\text{Po}$  es uno de los radionucleidos más tóxicos, no sólo por su alta actividad específica (144 GBq/mg), sino también por su emisión LET de alta energía ( $E_{\alpha}=5,3$  MeV). Una cantidad de 0,05 g incorporada al cuerpo humano es considerada una dosis mortal. Este hecho quedó demostrado cuando el agente ruso Andrei Litvinenko fue envenenado en 2006, tras ingerir una pequeña cantidad de polonio disuelta en su té, con resultado de muerte.

La contribución estimada de  $^{210}\text{Po}$  a la dosis total de fondo es de 120  $\mu\text{Sv/año}$  según informes de la UNSCEAR 2000, lo que supone un 5% del total estimado en cuanto a promedio global para los seres humanos. Este valor de referencia no debe ser interpretado como un valor invariable y estático. Este valor ha de ser tenido en cuenta como un valor que representa una amplia dispersión. Recordemos que algunas de las dosis anuales por ingestión debido a este radionucleido que han sido calculadas en capítulos anteriores, ya superaban este valor.

Se conoce que este elemento es bioacumulativo, pero la razón por la cual este radionucleido presenta una elevada acumulación en el cuerpo humano no es del todo conocida. Una de las explicaciones que se encuentran es que el  $^{210}\text{Po}$  presenta una elevada afinidad a una proteína no identificada de alto peso molecular ( $\approx 70\text{kDa}$ ) [Henricsson et al. 2012], con grupos  $-\text{SH}$ , presente en la sangre [Hill. 1965]. Alimentos ricos en proteínas, como moluscos y crustáceos, presentan como ya vimos en capítulos anteriores las más altas concentraciones de  $^{210}\text{Po}$ .

El polonio es un calcógeno, o también llamado anfígeno, que quiere decir formador de ácidos y bases. A este grupo pertenecen los elementos del grupo VI de la tabla periódica, entre los que además del polonio se encuentran: oxígeno, telurio, selenio y azufre. Por tanto nuestro elemento objeto de estudio tiene similitudes químicas con los elementos de su grupo. En cuanto a comportamiento biológico apunta que tiene más similitudes con el selenio [Waska et al. 2008]. En todo caso, el conocimiento sobre el comportamiento metabólico del  $^{210}\text{Po}$  en el cuerpo humano es escaso.

Durante la década de los 50, se llevaron a cabo estudios de supervivencia tras la administración de  $^{210}\text{Po}$ . Independientemente de la vía de administración, las consecuencias acababan siendo fatales ya que su incorporación al cuerpo humano terminaba afectando a más de un órgano [Fink. 2008]. Además, la caracterización biológica de este radionucleido, en humanos, se encuentra con la dificultad de la traslación de los resultados existentes en animales a humanos, dada la variación entre las especies, la vía de exposición y la forma química que adquiere dentro del cuerpo.



### 7.1 Transporte de elementos radiactivos en el cuerpo humano

Los modelos biocinéticos dependen a su vez de los modelos metabólicos y de los dosimétricos. Los primeros estudian la distribución de actividad en los distintos compartimentos corporales, con los procesos de absorción y retención. El modelo dosimétrico se encargará de estudiar las energías específicas efectivas de radiación en cada compartimento, teniendo en cuenta el decaimiento radiactivo de los radionucleidos que lleguen a ellos.

La mayor parte del polonio entra al cuerpo por vía oral, aunque, dado que en el aire también se presentan concentraciones nada despreciables del mismo, no ha de desestimarse otra vía de entrada, la inhalación. Otra posible vía de incorporación de material radiactivo es a través de heridas o bien por vía intravenosa.

A través de la vía oral, por el tracto alimentario, el polonio acompaña a los distintos alimentos que lo contienen. La absorción es el proceso que conduce a la transferencia de los radionucleidos desde el tracto digestivo a la sangre y, por tanto, a otros tejidos corporales. Los radionucleidos pueden entrar en el cuerpo humano a través del tracto alimentario de dos formas diferentes: directamente como resultado de su ingestión o indirectamente después de la inhalación y escalado mucociliar de las partículas de la vía respiratoria a la faringe y esófago.

La absorción del polonio por la sangre tiene lugar en el intestino delgado. La absorción de polonio en el intestino delgado no es total, sino que una parte del polonio ingerido pasa al intestino grueso y, finalmente es expulsado en las heces.

Además, puede suceder que el polonio presente en sangre pase al intestino grueso y sea eliminado a través del sistema excretor.

También hay que tener en cuenta la retención de polonio por los tejidos, dentro de alguna región del tracto digestivo. Existen estudios que avalan la retención de  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  y  $^{210}\text{Pb}$  en dientes de ratones tras la ingesta de agua potable [Bhattacharyya et al. 1985].

El grado de absorción y la secreción/excreción va a depender del elemento en concreto, así como de la forma química que éste adopte, que va a depender a su vez de si estos van a estar incorporados en los alimentos unidos a los constituyentes orgánicos o a los inorgánicos.

Los primeros cambios químicos tienen lugar en la boca, pero principalmente se van a producir en mayor medida en el estómago y en el intestino delgado. Estos cambios en la forma van a determinar la disponibilidad del  $^{210}\text{Po}$  para la absorción y por tanto la extensión de la captación, a través del epitelio intestinal, a la corriente sanguínea.

En general la absorción de los radionucleidos se produce junto a la absorción de los nutrientes en el intestino delgado. Esta absorción puede implicar difusión pasiva o transporte activo, o pinocitosis de macromoléculas a través de la única capa de células epiteliales que recubre el intestino delgado. Es cierto que esta parte del sistema digestivo es el que participa en mayor medida en la absorción, aunque también es cierto que también puede llevarse a cabo en otras regiones aunque en menor medida, como la boca, el estómago y el colon.

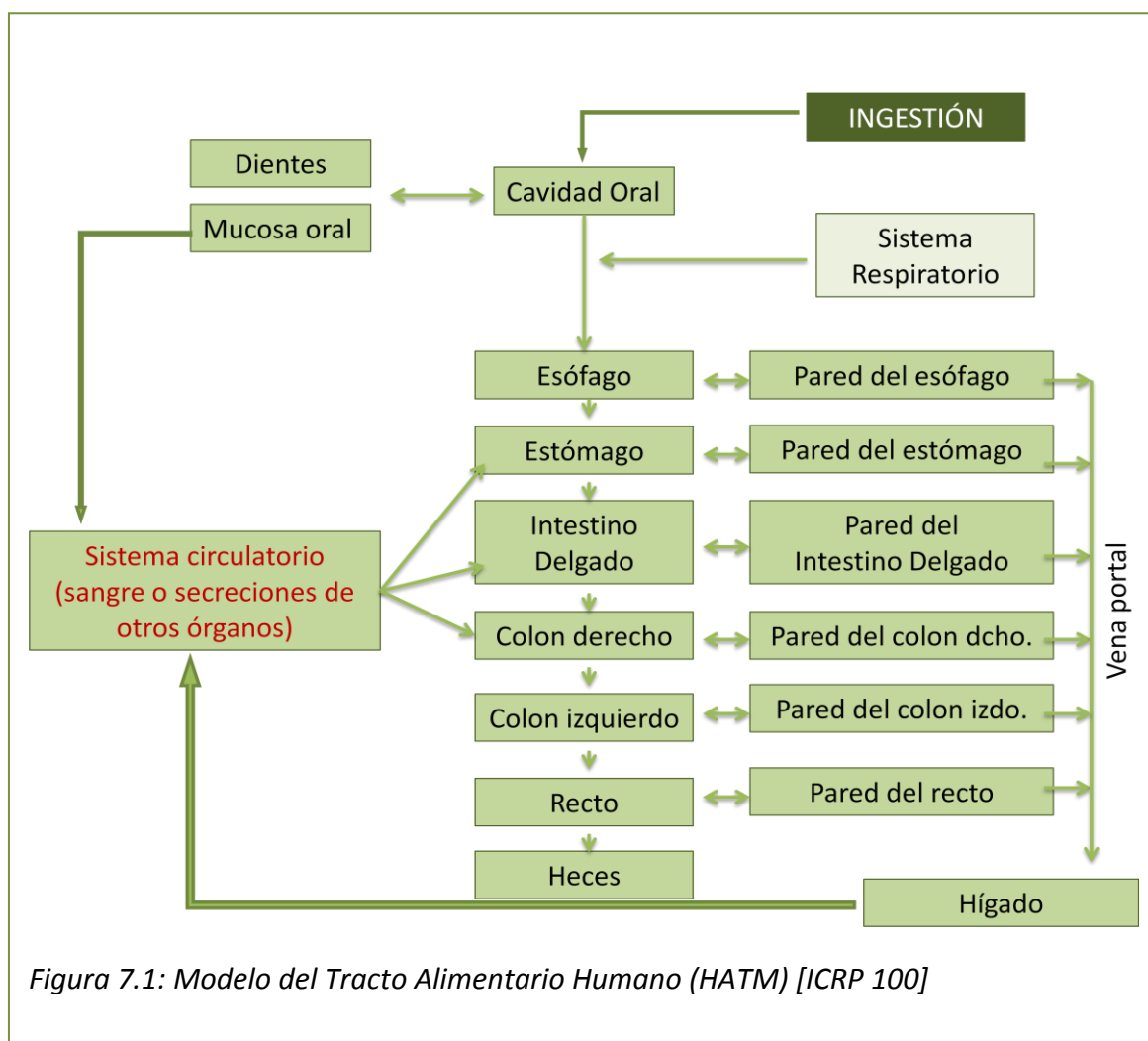


Figura 7.1: Modelo del Tracto Alimentario Humano (HATM) [ICRP 100]

La descripción del modelo de la vía digestiva en humanos se estructura en el diagrama que se presenta en la Figura 7.1. En él se observa cómo la entrada de un radionucleido en el sistema digestivo puede ocurrir en la cavidad oral por ingestión o por el esófago después de un proceso de limpieza mecánica del aparato respiratorio. Existe una transferencia secuencial esófago-estómago-intestino delgado-intestino grueso, y una retención a nivel bucal o en las paredes del sistema digestivo. Esta retención puede devolver al radionucleido de nuevo al órgano o transferirlo a la sangre.

Aunque el esquema presenta una simplificación de los complejos procesos que intervienen en la transferencia de un radionucleido a través del lumen del tracto alimentario, se presenta para que nos proporcione una representación razonable del tiempo de residencia que puede tener el elemento de interés en los distintos segmentos.

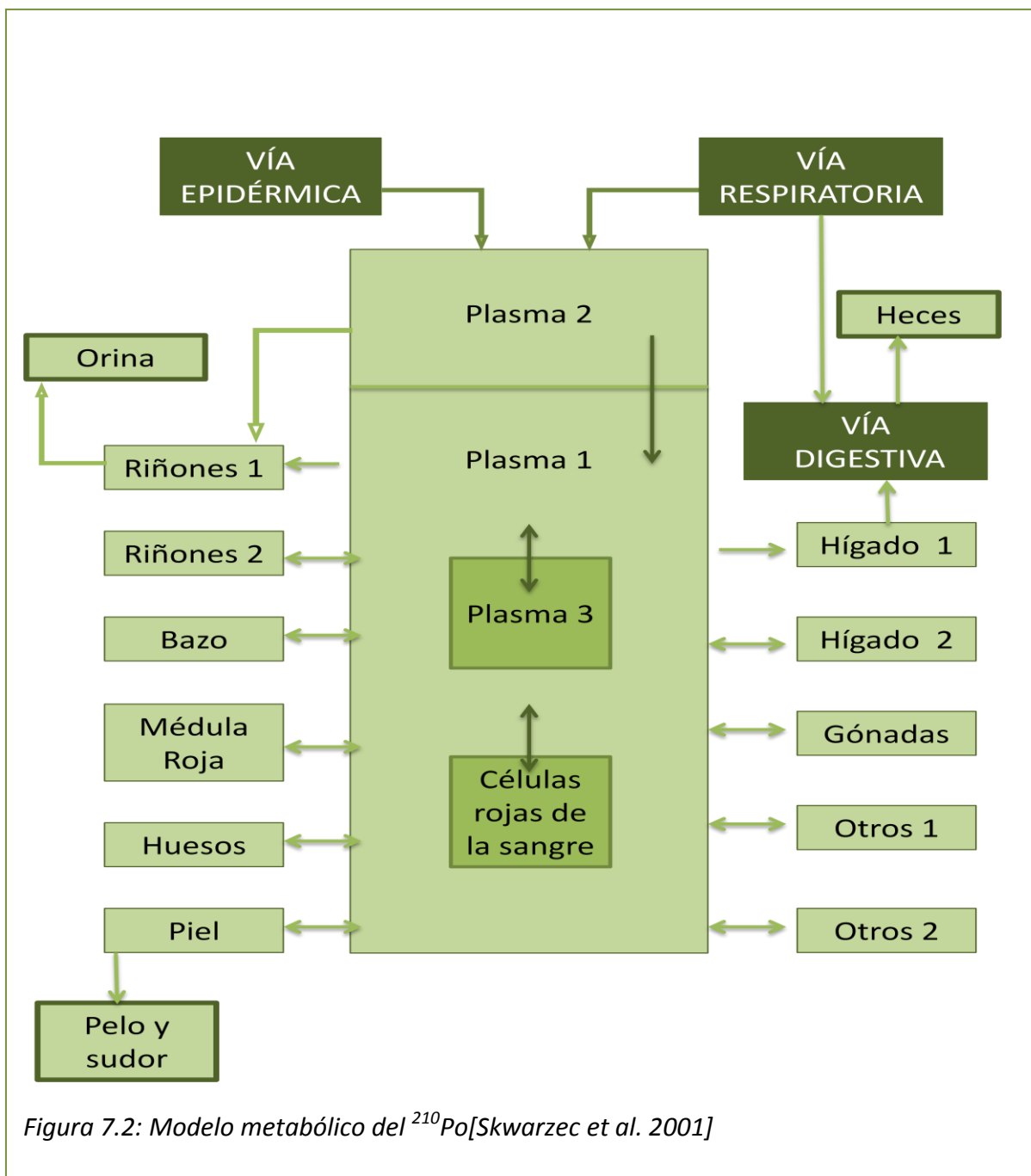
Un coeficiente de transferencia describe la tasa de flujo de salida de una sustancia de un compartimento, y se define como la fracción de sustancia que deja un determinado compartimento de una forma inmediata por unidad de tiempo. Existen valores genéricos que describen el flujo global del material a través del lumen del tracto alimentario, y otros específicos que describen la retención sobre o en los tejidos del sistema digestivo, la absorción en la sangre y la secreción de los órganos a la sangre o al lumen. El tiempo de tránsito de un radionucleido en un compartimento se define como el tiempo que dicho radionucleido reside en él. Algunos valores específicos los encontramos en las distintas publicaciones del ICRP. Hasta el modelo, que se propuso por la publicación ICRP 100, se obviaba como punto de entrada la cavidad oral y el esófago, considerando el estómago como primer punto de entrada. Además no se tenía en cuenta la retención en las paredes, sólo se consideraba la absorción en el intestino delgado. En esta publicación ya se presentan coeficientes de transferencia para distintos grupos de edad, género y tipo de material (recomendando para qué materiales inespecíficos o mezclas desconocidas de sólidos y líquidos, se empleen los coeficientes correspondientes a la dieta total). En este modelo se considera que, para compartimentos en los que no se conoce una información específica de retención y absorción, el coeficiente de transferencia se interpreta como cero.

Existen muchos experimentos en animales y algunos datos en humanos que respaldan la teoría de que muchos elementos son absorbidos en mayor medida en recién nacidos que en adultos. Los datos sobre el efecto de la edad y otros factores que afectan a la absorción han sido revisados por el ICRP para su uso en el cálculo de los coeficientes de las dosis relacionados con la edad para los miembros del público [ICRP 83, 93, 95].

A la hora de modelizar, nos encontramos limitados, ya que son escasos los estudios realizados en humanos, y los realizados en animales van a presentar altas incertidumbres debido a los distintos comportamientos que pueden presentar los radionucleidos en función de las diferencias intra e interespecíficas. Para cálculos de fracción absorbida es importante conocer la morfometría de las distintas regiones del tracto digestivo y la cinética del material ingerido en el lumen. Con todo esto lo que se quiere señalar es la complejidad que puede presentar el estudio de la biocinética del  $^{210}\text{Po}$ .

## 7.2 Modelo metabólico del polonio

Según el modelo biocinético presentado en la publicación 30 del ICRP, se asume que después de incorporarse el  $^{210}\text{Po}$  a la sangre, un 10% pasa al hígado, otro 10% a los riñones, también un 10% al bazo y, por último, un 70% pasa a otros tejidos. La retención se produce con una vida media biológica de 50 días. Estudios posteriores tienen en cuenta absorción en la médula ósea y en los huesos. Tras esto, la publicación 67 del ICRP modifica las fracciones que se depositan en los distintos compartimentos, siendo un 30% el que se deposita en el hígado, otro 10% en los riñones, el 5% en el bazo, un 10% en la médula osea roja y, en el resto del cuerpo, un 45%.



La excreción urinaria respecto a la fecal presenta una razón 1:2. En la publicación 71 del ICRP existe también un modelo compartimental para el polonio, aunque este polonio considerado es el que se produce del decaimiento de las cadenas radiactivas del uranio y torio. El transporte de polonio, independientemente de la vía de entrada, entre los distintos compartimentos asumiendo una cinética de primer orden queda reflejado en la Figura 7.2. Este transporte se va a expresar con un coeficiente de transferencia, que nos va a indicar como se mueve el polonio de un compartimento a otro. Este parámetro expresa la transferencia fraccional por unidad de tiempo de un compartimento a otro y depende de la semivida biológica (tasa de absorción y retención) y del decaimiento radiactivo. El coeficiente total de transferencia es la suma de todos los coeficientes de transferencias individuales.

En la Tabla 7.1 se presentan los coeficientes de transferencias para el modelo que aparece en la figura anterior.

Movimiento del $^{210}\text{Po}$	Coefficiente de transferencia de $^{210}\text{Po}$ ( $\text{día}^{-1}$ )
Plasma 2 a plasma 1	800
Plasma 2 a riñones	200
Plasma 1 a riñones	5,0
Plasma 1 a células rojas de la sangre	6,0
Plasma 1 a hígado 1	17,5
Plasma 1 a hígado 2	17,5
Plasma 1 a piel	5,0
Plasma 1 a médula roja	4,0
Plasma 1 a hueso	1,5
Plasma 1 a bazo	2,0
Plasma 1 a testículos	0,1
Plasma 1 a ovarios	0,05
Plasma 1 a otros	32,35
Plasma 3 a plasma 1	0,099
Células rojas de la sangre a plasma 1	0,099
Hígado 1 a tracto gastrointestinal	0,139
Hígado 2 a plasma 1	0,099
Riñones a plasma 1	0,00693
Riñones a excreta	0,00693
Médula roja a plasma 1	0,099
Huesos a plasma 1	0,0231
Bazo a plasma 1	0,099
Gónadas a plasma 1	0,0139
Otros a plasma 1	0,099

Tabla 7.1: Coeficientes de transferencia para  $^{210}\text{Po}$  ( $\text{día}^{-1}$ )

Para comprender el concepto del coeficiente de transferencia pongamos el siguiente ejemplo. Teniendo en cuenta que el coeficiente total de transferencia del Plasma 1 es de 100/día, siendo ello la suma total de todas los coeficientes de transferencia del plasma 1, y que el coeficiente de transferencia del plasma 1 a los riñones es de 5/día, hay que interpretar que un 5% del  $^{210}\text{Po}$  que se encuentra en el plasma 1 pasa a los riñones. Por decirlo de otra manera, si se conoce que un 5% del polonio que deja el plasma 1 va a los riñones, y el coeficiente de transferencia total del polonio en el plasma 1 es de 100/día, el coeficiente de transferencia plasma 1 a riñones es fracción depositada en el órgano por 100/día, por lo que el coeficiente de transferencia es de 5/día. Hay que tener en cuenta que el coeficiente de transferencia total va a estar relacionado con el comportamiento biológico y radiactivo del radionucleido en cada compartimento. Es por ello que cuanto más rápido se mueva este radionucleido de compartimento, mayor será su coeficiente de transferencia. Es el caso del Plasma 2, en el que se estima una semivida de 1 minuto de este radionucleido, y su coeficiente de transferencia es de 1000/día, sin embargo si tenemos en cuenta el plasma 1, vemos un coeficiente de transferencia de 100/día que se relaciona con una semivida de 100 minutos. **Error! Marcador no definido.**

El plasma 1 corresponde a la sangre de un compartimento distinto a la vía respiratoria o la entrada directa de la piel por heridas, o sangre retornada de distintos órganos.

El plasma 2 se corresponde a la sangre que proviene del aparato respiratorio o que se encuentra en contacto con la vía epidérmica de entrada de  $^{210}\text{Po}$ . El polonio que entra en este compartimento, sale de él rápidamente ya que posee una semivida de 1 minuto. Un 80% del polonio que está en este compartimento pasa al plasma 1 y el 20% a los riñones, algo que justifica la rápida excreción del  $^{210}\text{Po}$  por la orina.

El plasma 3 se le asigna a las proteínas que no se difunden y a las cuales queda asociado el polonio.

Como hemos visto en la literatura, los datos respecto al comportamiento de este radionucleido nos demuestran que es difícil comprenderlo. Existen modelos basados en el conocimiento de distintos parámetros radiobiológicos que permiten hacer predicciones y estimaciones, pero aun así como hemos ido viendo en este capítulo, el polonio eliminado por un órgano puede volver a ser absorbido más tarde por el mismo órgano.

### 7.3 $^{210}\text{Po}$ por vía respiratoria

El  $^{210}\text{Po}$  como se ha mencionado anteriormente, emite radiación alfa en su desintegración. Dado que estas partículas alfas son muy másicas, la capacidad de penetración en la materia que van a presentar es muy baja (del orden de los milímetros), conllevando con ello una elevada pérdida de energía por unidad de

longitud recorrida. Esta baja capacidad de penetración va a hacer que la vía epidérmica no sea una vía importante de incorporación de  $^{210}\text{Po}$  al organismo.

Aun teniendo en cuenta esto, se han realizado medidas en algodón, ya que es un componente importante de los tejidos y entraría en contacto directo con la piel, encontrando valores comprendidos entre  $0,27 \pm 0,04$  y  $1,8 \pm 0,3$  mBq/g.

A pesar de que en este trabajo nos hemos centrado en el  $^{210}\text{Po}$  que entra a través de la vía digestiva, no hay que restar importancia al que se incorpora por la vía respiratoria. Como vimos en el modelo metabólico, este polonio que entra a través de dicha vía, se incorpora directamente a la sangre en un alto porcentaje, sólo un resto que queda atrapado en las células mucociliares y se incorporará a la vía digestiva.

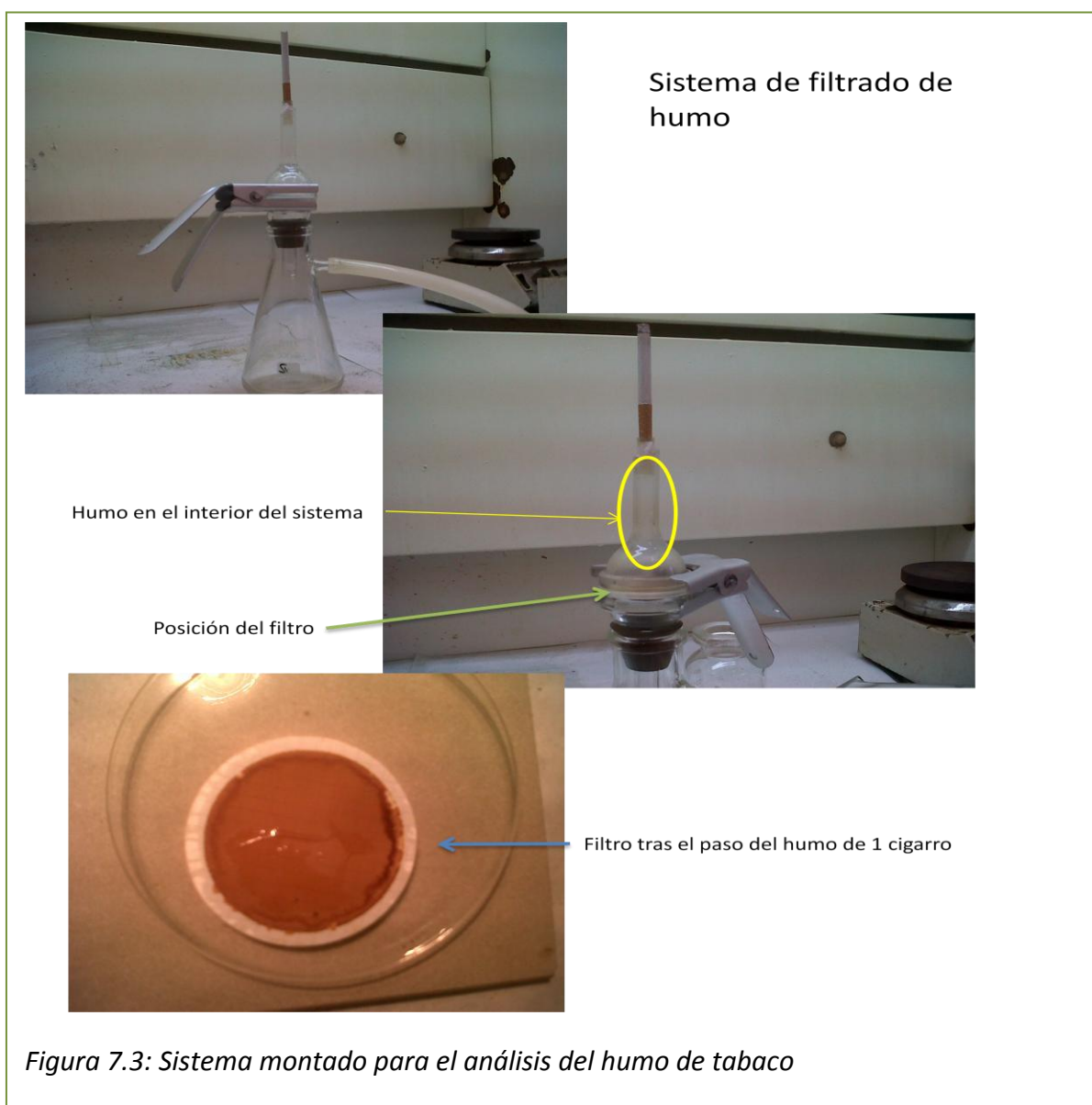


Figura 7.3: Sistema montado para el análisis del humo de tabaco

No se han llevado a cabo en este estudio determinaciones de posibles concentraciones de actividad de este radionucleido en el aire, pero conociendo a través de la literatura que en el tabaco este elemento se encuentra presente en no despreciables concentraciones, se ha querido hacer algunas pruebas con sobre la incorporación de  $^{210}\text{Po}$  al cuerpo humano a través de esta vía. El  $^{210}\text{Po}$  se incorpora a la planta del tabaco por deposición atmosférica sobre sus anchas hojas o incorporado a través de sus raíces desde el suelo en el que puede estar enriquecido debido al uso de fertilizantes. Este hecho es bien conocido por las tabacaleras, a las cuales no les interesa que salga a la luz, dado que la presencia de este isótopo radiactivo se asocia con la aparición de cáncer de pulmón. Se ha llevado a cabo esta prueba con la finalidad de ver la concentración de  $^{210}\text{Po}$  tanto en el tabaco como tal (la hierba), así como en un filtro por el que vamos a hacer pasar el humo que inhalaría una persona fumadora.

El sistema experimental que se ideó consta de un matraz Kitasato forma Erlenmeyer al cual se conectará la bomba de vacío, una junta de goma Guko para que cuando la bomba empiece a succionar el aire nos garantice que ese aire que aspira es el que ha pasado por el filtro que hayamos colocado y dos portafiltros de vidrio con placa porosa unidos con una pinza de aluminio. Entre los dos portafiltros situaremos un filtro Millipore de tamaño de poro de  $45\ \mu\text{m}$ , que es lo que finalmente analizaremos. En el portafiltros superior colocaremos una goma que encaje con el cigarro y para evitar posibles pérdidas en esta junta se sellará con parafilm.

En la figura 7.3 aparecen fotografías del sistema que se montó para hacer pasar el humo del cigarro, y una imagen de un filtro Milipore ya usado, que se empleó para retener las partículas con un tamaño superior de  $45\ \mu\text{m}$ . Se empleaba un filtro por cigarro, ya que tras el paso del humo de un segundo cigarro el filtro se saturaba. Los filtros limpios presentaban una masa entre  $0,0772$  y  $0,0778\text{g}$ , tras el paso del humo de un cigarro, esta masa aumentaba, encontrando valores comprendidos entre  $0,0906$  y  $0,1186\text{g}$ .

Las muestras que se han medido en este trabajo han sido: el tabaco que contiene el cigarro y los filtros que colocábamos en el sistema. Estos filtros están colocados en el sistema que se ideó de forma que retienen las partículas que dejan pasar los filtros propios que contiene un cigarro, y que es realmente lo que incorporaría una persona fumadora.

En la literatura también se presentan resultados del  $^{210}\text{Po}$  que queda retenido en los propios filtros del cigarro. En la Tabla 7.2 que se presenta a continuación, se han expuesto resultados obtenidos por nosotros, así como en otros estudios. Hacemos hincapié en que los resultados que dan los distintos estudios cuando se refieren a filtro después de haberse consumido en cigarro, es al filtro que contiene la boquilla del mismo, y que no es comparable al filtro que nosotros hemos analizado puesto que



nosotros filtrábamos el humo una vez que había pasado por ese primer filtro del cual dan los resultados los distintos estudios, con lo que sería el humo que realmente llegaría hasta los pulmones de una persona fumadora.

$^{210}\text{Po}$	España	Egipto [Kharter. 2004]	Polonia [Skwarzec et al. 2001]	Hungría [Kovács et al. 2007]
Tabaco	13,4±0,7	16±3	13,34	22±8
Filtro <sup>1</sup>		2,1±0,8	0,61	
FiltroB <sup>2</sup>	0,82±0,06	-		
Dosis $^{210}\text{Po}$	25,7±0,2μSv/año	193μSv/año	35 μSv/año	186±71 μSv/año

Tabla 7.2: Comparativa de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  (mBq/cigarro) en distintas partes del cigarro halladas en distintas publicaciones y dosis específica debido a la inhalación del mismo (μSv/año)

La dosis efectiva comprometida y el metabolismo debido a la inhalación de  $^{210}\text{Po}$  van a depender de la solubilidad del compuesto inhalado y del grupo de estudio (público o personal expuesto) en la publicación de la ICRP 66 se describe con detalle el modelo del tracto respiratorio.

Los resultados hallados en nuestro estudio se presentan en la tabla comparativa que se expuso anteriormente. Para el cálculo de la dosis efectiva debido a la inhalación de este radionucleido, se ha asumido el consumo de una cajetilla diaria que suele contener 20 unidades y el coeficiente empleado presenta un valor de  $4,3 \times 10^{-6} \text{Sv/Bq}$ . Si comparamos este valor de dosis efectiva debido a la inhalación de  $^{210}\text{Po}$  presente en los cigarros que es de  $25,7 \pm 0,2 \mu\text{Sv/año}$ , con la dosis debido a la ingesta de alimentos, tal y como vimos en el capítulo 5, las muestras de dieta presentaban una dosis efectiva por la ingesta de este radionucleido de  $0,3 \pm 0,5 \text{mSv/año}$ , una persona fumadora presentaría aproximadamente una dosis un 8,5% más alta que una persona no fumadora.

#### 7.4 $^{210}\text{Po}$ en la orina

La eliminación del polonio a través de la orina, nos puede llevar a dar una idea del polonio ingerido, aunque hay que tener en cuenta que debido a las diferentes vías de entrada que éste puede tener, a su biocinética y a los distintos factores que pueden influir en la tasa de eliminación por esta vía, siempre será complicado conocer con

<sup>1</sup> Filtro del propio cigarro (boquilla) una vez que el humo ha pasado a través de él.

<sup>2</sup> Filtro (millipore) colocado después del filtro del propio cigarro (boquilla), que se encarga de filtrar el humo que pasaría al organismo de un fumador tras su inhalación.

exactitud la cantidad de  $^{210}\text{Po}$  incorporado en un determinado momento. Ahora bien, serviría como test de posibles contaminaciones o incorporaciones de este radionucleido elevadas. Para ello, como mencionamos en un principio, previamente debería de existir un banco de datos, con un número representativo de resultados de  $^{210}\text{Po}$  en orina humana. Se pueden llevar a cabo estimaciones de  $^{210}\text{Po}$  en el cuerpo a través también de muestras fecales, de sangre y de pelo, cada una con sus ventajas e inconvenientes.

En este capítulo, nosotros nos vamos a centrar en el polonio que es eliminado por la orina. Para ello se han analizado un total de 80 muestras. Un total de 5 voluntarios se han prestado a colaborar en este estudio, 4 de ellos varones de edades comprendidas entre los 28 y 54 años y 1 mujer de 27 años, todos ellos sanos en el momento de ceder las muestras y no fumadores. Siguiendo una vida normal, cedieron la orina generada a primera hora de la mañana de cada día. A cada muestra le acompañaba una hoja en la que apuntaban los alimentos que habían ingerido el día anterior. La cantidad de muestra generada era variable, entre unos 100 y 300 mL, aunque si bien es cierto que la mayoría de las muestras superaban los 200 mL. Debido a las distintas densidades que estas muestras pueden presentar en función a distintos factores que pueden afectar al donante, se va a expresar en masa la cantidad de orina analizada. Posibles anomalías detectadas visualmente en la muestra también eran anotadas. El procedimiento analítico de las mismas era inmediato tras la recepción de las muestras, no pasando más de diez días desde su generación hasta su medida.

#### **7.4.1 Control de $^{210}\text{Po}$ en orina en individuos que siguen su dieta habitual**

Un primer estudio se centró en la determinación de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en orina de individuos que siguen su dieta habitual. Se presentan resultados de 19 muestras obtenidas de 3 individuos.

La cantidad de muestra generada en cada caso se muestra en la siguiente tabla 7.3. La nomenclatura seguida se interpreta de la siguiente manera. La letra corresponde al individuo en cuestión, y el número corresponde al orden en tiempo de la muestras. Se presenta también en la misma tabla los alimentos más destacados que se ingirieron el día anterior a la toma de la muestra.

INDIVIDUO	MUESTRA	CANTIDAD DE MUESTRA (g)	Fecha	ALIMENTACIÓN DEL DÍA ANTERIOR	OBSERVACIONES
<b>Letra I</b> <b>Sexo: M</b> <b>Edad:</b> <b>27años</b>	I-1	116		Lenguado Tomate Jamón York	<b>Tonalidad oscura</b>
	I-2-1	113		Espinacas Garbanzos Sandía	<b>Pertenecen a un mismo día. Siendo la 1 la tomada a primera hora de la mañana</b>
	I-2-2	141			
	I-2-3	122			
	I-3	245		Carne de cerdo Queso, Tomate	
	I-4	226		Pasta Pollo	
	I-5	186		Pollo Patata Lechuga	
	I-6	277		Pollo Queso Pimientos	
I-7	119		Patata Carne Vacuno Queso		
<b>Letra A</b> <b>Sexo: V</b> <b>Edad:</b> <b>29años</b>	A-1	210		Carne Vacuno Garbanzos Sandía	
	A-2	278		Carne de cerdo Queso Merluza	
	A-3	263		Garbanzos Pollo Gambas	
	A-4	212		Arroz Gambas Almejas Atún	
	A-5	169		Tomate Huevo Sardinas	
	A-6	242		Huevo Carne de Pavo Queso	
	A-7	236		Pasta, Trucha, Queso	

Tabla 7.3. Datos de las muestras de orina recogidas para su posterior análisis. En todas las comidas se incluyen pan y lácteos.

INDIVIDUO	MUESTRA	CANTIDAD DE MUESTRA (g)	Fecha	ALIMENTACIÓN DEL DÍA ANTERIOR	OBSERVACIONES
Letra P Sexo: V Edad: 54 años	P-1	268		Pasta Cerezas	
	P-2	275		Carne de Cerdo Queso	
	P-3	242		Arroz Sardinias Queso	

Tabla 7.3. Datos de las muestras de orina recogidas para su posterior análisis. En todas las comidas se incluyen pan y lácteos

La cantidad total de  $^{210}\text{Po}$  de origen natural en el cuerpo humano puede variar de una persona a otra dependiendo de su modo de vida: hábitos alimenticios, origen al agua de bebida, lugar de residencia (asociado a la exposición a  $^{222}\text{Rn}$ ), etc. Muchos son los factores que influyen en la cantidad de  $^{210}\text{Po}$  incorporado por el cuerpo humano, haciendo que existan variaciones significativas entre diferentes individuos, y por lo tanto en las concentraciones de este elemento que pueden encontrarse en su orina. Por este motivo, partimos en este estudio de un análisis previo de un grupo de orinas pertenecientes a tres individuos para ver la presencia de este radionucleido en función de la edad y del sexo.

A continuación se presentan los resultados obtenidos para los individuos I, A y P.

Sexo:M 27 años	$^{210}\text{Po}$ (mBq/ℓ)	Sexo:V 29 años	$^{210}\text{Po}$ (mBq/ℓ)	Sexo:V 54 años	$^{210}\text{Po}$ (mBq/ℓ)
I1	11 ± 1	A1	14 ± 1	P1	11 ± 1
I2	4 ± 2	A2	7,3 ± 0,8	P2	11 ± 1
I3	7,6 ± 0,7	A3	17 ± 1	P3	26 ± 2
I4	<1,2	A4	46 ± 3		
I5	2,5 ± 1	A5	42 ± 3		
I6	<1,4	A6	18 ± 1		
I7	2,3 ± 0,4	A7	12 ± 2		

Tabla 7.4: Resultados de  $^{210}\text{Po}$  (mBq/ℓ) en muestras de orina de distintos individuos

Los resultados de las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en las distintas muestras de orina, se han expresado en mBq/ℓ asumiendo una densidad de 1kg/ℓ. En distintas publicaciones se estima que la cantidad de orina generada por un individuo al día ronda los 1,2 ℓ, si bien es cierto que este valor es muy oscilante ya que depende de los hábitos individuales, así como de determinadas condiciones que pueden variar de un día a otro. Por ese motivo se ha preferido no expresar los valores en mBq/día, pues,

como ya vimos en la Tabla 7.3, la cantidad de orina generada a primera hora de la mañana fluctuaba para un mismo individuo.

Podemos observar en esta primera tanda de resultados la amplia variedad de valores que podemos encontrar. Para el individuo I, estos valores se encuentran entre  $<1,2$  y  $11 \pm 1$  mBq/ℓ. Entre todos los resultados de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  determinados en orina que hemos presentado en la memoria, es para las muestras del individuo I para el que se encuentra el valor más bajo de todos los resultados obtenidos ( $<1,2$  mBq/ℓ). Para el individuo A, encontramos un rango que oscila entre  $7,3 \pm 0,8$  y  $46 \pm 3$  mBq/ℓ. Para el grupo reducido de muestras analizadas para el individuo P, señalar que sus resultados están entre  $11 \pm 1$  y  $26 \pm 2$  mBq/ℓ.

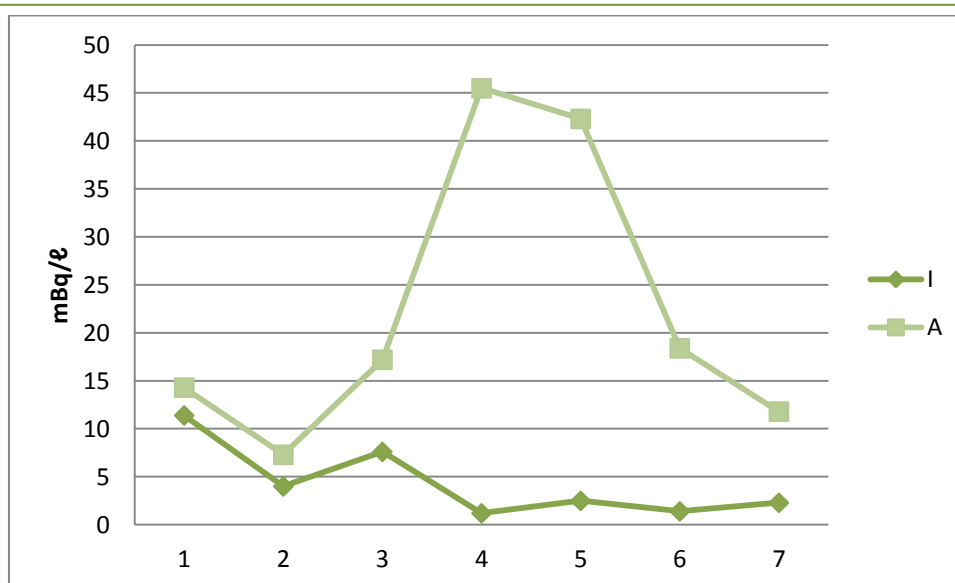


Figura 7.4: Representación gráfica de los resultados de  $^{210}\text{Po}$ (mBq/ℓ) en distintas muestras de orina de dos individuos

En la gráfica que muestra la Figura 7.4 podemos observar más claramente los resultados obtenidos para los individuos I y A, quienes tienen un estilo de vida y edad similar. Para las muestras analizadas en el individuo A, vemos que se presentan unos valores más altos respecto al individuo I, si bien es cierto que si observamos la dieta, esta incluye una mayor cantidad de productos marinos, vamos a fijarnos que los dos valores más altos se dan tras la ingesta de almejas, gambas y sardinas, todos ellos productos que se caracterizaban por presentar unas concentraciones altas de  $^{210}\text{Po}$ . Las muestras del individuo I, presentan valores muy uniformes e inferiores respecto al individuo A. Si observamos los alimentos ingeridos durante ese periodo de tiempo, vemos que los productos marinos se consumen en muy baja proporción. Todo esto nos lleva a apoyar lo anunciado anteriormente desde el principio de este trabajo, y es que

la dieta va a condicionar en una gran proporción a la cantidad de  $^{210}\text{Po}$  presente en el organismo.

Se quiso ver la variación temporal existente en la orina en un mismo día, para lo que el individuo I, cedió 3 muestras correspondientes con un intervalo de 8 horas aproximadamente cada una, y para las que se obtuvieron los siguientes resultados presentes en la Tabla 7.5 expuesta a continuación y en la cual no se aprecia variación significativa en las concentraciones de actividad encontradas. Con estos resultados podemos ver que la orina obtenida a primera hora de la mañana es representativa de la tomada a lo largo del día.

Sexo:M 27 años	$^{210}\text{Po}$ (mBq/L)
I2-1	4 ± 2
I2-2	5,4 ± 0,9
I2-3	6 ± 1

Tabla 7.5: Resultados de  $^{210}\text{Po}$ (mBq/L) en distintas muestras de orina de un mismo individuo colectadas con 8 horas de intervalo.

#### 7.4.2 Control de $^{210}\text{Po}$ en orina en individuos que siguen una dieta programada

Con el fin de corroborar más fielmente lo que se intuyó a la vista de los resultados previos, en definitiva para analizar más a fondo la influencia de los hábitos alimenticios en la cantidad de  $^{210}\text{Po}$  excretada en orina, otros dos voluntarios, ambos sanos y no fumadores que identificaremos con las letras G y J, accedieron a seguir durante un mes una dieta bien definida, y variable en el tiempo, seguida de una colección diaria de su orina y de la determinación en ella de las concentraciones de este radionucleido. La alimentación ingerida antes de la toma de muestras se indican en las Tablas 7.6 (individuo J) y 7.7 (individuo G).

INDIVIDUO	MUESTRA	CANTIDAD DE MUESTRA (g)	Fecha	ALIMENTACIÓN DEL DÍA ANTERIOR	OBSERVACIONES
Letra J Sexo: V Edad: 34 años	J-1	156	21/11/12	-	
	J-2	275	22/11/12	Mero	
	J-3	238	23/11/12		
	J-4	266	24/11/12		
	J-5	264	25/11/12	Atún Tomate	
	J-6	270	26/11/12	Dorada Sushi Sashimi	
	J-7	227	27/11/12	Caballa	
	J-8	216	28/11/12	Atún	
	J-9	273	29/11/12		
	J-10	264	30/11/12	Cazón Atún Melva	
	J-11	277	01/12/12	Atún Cangrejo	
	J-12	262	02/12/12	Mejillones Huevas de merluza Gambas	
	J-13	270	03/12/12	Arroz Almejas Gambas	<b>Colonias</b>
	J-14	263	04/12/12	Mejillones Huevas de merluza	<b>Colonias</b>
	J-15	262	05/12/12	Mejillones	
	J-16	263	06/12/12	-	
	J-17	252	07/12/12	Fideua	
	J-18	244	08/12/12	Fideua	
	J-19	230	09/12/12	Cabracho	
	J-20	201	10/12/12	Cabracho	
	J-21	268	11/12/12	Salmon	<b>Colonias</b>
	J-22	171	12/12/12	Boquerones Anchoas Setas Gambas	
	J-23	260	13/12/12	Sepia	<b>Colonias</b>

Tabla 7.6: Datos de las muestras de orina del individuo J recogidas para su posterior análisis. En todas las comidas se incluyen pan y lácteos.

INDIVIDUO	MUESTRA	CANTIDAD DE MUESTRA (g)	Fecha	ALIMENTACIÓN DEL DÍA ANTERIOR	OBSERVACIONES
	J-24	218	14/12/12	Salmón Mejillones	<b>Colonias</b>
	J-25	266	15/12/12	Langostinos Gambas Mejillones Huevas de merluza	
	J-26	255	16/12/12	Melva Huevas de merluza	<b>Colonias</b>
	J-27	267	17/12/12	-	
	J-28	259	18/12/12	Melva Atún	<b>Colonias</b>
	J-29	170	19/12/12	Atún Coliflor	<b>Tonalidad oscura</b>
	J-30	229	20/12/12	Atún	
	J-31	269	21/12/12		
	J-32	251	22/12/12		

Tabla 7.6: Datos de las muestras de orina del individuo J recogidas para su posterior análisis. En todas las comidas se incluyen pan y lácteos

INDIVIDUO	MUESTRA	CANTIDAD DE MUESTRA (g)	Fecha	ALIMENTACIÓN DEL DÍA ANTERIOR	OBSERVACIONES
<b>Letra G</b> <b>Sexo: V</b> <b>Edad:</b> <b>32años</b>	G-1	283	21/11/12	Pasta Tomate Lenguado	
	G-2	142	22/11/12	Sepia Zanahoria Arroz Mero	
	G-3	233	23/11/12	Pasta Col Queso	
	G-4	256	24/11/12	Salmón Patata Pasta Tomate	
	G-5	184	25/11/12	Carne Vacuno Tomate Manzana	

Tabla 7.7: Datos de las muestras de orina del individuo G recogidas para su posterior análisis. En todas las comidas se incluyen pan y lácteos



INDIVIDUO	MUESTRA	CANTIDAD DE MUESTRA (g)	Fecha	ALIMENTACIÓN DEL DÍA ANTERIOR	OBSERVACIONES
	G-6	284	26/11/12	Lata de mejillones Atún Arroz Merluza	
	G-7	254	27/11/12	Jamón Queso Pasta Carne de Cerdo	
	G-8	231	28/11/12	Merluza Tomate Atún	
	G-9	212	29/11/12	Huevos Espárragos Champiñones Pasta	
	G-10	227	30/11/12	Atún, Arroz Tomate Lechuga	
	G-11	232	01/12/12	Atún, Huevo Carne de Vacuno Queso	
	G-12	213	02/12/12	Piña, Brócoli Queso	
	G-13	251	03/12/12	Carne de Cerdo Gambas	
	G-14	242	04/12/12	Carne de Pollo Champiñones Merluza	
	G-15	280	05/12/12	Piña Sepia	
	G-16	223	06/12/12	Carne de Pollo Queso Lechuga	
	G-17	228	07/12/12	Pasta Tomate Queso	
	G-18	216	08/12/12	Arroz Champiñones Carne Vacuno	
	G-19	-	09/12/12	-	<b>Enfermedad</b>
	G-20	84	10/12/12	Lacteos	
	G-21	191	11/12/12	Atún Carne de Cerdo	

Tabla 7.7: Datos de las muestras de orina del individuo G recogidas para su posterior análisis. En todas las comidas se incluyen pan y lácteos

INDIVIDUO	MUESTRA	CANTIDAD DE MUESTRA (g)	Fecha	ALIMENTACIÓN DEL DÍA ANTERIOR	OBSERVACIONES
	G-22	156	12/12/12	Boquerones Patatas Espárragos	
	G-23	187	13/12/12	Carne de pollo Carne de Cerdo	
	G-24	194	14/12/12	Champiñones Carne de Cerdo	
	G-25	216	15/12/12	Carne de Pollo Patatas Queso	
	G-26	256	16/12/12	Mejillones Anchoas Salmón Huevas de bacalao	
	G-27	238	17/12/12	Puntillitas Sardinas Boquerones	
	G-28	168	18/12/12	Melva Atún Puntillitas	
	G-29	255	19/12/12	Atún Carne de Cerdo	
	G-30	233	20/12/12	Tomate Espárragos Calabacín	
	G-31	148	21/12/12	Champiñones Boquerones	
	G-32	87	22/12/12	Lubina Salmón Atún	

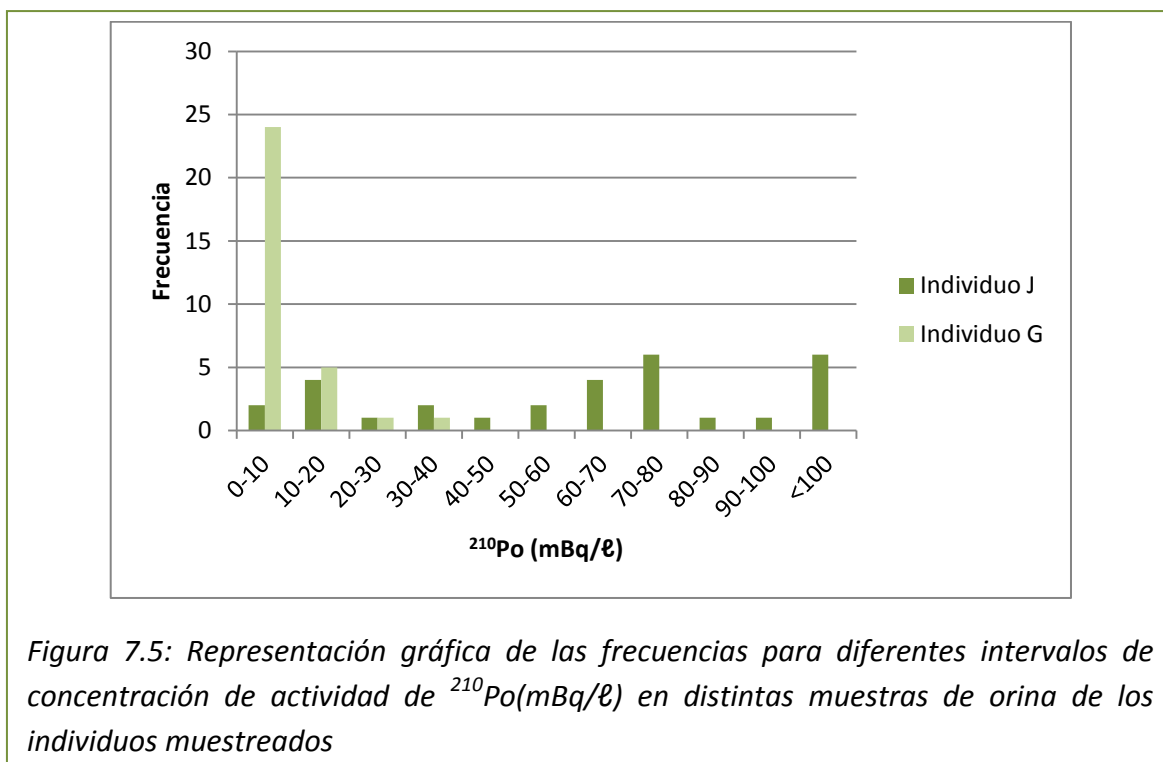
Tabla 7.7: Datos de las muestras de orina del individuo G recogidas para su posterior análisis. En todas las comidas se incluyen pan y lácteos

Los resultados, obtenidos en las muestras de orina de los dos voluntarios se recopilan en la tabla 7.8 y se encuentran entre  $6 \pm 1$  y  $119 \pm 6$  mBq/ℓ en el caso del individuo J, y para el individuo G entre  $<1,4$  y  $40 \pm 3$  mBq/ℓ. Los valores medios y las desviaciones estándar para cada individuo son de  $63 \pm 37$  y  $8 \pm 8$  mBq/ℓ para J y G respectivamente.

Muestra	$^{210}\text{Po}$ (mBq/ℓ)	
	Individuo J	Individuo G
1	-	7,1 ± 0,9
2	12 ± 2	5,4 ± 0,7
3	6 ± 1	3,1 ± 0,4
4	6 ± 1	4,8 ± 0,8
5	-	3,5 ± 0,8
6	35 ± 2	13,1 ± 0,2
7	17 ± 2	4,5 ± 0,9
8	30 ± 3	6,2 ± 0,9
9	12 ± 2	5,1 ± 0,6
10	25 ± 4	4,2 ± 0,8
11	14 ± 1	4,1 ± 0,8
12	132 ± 7	<1,4
13	114 ± 6	2,7 ± 0,5
14	74 ± 6	5,6 ± 0,1
15	112 ± 6	5,2 ± 0,2
16	50 ± 3	4,3 ± 0,8
17	73 ± 5	<1,8
18	68 ± 3	9 ± 1
19	80 ± 4	-
20	74 ± 6	12 ± 1
21	79 ± 4	6,0 ± 0,8
22	70 ± 6	9 ± 2
23	40 ± 3	5,4 ± 0,9
24	102 ± 6	7 ± 1
25	102 ± 4	3,9 ± 0,6
26	85 ± 6	13 ± 1
27	60 ± 3	25,1 ± 2,4
28	92 ± 7	9 ± 2
29	119 ± 6	8 ± 1
30	75 ± 5	11,9 ± 0,8
31	66 ± 4	40 ± 3
32	63 ± 4	10 ± 2

Tabla 7.8: Resultados de  $^{210}\text{Po}$  (mBq/ℓ) en distintas muestras de orina del estudio mensual de dos individuos

Es evidente a la vista de los resultados, que el comportamiento de las concentraciones de  $^{210}\text{Po}$  en la orina de ambos individuos es claramente distinto. Si representamos el número de resultados obtenidos en intervalos de 10 mBq/ℓ para los dos individuos (Figura 7.5), se puede observar que las distribuciones de frecuencias son completamente distintas.



Como se observa en los resultados, el individuo J, presenta en general valores más elevados, esto se debe a una mayor presencia de elementos marinos en su dieta. Las concentraciones diarias de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en la orina de los uno de los voluntarios (individuo J), analizadas durante el mes de estudio muestran una elevada variabilidad con una diferencia de hasta un orden de magnitud entre los valores máximos y mínimos obtenidos, y una clara dependencia con el tipo de dieta seguido en las diversas fases del experimento. Las concentraciones menores fueron obtenidas asociadas a una dieta rica en hidratos de carbono y proteínas “terrestres” (carne de cerdo, ternera,...), mientras que las mayores concentraciones se obtuvieron en la fase final del experimento cuando la dieta fue enriquecida con la presencia de productos marinos, en justa correspondencia con el mayor contenido de  $^{210}\text{Po}$  en estos últimos productos.

Vamos a continuación a representar gráficamente los resultados para poder comentarlos más detalladamente y que sean interpretados de forma más clara (Figura 7.6 individuo J). Para el individuo J podemos observar 5 picos claros, correspondientes a las muestras 12, 15, 24, 25 y 29, en las que si vemos la dieta seguida el día anterior en todas hay consumo de productos marinos y salvo en la última en las 3 primeras hay consumo de mejillones, que si recordamos lo expuesto en el capítulo 6, es de los grupos que mayor concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  dentro de los distintos alimentos analizados.

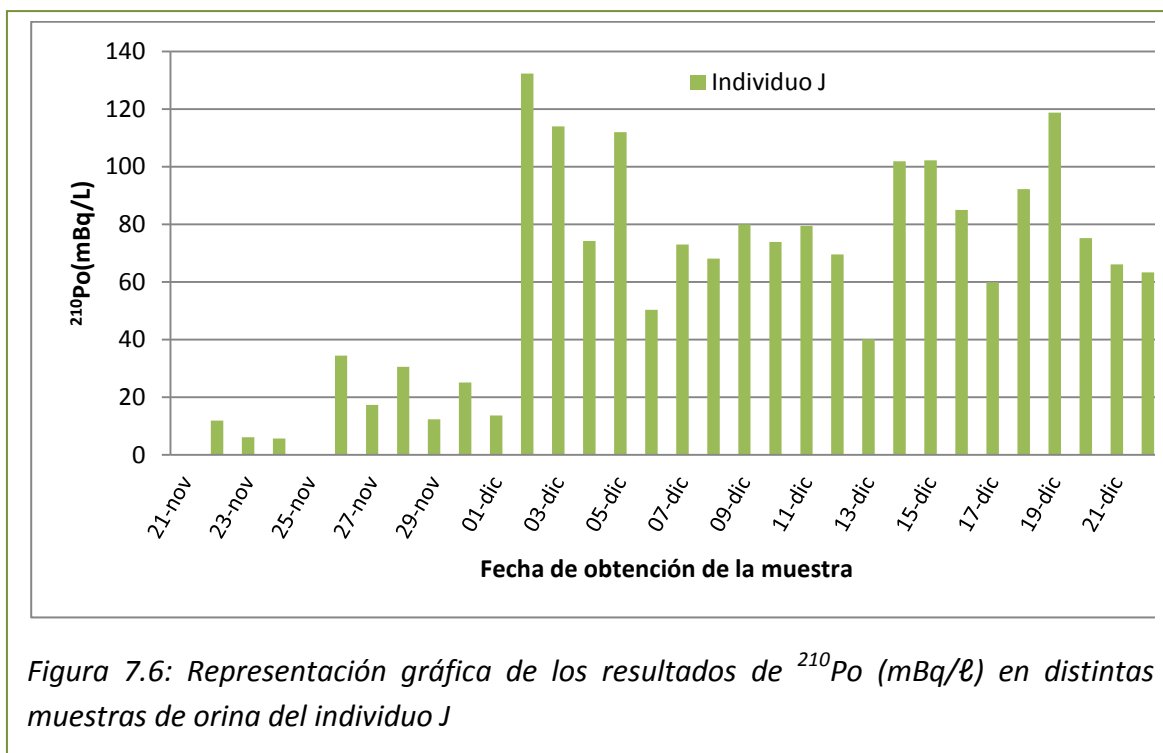


Figura 7.6: Representación gráfica de los resultados de  $^{210}\text{Po}$  (mBq/ℓ) en distintas muestras de orina del individuo J

En la gráfica en la que se presentan los resultados del individuo G (Figura 7.7 individuo G), se observan 4 picos, correspondientes a las muestras 6, 18, 27 y 31, donde salvo para la muestra 18, el resto se asocia a consumo de productos marinos el día anterior, entre los que se encuentran mejillones, boquerones y sardinas. Sin bien es cierto que los valores son menores en el individuo G, pero esto puede deberse a que la cantidad ingerida del mismo es inferior, ya que como se ve con la dieta que anotaba el sujeto se introducían otros productos no marinos ese mismo día.

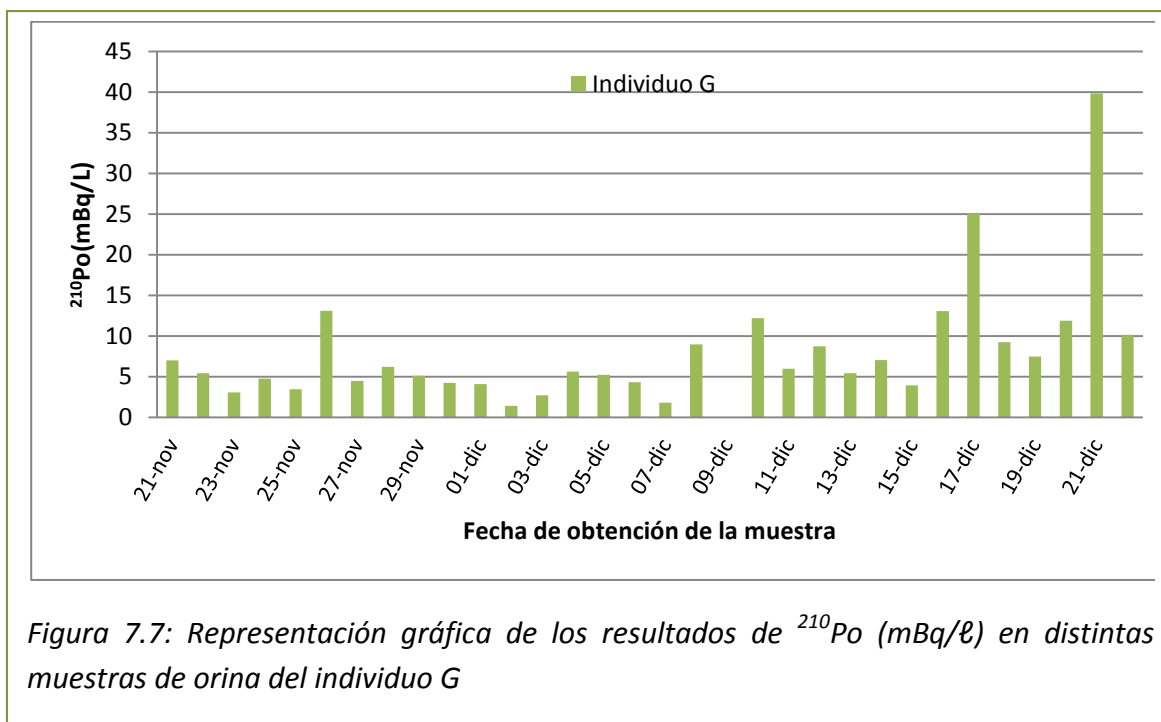


Figura 7.7: Representación gráfica de los resultados de  $^{210}\text{Po}$  (mBq/ℓ) en distintas muestras de orina del individuo G

Centrémonos en las muestras que presentan unos valores más altos de concentración para el individuo J. Como ya mencionamos antes, se observa que en su dieta llevada a cabo el día anterior a la generación de la muestra se encontraba presencia de productos marinos. Sea el caso de la muestra 12 por ejemplo en el que se apunta una ingesta de mejillones, gambas y huevas de merluza. Echando mano de los resultados obtenidos en estos alimentos y que se presentan en el capítulo 6, si asumimos una cantidad de 100 gramos de cada producto (dato que realmente desconocemos), podíamos estimar un consumo solo por estos tres productos de aproximadamente 12Bq en dicha ingesta. Valores aproximados de ingesta de polonio se obtienen para las muestras de orina que presentan resultados más altos, ya que como dijimos antes en todas ellas hay consumos de productos marinos caracterizados con una gran presencia de este radionucleido en su composición. Siguiendo con el caso de la muestra 12, que es la primera que presenta un valor elevado de concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$ .

Podemos hacer algún cálculo a partir de la primera ingesta de productos con alta concentración de actividad de polonio. De nuevo asumimos una ingesta del día anterior para la muestra número 12. Vemos que en la primera orina del día siguiente se observa una concentración de 132,2mBq/ℓ. Viendo que la cantidad de orina generada ese día es de 262 g y asumiendo densidad 1kg/ℓ, podemos ver que la cantidad de polonio eliminado en esa muestra es exactamente de unos 35mBq aproximadamente, lo que quiere decir que sería eliminado un 0,3% en las primeras horas tras la ingesta a través de la orina.

Si tenemos en cuenta que la orina del día mantiene una concentración constante de ese radionucleido, y asumimos una micción de 1,2L de orina, se eliminaría un 1,3% aproximadamente en 24 horas. Si nos remontamos a los datos de biocinética del polonio, recordemos que el coeficiente total del plasma 1 era de 100/día, y el de los riñones era 5/día, por lo que se deducía que un 5% del polonio que pasaba al plasma 1 era trasferido a los riñones. Sin tener en cuenta un aporte del plasma 2 que recordemos que el polonio de este compartimento provenía de la vía respiratoria y epidérmica y tiene una semivida en dicho compartimento menor que en el plasma 1. Sin embargo el modelo de la ICRP 71 habla de un porcentaje del 10%. Habría que estudiar la eliminación por la orina en un individuo que incorporase una cantidad conocida de este radionucleido vía ingestión y que no existiera ningún otro aporte más en un periodo de tiempo, además de tener el máximo número de muestras de orina posibles para ver la eliminación exacta por esta vía.

Queda claro que en menos de 24 horas parte de la cantidad de este radionucleido empieza a ser eliminado por la orina. El tiempo que transcurre desde su ingesta hasta el comienzo de su eliminación no podemos verlo dado la frecuencia de muestreo con que se ha llevado a cabo. Tampoco podemos ver con los datos del individuo J el tiempo que tarda en eliminarse por completo por la vía de la orina este radionucleido, ya que existen distintas aportaciones del radionucleido por otros alimentos, o bien porque tras la primera ingesta de alimentos ricos en él, le prosigue una ingestión los días continuos de productos con alto contenido de  $^{210}\text{Po}$ .

Si estudiamos los resultados obtenidos en las muestras donadas por el individuo G, en su grafica podemos observar que los picos que se obtienen son más aislados y representan una menor concentración de actividad. Esto se asocia a una ingesta de productos marinos se hacía más puntual y en menor cantidad que la llevada a cabo por el individuo J.

Realizando los mismos cálculos que los llevados a cabo en el individuo J, vemos que por ejemplo teniendo en cuenta la muestra 6, se corresponde con una ingesta el día anterior de una lata de mejillones además de otros productos. Si sabemos que la lata de mejillones contiene aproximadamente 70 g de este producto, podemos considerar una ingesta aproximada de polonio de unos 6Bq aproximadamente. En la muestra a la que hacemos referencia, encontrábamos una concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  de  $13,1 \pm 0,2$  mBq/ℓ, si tenemos en cuenta que esa muestra era de 284 g, vemos que en esa micción se eliminaron 3,72 mBq, que se corresponde a un 0,06% de lo ingerido. Si esa concentración se mantiene en el resto de la orina generada durante 24 horas y asumiendo que la orina que se genera es de 1,2 ℓ, al final del día habría eliminado un 0,26%.

Como se observa en los cálculos realizados en los dos individuos, los porcentajes de eliminación no coinciden. Esto puede deberse en parte a la variabilidad de los distintos factores que influyen en la formación de la orina y absorción de distintos elementos en el organismo, ya que la biocinética de este radionucleido va a depender además de la edad y de la ingesta, de otros parámetros. Para poder obtener conclusiones más satisfactorias habría que establecer un protocolo que nos permitiese fijar algunas características del estudio, tales como sería una ingesta controlada en cantidad y tiempo de distintos productos.

Pero el objeto de nuestro estudio no era poner en cuestión los valores de tasas de transferencia y la biocinética del polonio, ya que como se encuentra en la literatura descrita, los valores publicados se basan en cálculos teóricos y extrapolaciones de experimentos en animales.

Hemos demostrado que la orina es un rápido sensor en el que se manifiesta la mayor o menos ingesta de  $^{210}\text{Po}$ . Queríamos obtener un conjunto de resultados de concentración de actividad de este radionucleido en muestras de orina humana, que nos permitiese enunciar un posible valor umbral de  $^{210}\text{Po}$  en la orina para una población no expuesta, que lo contiene de forma natural, para en su caso poder discriminarlo de una posible contribución antropogénica. Como hemos podido observar existe una amplia variedad de resultados, como hemos visto principalmente condicionados por la ingesta, y probablemente si hubiésemos analizado a algún individuo fumador también deberíamos contabilizar este factor como condicionante. Esto va a hacer que la elección de este valor umbral no debe ser fijado trivialmente.

Consideramos pues esencial la creación de un banco de datos a nivel nacional de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en orina con información asociada en cada caso sobre dietas alimenticias y hábitos de vida del donante. Dicho banco debe contener un número estadísticamente representativo de datos suficiente para poder obtener de ellos la información necesaria para una elección apropiada del mencionado valor umbral a escala regional o nacional en posibles casos de emergencia.

### **7.5 Resultados de concentraciones de actividad de $^{210}\text{Po}$ en el pelo**

El análisis de muestras de orina para la determinación de  $^{210}\text{Po}$  es algo que ha sido llevado a cabo en diversos estudios. Otra alternativa empleada ha sido el análisis de muestras fecales. Llegados a este punto, nos planteamos el análisis de otro tipo de muestras biológicas que arrojen información sobre el paso de este radionucleido en el cuerpo humano. Una matriz muy poco estudiada en cuanto a la obtención de resultados de  $^{210}\text{Po}$  han sido muestras de pelo. Se conoce que el pelo es un estupendo depósito de determinados elementos, de hecho el análisis de drogas en cabellos se



emplea como prueba confirmatoria y fiable. Es un buen testigo, ya que nos puede dar información de mucho tiempo atrás desde la incorporación de un elemento en el cuerpo.

El análisis de pelo para confirmar la presencia de ciertas drogas se remonta a las décadas de los 60 y 70, décadas en las que comienzan a aparecer distintos estudios sobre ello, y empezó a emplearse ese análisis en sustitución del análisis de orina. La toxicología forense y la ambiental son dos campos que ponen en auge esta técnica, dado que el pelo es una matriz que difícilmente se descompone o altera tras la muerte de una persona[Harkey et al. 1989] y puede ser almacenado fácilmente sin que se deteriore. Actualmente el análisis de cabello humano se antepone a los de sangre y orina para controles biológicos de metales pesados, como es el caso de los controles por contaminación de plomo[Barbosa et al. 2005].

Las células que forman el folículo del pelo son capaces de fijar algunos elementos, entre ellos se encuentran algunos elementos que pueden llegar a ser tóxicos en el cuerpo humano. Estas células, durante su desarrollo y crecimiento, tienen un metabolismo interno que capta dichas sustancias a partir del torrente sanguíneo con el cual están en contacto, siendo además uno de los tejidos metabólicamente más activos del cuerpo. Este tejido se ve afectado por la sangre, el sudor, el medio ambiente, la genética y el estado hormonal. A medida que el pelo crece, con una velocidad aproximada de 1 y 1,25 cm mensual, estas células se endurecen y terminan saliendo al exterior formando lo que conocemos como pelo. En este proceso acaban encerrando los productos que han ido acumulando durante los procesos metabólicos a los que se han visto expuestos. De este modo una longitud de 3 cm de pelo nos dará la información de unos tres meses aproximadamente, mientras que un análisis de orina o sangre nos la dará de un periodo de tiempo más corto desde su recolección hablando de horas o como mucho días. El análisis del pelo nos servirá de indicador de lo que sucede a nivel intracelular, mientras que el análisis de sangre de lo que nos proporciona información es de lo existente a nivel extracelular. Por estos motivos enunciábamos que el pelo va a proporcionar información sobre lo que se acumula en el organismo, siendo un testigo temporal de dichas acumulaciones.

Como hemos visto en el apartado de biocinética del polonio, a través del compartimento que denominábamos plasma 1, una parte acababa en el pelo, tanto si el radionucleido que estamos estudiando entraba por la vía digestiva, como por la epidérmica o respiratoria, es decir, desde el torrente sanguíneo parte va a quedar depositado de forma estable en los pelos.

Con el fin de ver si, en el caso del polonio, el pelo es una matriz fiable, hemos llevado a cabo de forma paralela a la toma de muestras de orina, la recopilación de pelo del cuero cabelludo y de barba del individuo J. La obtención de los dos tipos de muestras

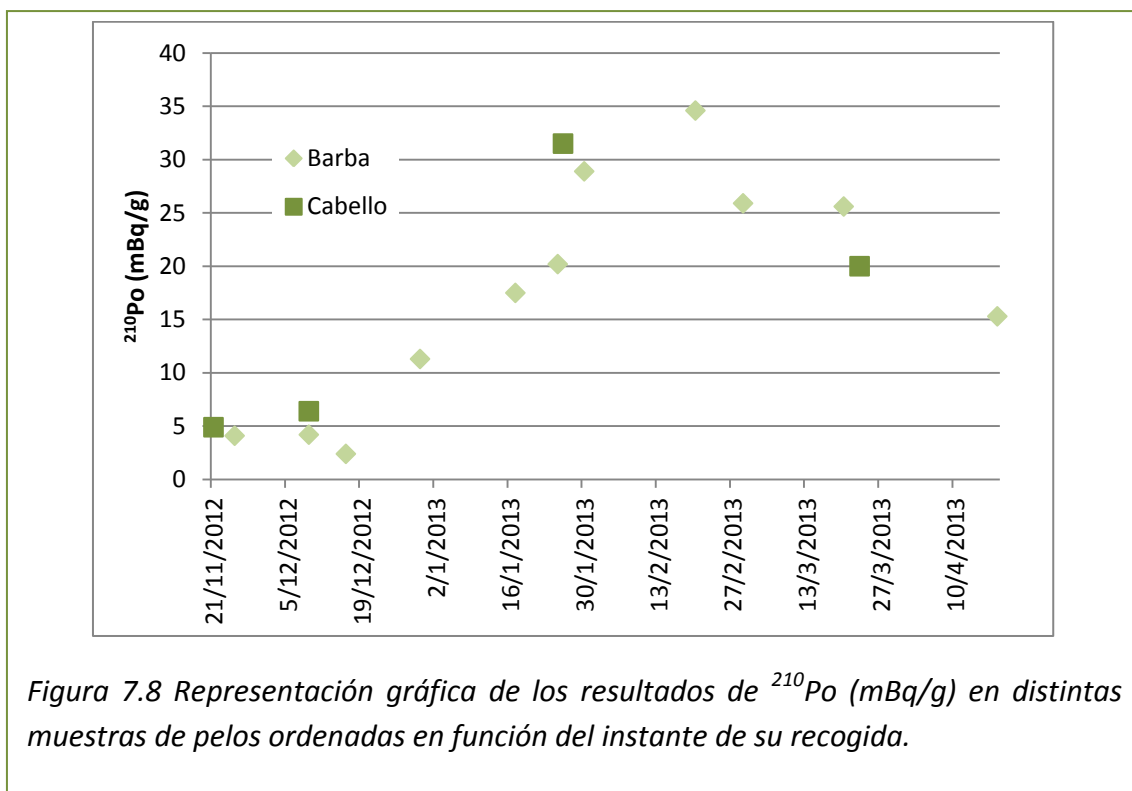
se llevaba a cabo de forma diferente. En el caso del cabello, se tomaba una muestra cuya longitud se aproximaba al centímetro no llegando al ras del cuero cabelludo, sino que se quedaba una longitud de aproximadamente un centímetro hasta llegar a él. En las muestras de barba la longitud obtenida era de aproximadamente medio centímetro, y no llevándose a cabo la rasuración de la zona dado que podía llegar a producir daño en la piel al hacerlo en seco, por lo que se extraía la muestra mediante corte con tijeras dejando aproximadamente expuesto medio centímetro de pelo que no era recogido.

En la Tabla 7.9 se presentan los resultados hallados en las muestras analizadas que suman un total de 16, correspondiendo 4 a muestras de cabello y 12 a muestras de pelo de barba.

Muestra Cabello	Fecha	Cantidad Analizada (g)	$^{210}\text{Po}$ (mBq/g)	Muestra Barba	Fecha	Cantidad Analizada (g)	$^{210}\text{Po}$ (mBq/g)
<b>MPJ1</b>	21/11/12	3,01	4,9±0,3	<b>MBJ1</b>	25/11/12	0,43	4,1±0,5
<b>MPJ2</b>	09/12/12	2,62	6,4±0,4	<b>MBJ2</b>	09/12/12	0,41	4,2±0,5
<b>MPJ3</b>	26/01/13	2,01	31,5±1,2	<b>MBJ3</b>	16/12/12	0,27	2,4±0,4
<b>MPJ4</b>	23/03/13	2,97	20,0±1,1	<b>MBJ4</b>	30/12/12	0,46	11,3±0,7
				<b>MBJ5</b>	17/01/13	0,43	17,5±1,5
				<b>MBJ6</b>	25/01/13	0,49	20,2±1,5
				<b>MBJ7</b>	30/01/13	0,52	28,9±1,8
				<b>MBJ8</b>	20/02/13	0,24	34,6±3,3
				<b>MBJ9</b>	01/03/13	0,43	25,9±2,5
				<b>MBJ10</b>	20/03/13	0,38	25,6±2,1
				<b>MBJ11</b>	02/04/13	0,37	16,3±1,6
				<b>MBJ12</b>	18/04/13	0,41	15,3±1,5

Tabla 7.9: Resultados de  $^{210}\text{Po}$ (mBq/g) en distintas muestras de pelo

A continuación vamos a representar gráficamente estos resultados, para poder ver la evolución temporal de los mismos y poderlos relacionar.



En la Figura 7.8 podemos observar la distribución de los resultados obtenidos. Se conoce que las tasas de crecimiento del cabello y la barba suelen ser similares, aunque en este último tipo de pelo puede variar en función de la edad y del grosor del pelo. Para la muestra de pelos de la barba, al tener un mayor número de muestras, observamos claramente que se produce un incremento de las concentraciones de actividad en el tiempo que alcanza su máximo en el mes de febrero. A partir de dicha muestra, las concentraciones en las siguientes que se midieron presentan menores concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$ . En el caso de muestras de cabello se observa, en los cuatro casos, que las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  son similares a las encontradas en pelo de barba de la misma fecha. También se observa, por tanto, un aumento inicial de la concentración de actividad, hacia el mes de febrero, y una disminución de concentración de actividad en el mes de marzo.

En la Figura 7.9 se representan las concentraciones de  $^{210}\text{Po}$  en orina (que coincide en el tiempo con la ingesta) y las concentraciones del mismo radionucleido en pelo (cabello y barba) del individuo J, en función del día en que se recogieron. Como ya dijimos, para los resultados en orina podemos asociar los valores más altos obtenidos al periodo en que tuvo lugar la ingesta de productos con alto contenido en  $^{210}\text{Po}$ . El incremento de  $^{210}\text{Po}$  en orina comienza el 28-11-2012. Si observamos la fecha en la que se produce ese incremento en las muestras de pelo, tal y como nos muestra la gráfica, tenemos un claro incremento el 17-01-2013, siete semanas después. Si repetimos el ejercicio con los valores más altos en orina y en pelo, tendríamos que al

valor más alto en orina es observado el 19-12-2012 y el valor más alto en pelo el 20-02-2013, es decir, nueve semanas después. Tendríamos un retraso entre siete y nueve semanas en la correspondencia entre los resultados en orina y en pelo. Esto significa que, el  $^{210}\text{Po}$  observado en las muestras de pelo se encontraban entre siete y nueve semanas antes en las células del folículo piloso de esos pelos. Aunque el tiempo que pasa hasta que esas células ya quedaban expuestas a la superficie es de un mes, las características de las muestras recogidas hacen que el periodo de correspondencia se retrase hasta nueve semanas.

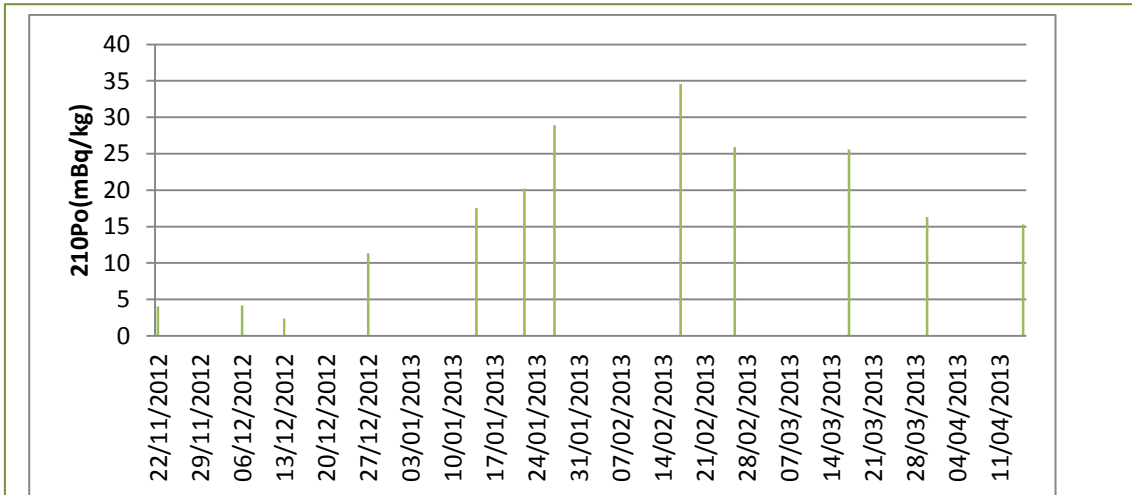


Figura 7.9 Representación gráfica de los resultados de  $^{210}\text{Po}$  en muestras de pelo (mBq/g) del individuo J, ordenados en función del día de su recogida

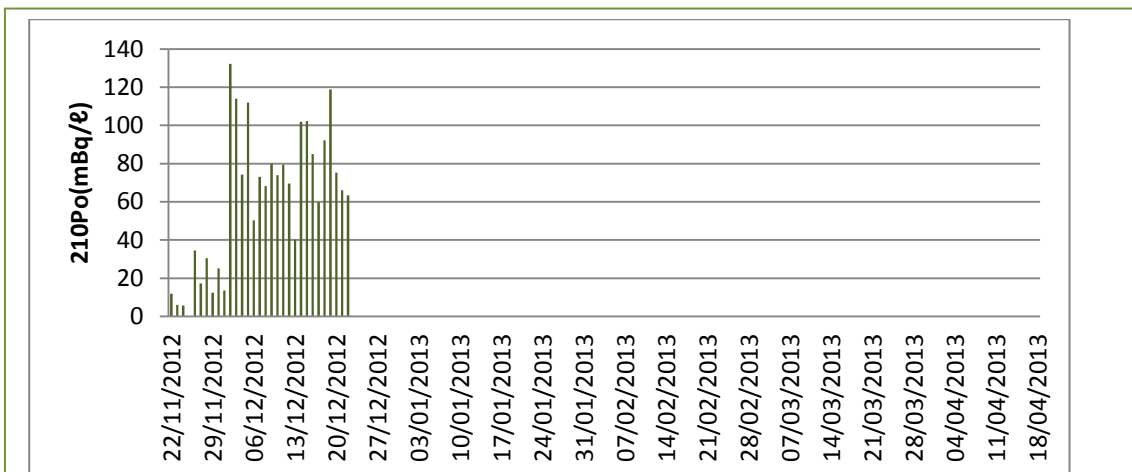


Figura 7.10 Representación gráfica de los resultados de  $^{210}\text{Po}$  en orina (mBq/l) del individuo J, ordenados en función del día de su recogida

Debemos recordar, que la muestra de pelo que se tomaba era de una longitud de un centímetro. Pero esta muestra no se tomaba desde la punta hasta la raíz, ya que en la

superficie dejábamos sin coger 1 centímetro desde la superficie del cuero cabelludo. Por este motivo No podemos asociar los resultados de concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  a lo ingerido un mes atrás. Para hacer esa correspondencia deberíamos tomar la muestra de una longitud de un centímetro desde la raíz. Con lo que la muestra que tomamos se correspondería a lo ingerido dos meses antes, un mes por el centímetro que tomamos para analizar, y otro por el que dejamos sin coger. Así, las muestras de pelo correspondientes al mes de febrero son las que se asocian con la ingesta del mes de diciembre.

El análisis de muestras de pelo da una información, retrasada en el tiempo pero integrada de la ingesta de  $^{210}\text{Po}$  por el individuo.

El uso de la orina o del pelo para poder monitorizar a un grupo crítico de la población después de un hipotético acto terrorista que implique la posible toma de  $^{210}\text{Po}$  de forma inadvertida por ingestión o inhalación exige en la práctica la elección de un valor umbral de referencia que permita discriminar entre el  $^{210}\text{Po}$  de origen natural existente en la orina bajo estudio y la posible contribución antropogénica de  $^{210}\text{Po}$ . La alta variabilidad observada por nosotros en las concentraciones de  $^{210}\text{Po}$  natural en estas muestras, hace que no sea ni mucho menos trivial el fijar ese valor umbral, siendo por otra parte obvio que su valor no debe ser fijado con base en la elección realizada en otros países porque sus hábitos alimenticios y modo de vida pueden ser muy diferentes.

## 8. RESUMEN Y CONCLUSIONES

En este último capítulo de la memoria, procederemos a resumir y a exponer las principales conclusiones obtenidas en este trabajo de investigación, dedicado primariamente a la determinación de las concentraciones de actividad de un radioisótopo natural perteneciente a la serie radiactiva del uranio, el  $^{210}\text{Po}$  en diversas matrices naturales. El interés en el estudio y análisis de este radionucleido se centra en un aspecto fundamental: el  $^{210}\text{Po}$  se caracteriza por su relativa alta radiotoxicidad cuando es ingerido por el hombre, pudiendo ser considerado como uno de los máximos contribuyentes a la dosis recibida por la población a través de la ingestión

Esta memoria se puede considerar dividida en dos grandes bloques:

- Una primera parte metodológica donde se ha realizado a) una descripción de las técnicas radiométricas experimentales utilizadas para la determinación fundamentalmente de  $^{210}\text{Po}$  en matrices ambientales, así como una exposición de los trabajos realizados para sus calibraciones y puestas a punto, y b) una descripción de los procedimientos físico-químicos y radioquímicos utilizados como etapa esencial previa para la medida radiométrica de los radionucleidos de interés, poniendo especial énfasis en detallar las labores de optimización llevadas a cabo por nosotros en los mencionados procedimientos.
- Una segunda parte, fundamentalmente de aplicación donde: a) se han determinado las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  y otros radionucleidos naturales de la serie del uranio en un conjunto amplio de muestras de aguas minerales y distintos tipos de alimentos, como base para la determinación de las dosis por ingestión y b) se han determinado las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en muestras de orina y pelos, con el fin de iniciar la creación de una base de datos fundamental para la realización de estudios dosimétricos y con el fin de correlacionar la ingesta con la eliminación de  $^{210}\text{Po}$ .

De una forma más detallada, podemos indicar a continuación, el contenido y principales conclusiones de este trabajo:

- 1) Se ha realizado una descripción de dos técnicas radiométricas: la espectrometría alfa con detectores semiconductor y la espectrometría gamma de alta resolución con detectores de germanio, utilizadas en este trabajo para la determinación de las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  y otros

radionucleidos en matrices naturales. Se incluye también la descripción de las labores de calibración y puesta a punto de ambas técnicas, y los fundamentos y condiciones necesarios para poder determinar las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Pb}$  en una muestra ambiental a partir de la medida de su descendiente  $^{210}\text{Po}$ .

- 2) Se ha procedido a describir la toma de muestras y las técnicas radioquímicas aplicadas como paso esencial para la posterior medida de los radionucleidos mencionados en el punto previo. Ello incluye etapas de preconcentración en estudios de muestras líquidas, etapas de homogeneización y secado en muestras de alimentos, y sobre todo, el procedimiento secuencial aplicado, basado en la técnica de extracción solvente con TBP, para el aislamiento secuencial de los emisores alfa de interés en las muestras analizadas como paso previo a la generación de fuentes de medida adecuadas para la aplicación de la técnica de espectrometría alfa.

Adicionalmente, y asociado a este punto:

- a) *Para la obtención de filtros que simularan la recogida del humo que realmente inhalaba una persona fumadora, se ha diseñado un sistema simple que captaba el humo una vez que pasaba por el filtro que ya trae la boquilla del cigarrillo para la determinación de concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  incorporada por un individuo fumador.*
  - b) *En el proceso de digestión ácida, se observó claramente las ventajas que presenta llevarla a cabo con un sistema de alta presión de microondas, ya que muchas de las muestras presentan un gran contenido lipídico y mediante la digestión abierta no se consigue poner en disolución total la muestra. Además este método nos permite optimizar el tiempo de dicha etapa. Se han optimizado los distintos protocolos de actuación con microondas, adaptándolos específicamente a las matrices que han sido tratadas.*
- 3) La medida del  $^{210}\text{Po}$  presente en una muestra ambiental dada, tras su extracción y aislamiento, exige su deposición en finas láminas sobre un soporte adecuado para su posterior medida por espectrometría alfa. Estas fuentes son generadas aplicando el denominado método de autodeposición. En este trabajo se ha realizado un estudio para la optimización de este proceso de autodeposición, analizando diversas variantes de dicha técnica y se ha evaluado la posibilidad de utilizar diversos metales (plata, níquel, cobre) como material soporte. Ello nos ha permitido optimizar los rendimientos de autodeposición, y

consecuentemente disminuir los límites de detección en la determinación de este radionucleido por espectrometría alfa.

Adicionalmente:

- a) *Se ha observado que el cambio en el material de las planchetas no aporta un cambio significativo, si bien podemos enunciar que el tiempo si es un factor condicionante y que llevando esta operación en 4 horas se mejora el rendimiento.*
- b) *Respecto al sistema empleado para llevar a cabo la autodeposición, se mejora en cierta medida con el sistema del aro suspendido en la disolución. Esto hace que por causa de su peso, la plancheta mantenga una posición vertical respecto a la dirección de rotación del medio en el que se encuentra inmersa.*

- 4) En un total de 32 marcas comerciales de aguas minerales representativas de las consumidas por la población, se ha determinado experimentalmente las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  e isótopos de uranio ( $^{234}\text{U}$  y  $^{238}\text{U}$ ). Los valores encontrados para los diferentes radionucleidos, se encuentran dentro de los rangos de valores típicos encontrados en aguas minerales colectadas en diferentes zonas del planeta. Estos valores nos han permitido determinar la contribución de cada uno de los radionucleidos mencionados a la dosis recibida por la población debido a la ingestión de estas aguas.

En este estudio, concretamente:

- a) *Se ha mostrado el papel preponderante del radionucleido  $^{210}\text{Po}$  en la magnitud de las dosis efectivas comprometidas via ingestión de aguas embotelladas recibidas por la población española. Se han obtenido valores del orden de  $\mu\text{Sv/año}$ , siendo éstos por otra parte muy variables dependiendo del origen de las aguas consumidas, lo que hace imprescindible la determinación de  $^{210}\text{Po}$  en cualquier control radiológico que se realice de aguas de consumo.*
- b) *A pesar de que lo que caracteriza a un agua mineral que se comercializa es el carácter no perturbable de las concentraciones de algunos de los elementos, se ha observado mediante el análisis en el tiempo de dos de las marcas comerciales que estas presentan concentraciones variables del radionucleido que nos ocupa este trabajo.*

- 5) Los valores de las dosis por ingestión de las aguas minerales analizadas debida a los diferentes radionucleidos evaluados se encuentran en la gran mayoría de los casos, incluso cuando se realiza la suma de las contribuciones de todos ellos, claramente por debajo del valor de la Dosis Indicativa Total, DIT, (0,1



mSv/año) fijado por la OMS como nivel indicativo máximo de las dosis susceptibles de ser recibidas por la población debido al consumo por ingestión de agua. No obstante es de indicar, que de todos los radionucleidos indicados, son el  $^{210}\text{Pb}$ , y fundamentalmente el  $^{210}\text{Po}$  los mayores contribuyentes a esas dosis con independencia de que otros radionucleidos presenten en dichas aguas unos valores incluso superiores de concentración de actividad. Ello es debido a su mayor radiotoxicidad, por la tendencia a acumularse en algunos órganos del cuerpo humano.

- 6) La contribución de los diversos radionucleidos analizados a la dosis por ingestión de las aguas minerales ha sido calculado siguiendo recomendaciones de organismos internacionales para cuatro grupos de edades. Con independencia de que en la mayoría de los casos el valor de DIT no ha sido superado, se observa como los mayores valores de dosis efectiva se obtienen para el grupo de edad más joven, hecho que debe ser tenido en cuenta, para considerarlo como grupo crítico.
- 7) Se han determinado las concentraciones de actividad de  $^{210}\text{Po}$  y adicionalmente en algunas también la concentración de isótopos de uranio ( $^{234}\text{U}$  y  $^{238}\text{U}$ ) en un total de 24 muestras de dieta que pueden ser consideradas como representativas de las ingeridas por la población sevillana. Las muy bajas concentraciones de actividad detectadas ha permitido poner a prueba la sensibilidad y potencia de la técnica de medida utilizada. Esas concentraciones de actividad son por otra parte muy variables entre muestras, hecho esperable por la no uniforme composición de las dietas analizadas.
- 8) Las determinaciones radiométricas realizadas en las muestras de dieta tipo, nos ha permitido calcular la contribución a la dosis por ingestión de estas dietas de los siguientes radionucleidos:  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{234}\text{U}$ , y  $^{238}\text{U}$ . Los valores encontrados para estas dosis se encuentran dentro del rango de valores normales indicados por la OMS, aunque se ha puesto otra vez de manifiesto la claramente mayor contribución a esas dosis del  $^{210}\text{Po}$  respecto a los isótopos de uranio. Por otra parte, las dosis efectivas determinadas a partir de los resultados experimentales obtenidos para cada muestra de dieta individual son muy variables, habiéndose justificado el hecho de que para una apropiada evaluación dosimétrica es necesario en este caso trabajar con los valores medios obtenidos tras el análisis de un número estadísticamente significativo de muestras de dieta. Es decir, observando los resultados obtenidos, podemos decir que no tiene sentido el tener en cuenta los resultados de una dieta en particular, sino que cualquier estudio llevado a cabo debe realizarse desde una

perspectiva más global evaluando los valores medios obtenidos. Este valor medio de la dosis efectiva por ingestión del  $^{210}\text{Po}$  asociado a la dieta tipo, es en nuestro estudio y particularizando para la población adulta de 0,18mSv/año.

- 9) Se expuso antes la determinación la concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  en distintos grupos de alimentos que se engloban dentro de la pirámide alimenticia de la dieta mediterránea. El fin era llevar a cabo una evaluación de la contribución a la dosis efectiva por  $^{210}\text{Po}$  debido a la ingesta, y el aporte que haría cada grupo de alimentos a una dieta representativa.

De este estudio se concluyó:

*a) En el cálculo de la dosis, vemos que factor clave será la tendencia anual de consumo de cada producto. De esa forma, productos que a priori pueden presentar bajas concentraciones conllevarían una aportación a la dosis mayor que otros que puede que presentando una mayor concentración de actividad son consumidos en menor medida.*

*b) El grupo que presenta una mayor concentración de actividad, así como una mayor dosis efectiva debido a la ingesta de este radionucleido es el grupo de productos marinos. Este hecho propició que se estudiase en más profundidad productos pertenecientes al mismo.*

- 10) Se ha estudiado la concentración de actividad de  $^{210}\text{Po}$  así como de isótopos de uranio en distintas especies marinas consumidas con asiduidad por la población española.

En este sentido:

*a) Los resultados que se han obtenido dejan ver las altas concentraciones de  $^{210}\text{Po}$  en algunas especies marinas que se consumen con frecuencia.*

*b) Por otra parte, se ha podido observar en la mayoría de los casos que las concentraciones de  $^{210}\text{Po}$  son uno o varios órdenes de magnitud superiores a las determinadas en otros radionucleidos pertenecientes a su misma serie radiactiva natural como los isótopos de uranio*

*c) Podemos enunciar cómo debido a la ingestión media anual de algunas especies se pueden superar el centenar de microsievverts por año. Por ello se deduce, que una población cuya dieta sea rica y variada en productos marinos puede llegar a recibir una dosis por ingestión debida exclusivamente al  $^{210}\text{Po}$  superior al milisievert por año, al sumar las contribuciones debidas a diversas*

*especies. Esto también podemos asociarlo a la variabilidad encontrada en las dosis efectivas calculadas en la dieta.*

- 11) Con el fin de realizar una evaluación dosimétrica lo más realista posible, se ha tenido en cuenta una posible pérdida de  $^{210}\text{Po}$  en el proceso de preparación para su consumo (parrillada de pescados, cocción de moluscos y crustáceos, etc), por ello se ha llevado a cabo la cocción de distintos productos. Si bien es cierto que para ver el efecto de este proceso, algunos grupos de muestras también se han analizado sin llevar a cabo este paso. Se pudo observar que la mayoría de las especies no presentan una variación significativa en sus resultados tras la cocción.
- 12) A través de evaluaciones regionales de las concentraciones de Po en distintas especies se confirma que los niveles de este radionucleido no varían mucho de un medio ambiente marino a otro, y que las diferencias regionales en los niveles de  $^{210}\text{Po}$  se encuentran dentro de la variabilidad natural entre las especies.
- 13) Se han analizado muestras de orina en dos individuos a los cuales se les ha controlado la ingesta, llevando una dieta bien definida y variable en el tiempo llevada a cabo los días de toma de muestras. Con este estudio se ha observado la influencia de los hábitos alimenticios en la cantidad de  $^{210}\text{Po}$  excretada en orina, es decir, las concentraciones de este radionucleido son variables dependiendo de la ingesta. Este estudio realizado permite afirmar que la cantidad total de  $^{210}\text{Po}$  de origen natural en el cuerpo humano puede variar de una persona a otra dependiendo de su modo de vida: hábitos alimenticios, origen del agua ingerida, lugar de residencia (asociado a la exposición a  $^{222}\text{Rn}$ ), etc. Muchos son los factores que influyen en la cantidad de  $^{210}\text{Po}$  incorporado por el cuerpo humano, haciendo que existan variaciones significativas entre diferentes individuos, y por lo tanto en las concentraciones de este elemento que pueden encontrarse en su orina.
- 14) El uso de la orina para poder monitorizar a un grupo crítico de la población después de un hipotético acto terrorista que implique la posible toma de  $^{210}\text{Po}$  de forma inadvertida por ingestión o inhalación exige en la práctica la elección de un valor umbral de referencia que permita discriminar entre el  $^{210}\text{Po}$  de origen natural existente en la orina bajo estudio y la posible contribución antropogénica de  $^{210}\text{Po}$ . La alta variabilidad observada por nosotros en las concentraciones de  $^{210}\text{Po}$  natural en orina, hace que no sea ni mucho menos

trivial el fijar ese valor umbral, siendo por otra parte obvio que su valor no debe ser fijado con base en la elección realizada en otros países porque sus hábitos alimenticios y modo de vida pueden ser muy diferentes.

- 15) Con el fin de ver si en el caso del polonio, el pelo es una matriz fiable a la hora de detectar su anterior presencia en el cuerpo, hemos llevado a cabo de forma paralela a la toma de muestras de orina, la recopilación de pelo del cuero cabelludo y de barba de un individuo. Los resultados obtenidos nos muestran que este tipo de muestra es un testigo válido que nos da información retrasada en el tiempo pero integrada de la incorporación de  $^{210}\text{Po}$  en un individuo.

En el futuro se puede ampliar la línea de investigación aquí iniciada en varios aspectos. Quizás los de nuestra parte más destacables y prioritarios son los enunciados a continuación:

- 1) El en campo de aplicación sería conveniente profundizar el estudio temporal de las aguas minerales, así como poder acceder a datos propios de los acuíferos para correlacionar las posibles variaciones ya no solo con las facies geoquímicas que caracterizan el sustrato que contiene dichas aguas, sino también poder acceder a datos de extracción como la fecha de obtención del agua y nivel del acuífero para poderlo estudiar respecto variaciones pluviométricas y una mayor o menor concentración del elemento en su disolución.
- 2) Otro ámbito susceptible de estudio y ampliación, sería estudiar con más profundidad otras vías de entrada en el cuerpo humano del polonio, como sería la inhalación.
- 3) Queda también abierto para la ampliación un estudio en profundidad de los niveles de  $^{210}\text{Po}$  en la orina, ya que debería tenerse un banco de resultados que contenga un número estadísticamente representativo de datos suficiente para poder obtener de ellos la información necesaria para una elección apropiada del mencionado valor umbral a escala regional o nacional en posibles casos de emergencia. Así como seguir estudiando la biocinética de este radionucleido en el pelo, ya que como hemos visto, es una matriz que nos guarda información a largo plazo.



## BIBLIOGRAFÍA

[AESAN. 2013] Agencia Española de Seguridad Alimentaria y Nutrición. Ministerio de Sanidad, Servicios Sociales e Igualdad. Gobierno de España. 8 de Mayo de 2013.

[Al-Masri et al. 2004] Al-Masri M.S., Mukallati H., Al Hmwi A., Khalili H., Hassan M., Assaf H., Amin Y., Nashawati A. Natural radionuclides in Syrian diet and their daily intake. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2004; 260: 405-412

[Alonso-Hernández et al. 2002] Alonso-Hernández C., Díaz-Asensio M., Muñoz-Caravaca A., Suarez-Morell E., Ávila-Moreno R.  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{210}\text{Po}$  dose assessment from marine food in Cienfuegos Bay (Cuba). *Journal of Environmental Radioactivity*. 2002; 61: 203-211

[Aslani et al. 2005] Aslani M.A.A, Akyil S., Aytas S., Gurboga G. and Eral M. Activity concentration of  $^{210}\text{Pb}$ ( $^{210}\text{Po}$ ) in soils taken from cultivated lands. *Radiation Measurements*. 2005; 39: 129-135

[Baeza et al. 2001] Baeza, J., Cerezuela, M. D., Cuchí, J. A., Curán, J. J., Fernández, J. A., López, J. A., Moreno, L., Rubios, J. *Las Aguas Minerales en España*. 2001. ISBN: 84-7840-424-4.

[Barbosa et al. 2005] Barbosa F., Tanus-Santos J.E, Gerlach R.F and Parsons P.J. A Critical Review of Biomarkers Used for Monitoring Human Exposure to Lead: Advantages, Limitations, and Future Needs. *Environmental Health*

[Bhattacharyya et al. 1985] Bhattacharyya M.H., Larsen R.P., Furr H.C., Peterson D.P., Oldham R.D., Moretti E.S., Spaletto M.I. Absorption of Pu, Pb and Cd to mouth surfaces during oral administration to mice. *Health Physics*. 1985; 48: 207-213

[Blanchard. 1966] Blanchard R.L. Rapid determination of lead-210 and polonium-210 in environmental samples by deposition on nickel. *Anal. Chemistry*. 1966; 38: 189-192

[BOE. 2011] BOE. Nº16. 19 de enero de 2011. Sec. I. Pág. 6125.

[Carvalho. 2011] Carvalho F.P. Polonium ( $^{210}\text{Po}$ ) and lead ( $^{210}\text{Pb}$ ) in marine organisms and their transfer in the marine food chain. *Journal of Environmental Radioactivity*. 2011; 102: 462-472

[Cherry et al. 1981] Cherry R.D., Heyraud M. Polonium-210 content of marine shrimp: variation with biological and environmental factors. *Marine Biology*. 1981; 65: 165-175

[Cherry et al. 1994] Cherry R.D., Heyraud M., Rindfuss R. Polonium-210 in teleost fish and in marine mammals: interfamily differences and a possible association between Polonium-210 and red muscle content. *Journal of Environmental Radioactivity*. 1994; 24: 273-291

[Chu et al. 1999] Chu S.Y.F., Ekström L.P. y Firestone R.B. *The Lund/LBNL Nuclear Data Search*, February 1999

- [**Connan et al. 2007**] Connan O., Germain P., Solier L., Gouret G. Variations of  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in various marine organisms from Western English Channel: contribution of  $^{210}\text{Po}$  to the radiation dose. *Journal of Environmental Radioactivity*. 2007; 97: 168-188
- [**Dahlggaard. 1996**] Dahlggaard H. Polonium-210 in mussels and fish from the Baltic North Sea Estuary: *Journal of Environmental Radioactivity*. 1996; 32: 91-96
- [**Desideri et al. 2007**] Desideri, D., Meli, M. A., Feduzi, L., Roselli, C., Rongoni, A., Saetta, D.  $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Po}$  concentrations of bottled mineral waters in Italy and their dose contribution. *Journal of Environmental Radioactivity*. 2007; 94: 86-97.
- [**Fink. 1950**] Fink RM. Biological studies with polonium, radium and plutonium. Mc Graw-Hill. New York; 1950.
- [**Fowler. 2011**] Fowler S.W.  $^{210}\text{Po}$  in the marine environment with emphasis on its behavior within the biosphere. *Journal of Environmental Radioactivity*. 2011; 102: 448-461
- [**Flynn. 1968**] Flynn W.W. The determination of low levels of polonium-210 in environmental samples. *Analytical Chemistry*. 1968; Acta 43: 221-227
- [**García-Tenorio. 1983**] García Tenorio R. Puesta a punto de un espectrómetro alfa y preparación de muestras. Tesina de Licenciatura. Universidad de Sevilla. 1983
- [**García-Tenorio et al. 1986**] García- Tenorio R., García León M. Madruga G., Piazza C. Preparación de muestras de actínidos y Ra para espectrometría alfa por el método de electrodeposición. *Anales de Física*. 1986; B82:238-244
- [**Genie2000. 2004**] Genie 2000 3.0 Operations Manual. Canberra Industries. 2004
- [**González-Labajo et al. 2003**] González-Labajo J., Bolívar J.P and García-Tenorio R. Uranium-isotopes determination in waters from Almonte-Marismas aquifer (southern Spain). *Applied Physics*. 2003; Aphys 2003: 701-708
- [**González-Labajo. 2003**] Gonzalez-Labajo. Radionúclidos naturales en el Parque Nacional de Doñana y su entorno. Tesis Doctoral. Facultad de Física. Universidad de Sevilla. 2003
- [**Halltadius. 1984**] Halltadius. A method for electrodeposition of actinides. *Nuclear instruments and methods*. 1984; 223: 226-228
- [**Harkey et al. 1989**] Harkey M.R., Henderson G.L. Hair analysis for drugs of abuse. *Advanced in analytical toxicology*. 1989;2 : 289-329
- [**Hartwell,1975**] Hartwell J.K., ARH-SA-215. Atlantic Richfield Handford Company. Richland. Washington. 1975.
- [**Hayraud et al. 1979**] Heyraud M., Cherry R.D. Polonium-210 and lead-210 in marine food chains. *Marine Biology*. 1979; 52: 227-236

- [**Henricsson et al. 2012**] Henricsson C.F., Ranebo Y., Hansson M., Rääf C.L., Holm E. A biokinetic study of  $^{209}\text{Po}$  in man. *Science of the Total Environment*. 2012; 437: 384-389
- [**Hill. 1965**] Hill CR. Polonium-210 in man. Nature Publishing Group. 1965; 208:423-428
- [**Holm et al. 1977**] Holm E., Fukai R. A method multielement alpha-spectrometry of actinides and its application to environmental radioactivity studies. *Talanta*. 1977; 24: 659-664
- [**Hunt et al. 2004**] Hunt G.J. and Rummey H.S. The Human Gut Transfer of Environmental Polonium-210. Centre for Environment, Fisheries and Aquaculture Science. British Crown Copyright 2004.
- [**IAEA. 1995**] IAEA Basic Safety Standards, 1995
- [**IAEA. 2008**] IAEA Worldwide proficiency test: determination of naturally occurring radionuclides in phosphogypsum and water. IAEA-CU-2008-3. 2008
- [**ICRP 89**] Basic Anatomical and Physiological Data for Use in Radiological Protection Reference Values. Publication 89. Pergamon. 2002
- [**ICRP 93**] Managing Patient Dose in Digital Radiology. Publication 93. ESEVIER. 2004
- [**ICRP 95**] Doses to Infants from Ingestion of Radionuclides in Mothers' Milk. Publication 95. ESEVIER. 2004
- [**ICRP 100**] International Commission on Radiological Protection Human. Human Alimentary Tract Model for Radiological protection. Publication 100. ESEVIER. 2007
- [**Idoeta et al. 2010**] Idoeta, R., Herranz, M., Abelairas, A., Legarda, F. Removal of polonium in municipal water treatment plants. Proceedings International topical Conference on Po and radioactive Pb isotopes. Universidad de Sevilla. Editores García-Tenorio, R. y Manjón, G. 2010.
- [**Jaakkola. 1994**] Jaakkola T. Radiochemical separations. Lectures in environmental radioactivity. 1994; 244-249
- [**Jia et al. 2007**] Jia, G. and Torri, G. Estimation of radiation doses to members of the public in Italy from intakes of some important naturally occurring radionuclides ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$  and  $^{210}\text{Po}$ ) in drinking water. *Applied Radiation and Isotopes*. 2007; 65: 849-857.
- [**Kannan et al. 2001**] Kannan V., Iyengar M.A.R. and Ramesh R. Dose estimates to the public from  $^{210}\text{Po}$  ingestion via dieta at Kalpakkam (India). *Applied Radiation and Isotopes*. 2001; 54: 663-674
- [**Katzleberger et al. 2000**] Katzleberger, C., Wallner, G. and Irlweck, K. Determination of  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$  and  $^{210}\text{Po}$  in natural drinking water. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2000; 249, No 1: 191-196,



- [Khater. 2004] Khater A.M.F. Polonium-210 budget in cigarettes. Journal of environmental radioactivity. 2004; 71: 33-41
- [Knoll.2000] Knoll G.F. Radiation detection and measurement. Wiley, New York. 2000
- [Kovács et al. 2003] Kovács, T., Bodrogi, E., Dombóvári, P., Somlai, J., Németh, Cs., Capote, A. and Tarján, S.  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Po}$  concentrations of bottled mineral waters in Hungary and their committed effective dose. Radiation Protection Dosimetry. 2003; 108: 175-181.
- [Kovács et al. 2007] Kovács T., Somlai J., Nagy K., and Szeiler G.  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$  concentrations cigarettes in Hungary and their estimated dose contribution due of smoking. Radiation Measurements. 2007; 42: 1737-1741
- [Leggett et al. 2001] Leggett R.W. and Eckerman. A systemic biokinetic model for polonium. The Science or the Total Environment. 2001; 275: 109-125
- [Leo. 1987] Leo W.R. Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments. Ed Springer-Verlag. 1987
- [Luchini. 2010] Luchini L. Beneficios nutricionales y de salud del producto “pescado”. Dirección de Acuicultura. 2010
- [MAGNA 50] Instituto Tecnológico Geominero de España. MAGNA 50 (2ªSerie).2009.
- [MAGNA 701] Instituto Tecnológico Geominero de España. Valencia de Alcántara. MAGNA 701
- [MAGNA 756] Instituto Tecnológico Geominero de España. Herrera del Duque. MAGNA 756.
- [Manjón et al. 1997] Manjón, G., Vioque, I., Moreno, H., García-Tenorio, R., García-León, M. Determination of  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{224}\text{Ra}$  in drinking waters by liquid scintillation counting. Applied Radiation and Isotopes. 1997; 48: 535-540.
- [Mantero. 2007] Mantero J. Estudio radiométrico del proceso de producción de una industria NORM. Trabajo de Investigación de Tercer Ciclo. Facultad de Física. Universidad de Sevilla. 2007
- [Mantero. 20013] Mantero J. Avances en espectrometría alfa y gamma para su aplicación en la evaluación del impacto radiactivo en una industria NORM. Tesis Doctoral. Facultad de Física. Universidad de Sevilla. 2013
- [Martín. 2008] Martín, V. J. 1987-2007, dos décadas del Panel de Consumo Alimentario. Evolución de los hábitos de compra y consumo en España. Distribución y Consumo. 2008; 208-236.
- [Martínez-Aguirre. 1990] Martínez-Aguirre A. Medida de isótopos de U, Ra, y  $^{210}\text{Po}$  en muestras naturales. Tesina de Licenciatura. Universidad de Sevilla. 1990

- [Martín Sánchez et al. 1994] Martín Sánchez A., Vera Tome F., Caceres Marzal D. Y Bland C.J. An experimental study of symmetric and asymmetric peak-fitting parameters for alpha-particle spectrometry. Nuclear, Instrumental And Methodology. 1994 ;A 339
- [McDonald et al. 1991] McDonald P., Cook G.T., Baxter M.S. Natural and artificial radioactivity in coastal regions of UK. Radionuclides of the Study of Marine Processes (Eds Kershaw P.J. and Woodhead D.S.). Elsevier Applied Science. 1991; 286-298
- [McDonald et al. 1999] McDonald P., Jackson D., Leonard D.R.P. and McKay K. An assessment of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  in terrestrial foodstuffs from regions of England and Wales. Journal of Environmental Radioactivity. 1999; 43; 15-29
- [Nieri et al. 1998] Nieri, Nieto A., Mazzili B. Evaluation of  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in some mineral spring water in Brazil. Journal of Environmental Radioactivity. 1998; 41: 11-18.
- [Noshkin et al. 1994] Noshkin V.E., Robison W.L. and Wong K.M. Concentration of  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in the diet at the Marshall Islands. The Science of the Total Environment. 1994; 155: 87-104
- [NRC. 1989] National Research Council (NRC). Recommended dietary allowances. Washington: National Academy Press. 1989; 247-261.
- [Persson et al. 2011] Persson B.R.R. and Holm E. Polonium-210 and lead-210 in the terrestrial environment: a historical review". Journal of Environmental Radioactivity. 2011; 102: 420-429
- [Pietrzak et al. 1997] Pietrzak-Flis Z., Chrzanowski e. and Dembinska S. Intake of  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  with food in Poland. The science of the Total Environment. 1997; 203: 157-165
- [Puerta et al. 2009] Puerta N., Puerta A., Morales J., Ocampo E.  $^{210}\text{Po}$  Determination in urine. Revista Colombiana de Física. 2009; 41:671-673
- [Roessler. 2007] Roessler G. Why  $^{210}\text{Po}$ ? Health Physics News. 2007; Vol 35, nº2
- [Skwarzec et al. 2001] Skwarzec B., Ulatowski J., Struminska D.I. and Borylo A. Inhalation of  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$  from cigarette smoking in Poland. Journal of Environmental Radioactivity. 2001; 57: 221-230
- [Skwarzec et al. 2002] Skwarzec, B., Struminska, D. I. and Borylo, A. Radionuclides of  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{234}\text{U}$  and  $^{238}\text{U}$  in drinking bottled mineral water in Poland. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 2002; 256, No 2: 361-364.
- [Skuterud et al. 2005] Skuterud L., Gwynn J.P., Gaare E., Steiness E. and Hove K.  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  in lichen and reindeer in Norway. Journal of Environmental Radioactivity. 2005; 84: 441-456

- [Smith-Briggs et al. 1984]** Smith-Briggs J.L. and Bradley E.J. Measurement of natural radionuclides in U.K. diet. *The Science of the Total Environment*. 1984; 35 :431-440
- [Smith-Briggs et al. 1986]** Smith-Briggs J.L., Bradley E.J., Potter M.D. The ratio of lead-210 to polonium-210 in UK diet. *Science of the Total Environment*. 1986; 54: 127-133
- [Steinbauer et al. 1994]** Steinbauer E., Bortels G., Bauer P., Biersack J.P., Burguer P. Y Ahmad I. A survey of the physical processes which determine the response function of silicon detectors to alpha particles. *Nuclear, Instrumental And Methodology*. 1994 ;A 339
- [Sugiyama et al. 2009]** Sugiyama H., Terada H., Isomura K., Iijima I., Kobayashi J. and Kitamura K. Internal exposure to  $^{210}\text{Po}$  and  $^{40}\text{K}$  from ingestion of cooked daily foodstuffs for adults in Japanese cities. *The Journal of Toxicological Sciences*. 2009; 34, No 4: 417-425
- [Turtiainen ET AL. 2011]** Turtiainen T., Kostianen E. and Hallikainen A.  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  in Finnish cereals. *Journal of Environmental Radioactivity*. 2011; 102: 438-442
- [UNSCEAR. 2000]** UNSCEAR. Ionizing Radiation: Sources and Biological effects. Naciones Unidas. Nueva York. 2000
- [Vaaramaa et al. 2009]** Vaaramaa K., Solatie D. and Aro L. Distribution of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  concentration in wild berries and mushrooms in boreal forest ecosystem. *Science of the Total Environment*. 2009; 408: 84-91
- [Varela-Moreiras et al. 2010]** Varela-Moreiras G., Ávila J., Cuadrado C., del Pozo S., Ruiz E., Moreiras O. Evaluation on food consumption and dietary patterns in Spain by the Food Consumption Survey: updated information. *European Journal of Clinical Nutrition* . 2010; 64: 37-43
- [Vera Tomé et al. 2002]** Vera Tomé F., Blanco Rodríguez M.P. and Lozano J.C. Study of the representativity of uranium and thorium assays in soil and sediment samples by alpha spectrometry". *Applied Radiation and Isotopes*. 2002; 56: 393-398
- [Verbalis et al. 2003]** Verbalis, J.G. Disorders of body water homeostasis. *Best Practice & Research Clinical Endocrinology & Metabolism*. 2003; 4:471-503.
- [Vioque, 2002]** Vioque Romero I. Elementos transuránicos en un sistema acuático continental europeo afectado por acidificación. Tesis Doctoral. Universidad de Sevilla. 2002.
- [Vrecek et al. 2004]** Vrecek P., Benedik L. and Pihlar B. Determination of  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in sediment and soil leachates and in biological materials using a Sr resin column and evaluation of column reuse. *Applied Radiation and Isotopes*. 2004; 60: 717-723
- [Waska et al. 2008]** Waska H., Kim S., Kim G., Kang MR., King GB. Distribution patterns of chalcogens (S, Se, Te and  $^{210}\text{Po}$ ) in various tissues of a squid, *Torodoes pacificus*. *Science of Total Environment*. 2008; 392: 218-224